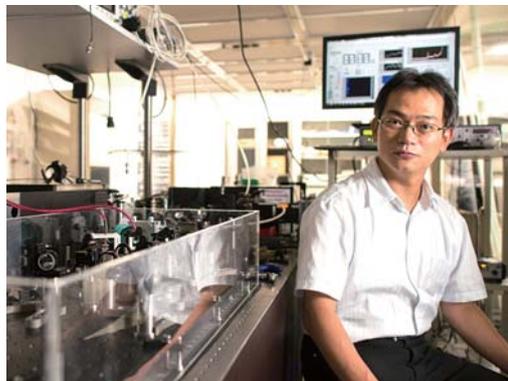


光電場波形の計測

藤 貴夫 分子制御レーザー開発研究センター 准教授

ふじ・たかお

1994年 筑波大学基礎工学類卒業、1999年 同大学大学院工学研究科修了 博士(工学)、1999年 東京大学大学院理学系研究科助手、2002年 オーストリア・ウィーン工科大学 客員研究員(日本学術振興会海外特別研究員)、2004年 ドイツ・マックスプランク量子光学研究所 客員研究員、2006年(独) 理化学研究所研究員、2008年 同研究所専任研究員を経て、2010年2月より現職



はじめに

光が波の性質を持つということは、高校物理の教科書に書いてあるような、基本的なことである。しかし、その光の波が振動する様子を観測することは、最先端の技術を使っても、容易ではない。光の振動周期は、1-2フェムト秒(10^{-15} s)のオーダーであり、それを直接計測するためには、アト秒パルス(10^{-18} s)が必要だと考えられていた。

2004年に、マックスプランク量子光学研究所において、アト秒パルスを使った光電場計測が初めて行われた。この手法は、アト秒ストリーク法^[1]と呼ばれ、現在では、アト秒科学の研究にお

いて広く用いられている手法であるが、超短光パルスの評価法としては、大掛かりすぎると言える。例えば、アト秒パルス発生のために、高強度数サイクルパルスや高真空装置などが必要となる。また、アト秒ストリーク法では、単一ショット計測や自己参照が不可能であり、計測できる光パルスに対する制限は厳しい。

2010年からスタートした分子研の藤グループでは、2-20 μm まで帯域の広がった超広帯域コヒーレント中赤外光発生の実験に成功し、それを分光に応用することで、様々な成果を上げて

きた^[2-5]。そうした実験において、中赤外光パルスの評価する必要があるが、そのときに、評価対象の光パルスの電場振動を計測する新しい方法を発見した。本稿では、その光電場波形計測手法について、簡単に紹介する。

光電場波形計測法の概念

本手法の概念を一言で説明するならば、周波数分解光ゲート法(frequency-resolved optical gating, FROG)^[7]と電気光学サンプリング法(electro-optic sampling, EOS)^[8]の計測を同時に行うということである。FROGは、超短光パルスのパルス幅を評価する手法であり、EOSは、テラヘルツ波の電場波形を計測する手法として、それぞれ広く利用されているが、これまで、それらの手法の関係が議論されたことはなかった。藤グループにおいて、中赤外光パルスのパルス幅を、FROGによって測定しているときに、その光学系を少し変更するだけで、EOSの信号も同時に計測できることを見出した。さらに、理論的な考察を進めることによって、FROGとEOSの信号を同時に測定すれば、計測対象の電場の周期より

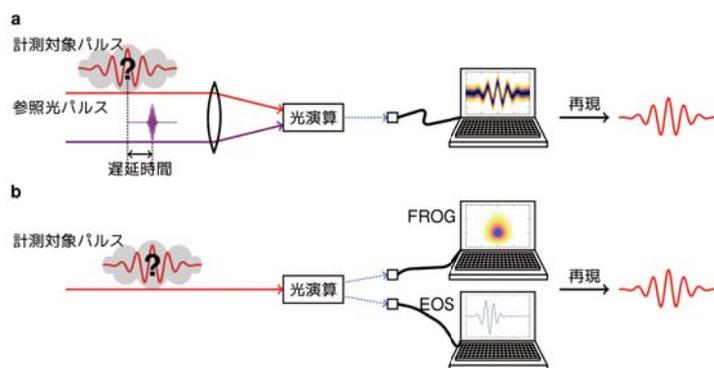


図1 アト秒ストリーク法と藤グループで開発された光電場計測法を比較した図。(a) アト秒ストリーク法の概念図。計測対象パルスと参照光パルスであるアト秒パルスとの光演算の信号を、遅延時間を掃引しながら測定し、光電場の計測を行う。計測対象の光パルスと別に、アト秒パルスを用意する必要がある。(b) 藤グループで開発された光電場波形計測技術の概念図。計測対象の光パルスそのものを使って、光電場の計測を行うことができる。

も長い参照光パルスを用いても、光パルスの電場波形を測定できることがわかった。つまり、アト秒パルスがなくても、光電場波形の計測が可能だということである。また、このことは、自己参照、つまり、計測対象光そのものを使って、光電場の計測が可能であることを示唆しており、光科学において画期的な発見となった。アト秒ストリーク法と、藤グループで開発された光電場計測法の概念を比較した図を図1に示す。

実験結果

本手法による光電場波形測定実験の一例を示す。本実験では、計測対象の光は、7 fsの中赤外光パルスである。この赤外光パルス発生も、藤グループで開発した独自の方法を用いている。詳細は、参考文献^[9-11]を参照されたい。中赤外光パルスの中心波長は3.3 μmである。実験装置図を図2に示す。この装置自身は、気体を使ったEOS (air-biased coherent detection^{[12])}の装置とほぼ同じである。違いは、FROGの信号を測定するために、非線形相互作用の信号のスペクトルも同時に測定しているところである。

計測対象の中赤外光パルス ($E_{\text{test}}(t)$) は、参照光パルス ($E_{\text{ref}}(t-\tau)$)、パルス幅: 30 fs、中心波長: 800 nm) と空間的に重ねあわされて、窒素ガス中に集光される。 τ は参照光パルスと中赤外光パルスの遅延時間である。2つのパルスの時間的な重なりに応じて、可視光の光が発生する。これは、四光波差周波混合と呼ばれる非線形光学過程であり、発生する可視光電場は、 $E_{\text{ref}}^2(t-\tau)E_{\text{test}}^*(t)$ に比例する。2つのパルスの遅延時間 τ を掃引しながら、この信号を測定すれば、中赤外光パルスと参照光パルスの相関に関する情報が得られ、それから、パルス幅を求めることができる。FROG法では、さらにこの信号を周波数分解することで、より精密にパルスを評価することができる。FROGの信号だけでなく、EOSの信号も測定するために、参照光パルスの二倍波を同時に発生させる必要がある。ここでは、窒素ガスに高電圧電場(約27 kV/mm)をかけることで、参照光パルスの二倍波 $E_{\text{ref}}^2(t-\tau)$ を発生させている。

四光波差周波混合光 ($E_{\text{ref}}^2(t-\tau)E_{\text{test}}^*(t)$) と二倍波 ($E_{\text{ref}}^2(t-\tau)$) はほぼ同軸に発生し、重なりあった光電場は、次のよう

に表すことができる。

$$\begin{aligned} & \langle |E_{\text{ref}}^2(t-\tau) + \alpha E_{\text{ref}}^2(t-\tau) E_{\text{test}}^*(t)|^2 \rangle \\ &= \langle |E_{\text{ref}}^2(t-\tau)|^2 \rangle + \langle |\alpha|^2 |E_{\text{ref}}^2(t-\tau) E_{\text{test}}^*(t)|^2 \rangle \\ &+ \langle 2\Re\{\alpha E_{\text{ref}}^2(t-\tau) E_{\text{ref}}^2(t-\tau) E_{\text{test}}^*(t)\} \rangle \quad (1) \end{aligned}$$

α は四光波差周波混合の非線形係数であり、ここでは、実定数とみなすことができる。最初の項は、遅延時間に依存しない項であり、ここでは重要ではない。第二項は、計測対象光と参照光の相互相関信号であり、これをスペクトル分解して測定すれば、相互相関FROGの信号となる。第三項は、EOSの信号であり、局所電場(ここでは二倍波)と四光波差周波混合光との干渉である。通常のEOSにおいては、この第三項のみが計測される。

参照光パルスが計測対象の光電場の周期よりも十分短ければ、 $|E_{\text{ref}}(t)|^2$ をデルタ関数とみなすことができ、第三項は、 $\Re\{E_{\text{test}}(\tau)\}$ に比例するので、電場の時間波形そのものが測定されることがわかる。

ここで、式(1)の第二項と第三項を同時に分離して測定することができれば、 $|E_{\text{ref}}(t)|^2$ がデルタ関数でなくとも、電場そのものの情報が得られる。参照光パルスが十分短くない場合は、EOSの信号は、低い周波数付近しか信頼できないが、その周波数領域においては、正確な位相の情報をもっている。その位相に、FROGで得られた位相をつなげれば、計測対象パルスの全周波数領域について、絶対値も含めた位相の情報が得られるということである。FROGとEOSの信号は、それぞれ独立して計測されるが、測定対象のパルスは同じことを利用した計測法である。

図3a-cに実験結果の一例を示す。図3aは、分光器で計測したFROGの信号

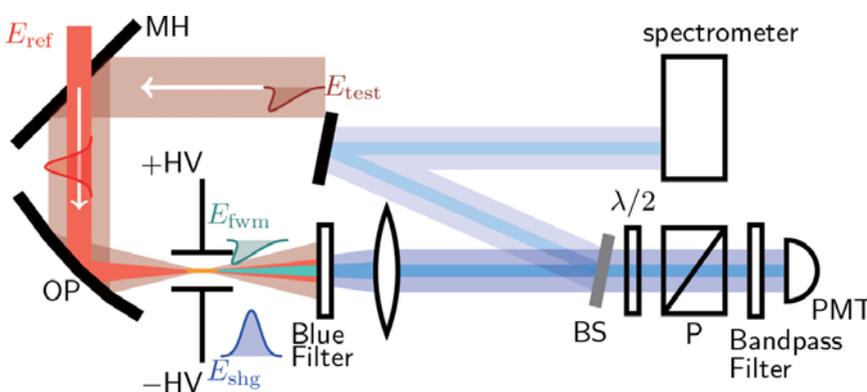


図2 実験装置図。MH: 穴あきミラー ($\phi=7$ mm)、OP: 放物面鏡 ($f=150$ mm)、HV: 高電圧電極 (4 kV)、BS: 7%ビームスプリッタ、P: 方解石偏光子、PMT: 光電子増倍管。

であり、式(1)の第二項に対応している。図3b中破線は、光電子増倍管で計測したEOSの信号であり、式(1)の第三項に対応している。これらの情報を使った光電場波形の再現方法は、次の通りである。

(i)信号光のパワースペクトル(図3c中斜線)と(相対)位相スペクトル(図3c中破線)をFROGトレース(図3a)からFROGアルゴリズムを使って再現する。この段階では、位相スペクトルのオフセットを決めることはできない。(ii)EOSの信号(図3b中破線)をフーリエ変換することによって、パワースペクトル(図3c中点)と位相スペクトル(図3c中四角)を計算する。(iii)FROGによって得られた位相スペクトルのオフセットを、EOSの信号から得られた位相スペクトルに合わせる(図3c中赤丸)。(iv)オフセットが修正された位相スペクトルと、FROGから得られたパワースペクトルを使った逆フーリエ変換によって、電場波形の完全な形を再現する。

このようにして再現された電場波形は、図3b中の実線で示してある。パルス幅は、6.9 fsであり、中心波長は3.3 μm である。3.3 μm における位相は -0.51π と求められた。

EOSの信号から得られたスペクトルは、参照光パルス強度 $|E_{\text{ref}}^2(t)|^2$ のフーリエ変換で表される関数(図3c中実線)によって、フィルタされた結果である。よって、30 fsの参照光パルスで、EOSだけによる波形計測を行った場合は、計測できる波長は6.7 μm (1500 cm^{-1}) までとなる。FROGの信号も同時に測定することによって、この実験では、1.7 μm (6000 cm^{-1}) の成分についても、強度、位相とも求めることができた。この手法では、計測できる波長の下限(周波数の上限)は、FROGで計測できる限界と同じである。

ここで、計測対象パルスの位相を変えることによって、計測されるパルスの位相が変化する様子を確認した。この実験において、計測対象パルスの位相を π ずらした状態で測定した結果を図3d-fに示す。計測結果から、パルス幅は変わらないが、位相だけが π ずれ、光電場が反転する様子を確認された。これによって、この手法は確かに計測対象のパルスのCEPの変化に対して敏感な測定であることが確認された。

結論

ここで紹介した実験以外にも、数値計算シミュレーションによる自己参照FROG-CEPの考察、単一ショットの光学系による実験や、大きく変形したパルスの測定なども行うことができた。

また、四光波混合過程で発生する光電場の位相について、新しい知見を得ることができた。詳細は参考文献^[13-17]を参照されたい。

FROG-CEPの柔軟性から、将来、様々な応用が考えられる。特に、参照光パルスを用意することが難しく、ショットごとに位相の異なったパルスについて、波形の評価を行うことができるので、例えば、自由電子レーザーから発生するパルスの波形評価に向いていると言える。逆に言えば、現在では、そのようなパルスについて、波形の評価が可能な唯一の手法と言える。今後は、自己参照の実験および、単一ショットでの自己参照FROG-CEPの実現をめざして、開発を進めていきたいと考えている。

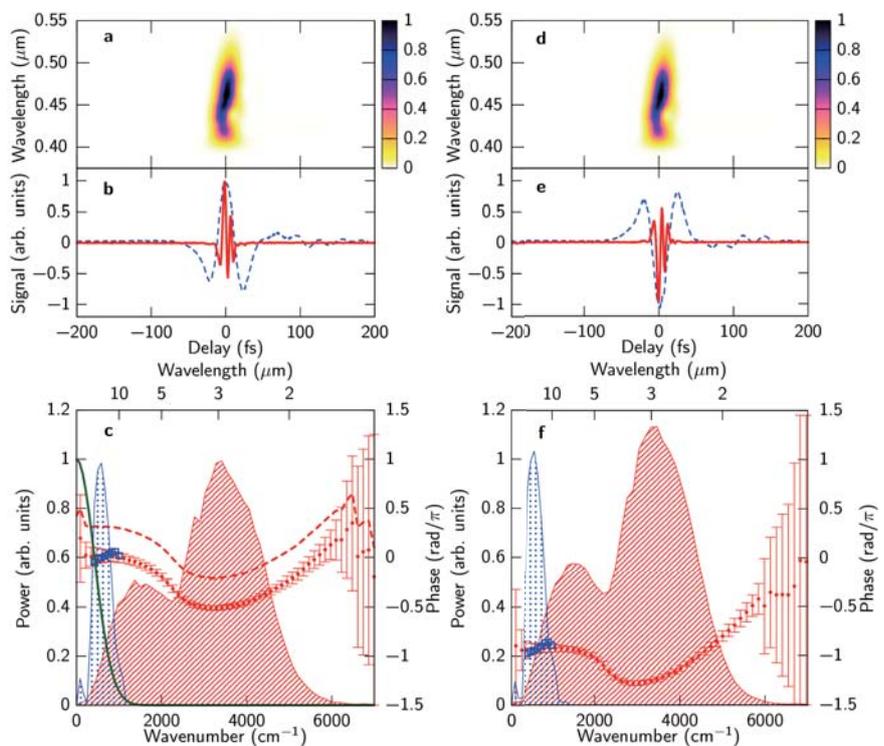


図3 実験で測定された(a)FROGトレースと(b)EOS信号(破線)。実線はこの結果から得られた電場波形。(c)斜線と破線はそれぞれFROGから得られたパワースペクトルと位相スペクトル。実丸は、位相スペクトルのオフセットを、EOSの信号からもとめて、補正したもの。エラーバーは、標準偏差であり、ブートストラップ法によって見積もった。点と四角はそれぞれEOSの信号からもとめたパワースペクトルと位相スペクトルである。実線は、 $|E_{\text{ref}}^2(t)|^2$ のフーリエ変換で表されるEOS信号のフィルタ関数である。FROG errorは 512×512 のサイズで0.3%であった。

参考文献

- [1] E. Goulielmakis, M. Uiberacker, R. Kienberger, A. Baltuska, V. Yakovlev, A. Scrinzi, T. Westerwalbesloh, U. Kleineberg, U. Heinzmann, M. Drescher and F. Krausz, "Direct measurement of light waves," *Science* **305**, 1267–1269 (2004).
- [2] T. Fuji, H. Shirai and Y. Nomura, "Ultrabroadband mid-infrared spectroscopy with four-wave difference frequency generation," *J. Opt.* **17**, 094004 (2015).
- [3] H. Shirai, T.-T. Yeh, Y. Nomura, C.-W. Luo and T. Fuji, "Ultrabroadband midinfrared pump-probe spectroscopy using chirped-pulse up-conversion in gases," *Phys. Rev. Appl.* **3**, 051002 (2015).
- [4] H. Shirai, C. Duchesne, Y. Furutani and T. Fuji, "Attenuated total reflectance spectroscopy with chirped-pulse upconversion," *Opt. Express* **22**, 29611–29616 (2014).
- [5] Y. Nomura, Y. T. Wang, T. Kozai, H. Shirai, A. Yabushita, C. W. Luo, S. Nakanishi and T. Fuji, "Single-shot detection of mid-infrared spectra by chirped-pulse upconversion with four-wave difference frequency generation in gases," *Opt. Express* **21**, 18249–18254 (2013).
- [6] D. J. Kane and R. Trebino, "Single-shot measurement of the intensity and phase of an arbitrary ultrashort pulse by using frequency-resolved optical gating," *Opt. Lett.* **18**, 823–825 (1993).
- [7] Q. Wu and X.-C. Zhang, "Free-space electrooptic sampling of terahertz beams," *Appl. Phys. Lett.* **67**, 3523–3525 (1995).
- [8] T. Fuji and T. Suzuki, "Generation of sub-two-cycle mid-infrared pulses by four-wave mixing through filamentation in air," *Opt. Lett.* **32**, 3330–3332 (2007).
- [9] Y. Nomura, H. Shirai, K. Ishii, N. Tsurumachi, A. A. Voronin, A. M. Zheltikov and T. Fuji, "Phase-stable sub-cycle mid-infrared conical emission from filamentation in gases," *Opt. Express* **20**, 24741–24747 (2012).
- [10] T. Fuji and Y. Nomura, "Generation of phase-stable sub-cycle mid-infrared pulses from filamentation in nitrogen," *Appl. Sci.* **3**, 122–138 (2013).
- [11] N. Karpowicz, J. Dai, X. Lu, Y. Chen, M. Yamaguchi, H. Zhao, X.-C. Zhang, L. Zhang, C. Zhang, M. Price-Gallagher, C. Fletcher, O. Mamer, A. Lesimple and K. Johnson, "Coherent heterodyne time-domain spectrometry covering the entire "terahertz gap"," *Appl. Phys. Lett.* **92**, 011131 (2008).
- [12] Y. Nomura, H. Shirai and T. Fuji, "Frequency-resolved optical gating capable of carrier-envelope phase determination," *Nat. Commun.* **4**, 2820 (2013).
- [13] H. Shirai, Y. Nomura and T. Fuji, "Real-time waveform characterization by using frequency-resolved optical gating capable of carrier-envelope phase determination," *IEEE Photon. J.* **6**, 3300212 (2014).
- [14] Y. Nomura, Y.-T. Wang, A. Yabushita, C.-W. Luo and T. Fuji, "Controlling the carrier-envelope phase of single-cycle mid-infrared pulses with two-color filamentation," *Opt. Lett.* **40**, 423–426 (2015).
- [15] T. Fuji, Y. Nomura and H. Shirai, "Generation and characterization of phase-stable sub-single-cycle pulses at 3000 cm^{-1} ," *IEEE J. Sel. Top. Quantum Electron.* **21**, 8700612 (2015).

覽古考新01 | 1971年

最近分子科学（Molecular Science）という言葉が研究者の間で用いられ、“分子科学”という標題での特定研究も、文部省科学研究費の援助の下に活動しており、“分子科学研究所”設立への動き、分子科学の発表誌の計画なども論じられている。若手研究者の間では、分子科学の夏の学校がここ数年間開催され成果をあげている。物理学の一つの主流をなしている物性論という分野の立て方や名前が日本製のものであるように、分子科学も日本製のものである。

分子科学はその名称を広く解釈すれば、化学のほとんど大部分、物理の一部および、生物学の一部を含むことになるであろうが、われわれはこの言葉をかなり限定した意味で使っている。それは簡単にいえば現代の新しい物理および化学の方法によって、分子（および分子の集合体）の構造や振舞いを電子的な立場から研究する分野である。

.....

近年分子生物学と呼ばれる分野が急激に発展し、核酸たんぱく質などの分子構造をもとにして、遺伝など生命現象の基本的な解明が進んでいるが、その今後の発展のためにも分子科学のになう任務は少なくない。

要するに、近年の物理学、化学の新しい研究方法を集中して分子の内奥までの構造と性情を探り、化学自身および物理学、生物学などの関連部門の発展に寄与するとともに、レーザー、有機半導体その他多くの工業的応用の基を作ろうというのが分子科学のねらいである。

特定研究分子科学研究所『分子科学によせて』1971年
小谷正雄（東京大学名誉教授 日本学士院会員 東京理科大学長 物理学）