

PRESS RELEASE

2020 年 7 月 8 日 理化学研究所 科学技術振興機構

サブサイクル光を増幅する新手法の開発

-波長の壁を破る極超短パルスレーザー光-

理化学研究所(理研)光量子工学研究センターアト秒科学研究チームのリン・ ユーチー研究員、鍋川康夫専任研究員、緑川克美チームリーダーの研究チームは、 一波長励起の増幅器を用いて、「サブサイクル光」と呼ばれる光電場が振動する 周期よりも短い時間幅の極超短パルスレーザー光を簡便に増幅する新たな手法 を開発しました。

本研究成果は、化学反応における電子の動きや強い光電場下での固体の状態 変化など、物質の超高速応答を観測・制御する有力な手段を提供するものと期待 できます。

サブサイクル光を増幅するには、1オクターブ^[1]以上の光周波数帯域での利得 (入力に対する出力比)が必要です。しかし、従来の光学パラメトリック増幅 (OPA)^[2]では、ここまで広い利得周波数帯域幅^[3]を得られませんでした。

今回、研究チームは、非線形光学結晶 BBO^[4]を用いた OPA において、励起光 ^[2]の波長を 708 nm (1nm は 10 億分の 1m) にすることで、利得周波数帯域幅を 1 オクターブ以上に広げることに成功しました。増幅した広帯域光を周波数に 応じて重ね合わせる(分散補償)ために、波長分割と合成のための干渉計を二つ の分散制御装置と組み合わせました。その結果、光周波数 130~300 THz(波長 0.9~2.4 μ m:1 μ m は 100 万分の 1m) にわたる短波長赤外領域のレーザー光 の増幅と分散制御が可能になりました。パルス幅が 4.3 フェムト秒(1 フェムト 秒[fs]は 1000 兆分の 1 秒) であることから、得られた出力光がサブサイクル光 であることを確認しました。

本研究は、オンライン科学雑誌『Nature Communications』(7月8日付:日本時間7月8日)に掲載されます。



増幅されたサブサイクル光のパルス波形



研究支援

本研究は、科学技術振興機構(JST)戦略的創造研究推進事業 CREST「新たな光機能 や光物性の発現・利活用を基軸とする次世代フォトニクスの基盤技術(研究総括:北山 研一)」の研究課題「アト秒反応ダイナミクスコントローラーの創生(研究代表者:石川 顕一)」、日本学術振興会(JSPS)科学研究費補助金基盤研究(A)「アト秒量子波束ダイ ナミックスの研究(研究代表者:鍋川康夫)」、および文部科学省光・量子飛躍フラッグ シッププログラム(Q-LEAP)「次世代アト秒レーザー光源と先端計測技術の開発(ATTO)」 による支援を受けて行われました。

1. 背景

物質の時間的変化を観測するためにパルスレーザー光を用いるとき、そのパ ルス幅を短くするほど、物質のより速い変化の様子を観測できます。多くの研究 グループがレーザー光の短パルス化の研究を進めてきた結果、近年では「サブサ イクル光」と呼ばれる、光電場が振動する周期よりも短いパルス幅のパルスレー ザー光の発生が可能になっています。

また、パルス包絡線中の光電場の形(キャリア包絡線位相^[5])を安定化できる ようになったことから、パルス包絡線ではなく光電場そのもので、原子や分子、 固体などの物質の変化を誘起し、その時間変化を観測・制御する研究が盛んに行 われています。

サブサイクル光は光電場波形の「偏り」が大きいため、電場波形に依存した物 質の変化を観測しやすいという特徴があります。物質の超高速応答を扱う研究 では、観測手段として非線形光学効果^[6]を利用する場合が多いため、より強度の 高いサブサイクル光が求められています。強度の高いサブサイクル光を得るた めには、サブサイクル光を増幅する必要があります。しかし、これまでの手法は、 複数の異なる波長域のレーザー増幅器を異なる波長のレーザーで励起して並列 に動作させ、各々の増幅器からの出力パルス光を重ね合わせるという非常に複 雑なものでした。

その一方で、一波長励起の増幅器による簡便な手法を用いた先行研究では、レ ーザー電場振動周期の2倍を切る程度(サブ2サイクル)のパルス幅が限界で、 サブサイクルには到達していませんでした。

2. 研究手法と成果

今回、研究チームは、一波長励起の増幅器を用いて、サブサイクル光を簡便に 増幅する手法の開発に成功しました。

超短パルスレーザー光を増幅するには、より広い利得周波数帯域幅(以下、利 得帯域幅)を持つ増幅器が必要です。非線形結晶を用いた光学パラメトリック増 幅(OPA)の手法はこれに適していますが、前述の通り一波長励起の OPA で得 られる利得帯域幅は 0.9 オクターブ程度で、サブサイクルには足りませんでし た。しかし、研究チームは非線形結晶 BBO を用い、かつ励起波長を 708 ナノメ ートル (nm、1nm は 10 億分の 1 メートル) にチューニングすると、利得帯域幅





を 1 オクターブ以上に広げられ、サブサイクル光を増幅できることを数値計算 によって発見しました (図1(a))。

超短パルスレーザーの増幅システムとして、広く普及しているチタンサファ イアレーザーの中心波長は800 nm です。このため、先行研究では800 nm を励 起光の波長とし、この波長で利得帯域幅が広がる非線形結晶 BIBO^[4]を OPA に用 いていました。しかし今回、波長708 nm のチタンサファイアレーザー増幅シス テムを独自に開発し(図1(b))、これを励起光^[2]に用いた BBO による OPA にお いて、1 オクターブ以上の利得帯域幅があることを確認しました。



図1 光学パラメトリック増幅(OPA)の利得波長域とスペクトル

- (a) 励起波長(縦軸)に対する OPA の利得波長域。励起波長を 800 nm とした場合(紫線)に比べて、708 nm にした場合(青線)の方が利得の高い波長領域が 1.5 倍程度広くなる。増幅帯域は 1000~2400 nm であり、1 オクターブを超える。
- (b) 開発した OPA 励起レーザーのスペクトル。ピーク波長を約 708 nm にチューニングした。挿入図は励 起レーザー光の自己相関波形であり、パルス幅が約 60 フェムト秒であることを示している。

この実験結果に基づき、図2に示す OPA システムを設計・構築しました。こ のシステムでは、まず励起光の一部を部分反射鏡で分け、これをフッ化カルシウ ム板に集光することで、自己位相変調^[7]による白色光を発生させます。この白色 光は、光周波数 130~300 THz(Tは1兆)、波長にすると 0.9~2.4 マイクロメ ートル(µm、1µmは100万分の1メートル)にわたる短波長赤外域のスペク トルを含んでいるため、これを3段の OPA で増幅するという基本構成となって います。ただし、キャリア包絡線位相(CEP)を安定化する必要があるため、1 段目の OPA から得られるシグナル光^[2](増幅光)ではなく、アイドラー光^[2](差 周波光)を以降の OPA で増幅します。

また、短パルス化には光周波数帯域幅が広いだけでなく、広い帯域幅の周波数 成分を秩序立てて重ね合わせる(分散補償)必要があることから、分散補償装置 (音響光学プログラマブル分散フィルター)を使用しますが、この装置1台で は制御できる帯域幅が不足していました。そこで、独自に開発した低分散の波長 分割鏡を用いて、スペクトルを波長約1.45μm以下と約1.45μm以上の成分に 分割し、それぞれの波長域で分散補償装置を働かせることにしました。各波長域 の分散補償装置を通った出力光は、波長合成鏡により再び一つのパルス光に合 成され、3段目の OPA で増幅されます。









右端の励起レーザー出力を分岐し白色光を発生した後、これを OPA1~OPA3 の 3 段で増幅する構成になっている。キャリア包絡線位相(CEP)安定化のため、OPA1 のアイドラー光が以降の OPA で増幅される。分 散補償は波長域を 2 分割して行っている。パルス波形は 2 次元シアリング干渉の手法で計測した。

サブサイクル光を応用実験に使用する際に重要となるのは、CEP の安定化と その制御です。開発したレーザーシステムでは、2 段目の OPA 出力光の一部を OPA に使用している BBO 出口表面からの反射光として取り出し、CEP の安定化 と制御に用いています。

負帰還制御^[8]によるここでの CEP の安定化の様子を図 3 に示します。図 3 (a) は、f-2f スペクトル干渉^[9]による干渉縞を 5 分間記録し続けたものです。干渉 縞はほとんど揺らぐことがなく、図 3 (b)(c)に示すように、揺らぎの幅は 146 mrad と評価され、1 周期の位相 2 π rad に対して十分小さい値となりました。これは、CEP が安定化されていることを意味しています。さらに、負帰還制御に変 調を加えることで、図 3(d)に示すような干渉縞の変調も行うことができました。これは、負帰還制御の変調により CEP が制御されていることを示しています。なお、3 段目の OPA 出力光の CEP 揺らぎは 493 mrad であり、若干不安定度が 増しましたが、CEP 制御の実験を行うには十分な安定度といえます。







図3 キャリア包絡線位相(CEP)の安定化

- (a) 2 段目の OPA 出力光による f-2f スペクトル干渉縞の記録。一つの記録でレーザー光 3 ショット分の積分値。
- (b) (a)の干渉縞から抽出した位相変化。CEP の変化を反映している。位相揺らぎは 146 mrad で、1 周期の 位相 2πよりも十分小さい値である。
- (c)(b)のヒストグラム。
- (d) 負帰還制御下での f-2f スペクトル干渉縞変調。安定化しながら CEP 制御を行うことができている。

レーザーシステムの出力光がサブサイクル光であることを確かめるには、パルス波形を測定する必要があります。通常のフェムト秒レーザー光^[10]のパルス波形測定では、2倍波発生による周波数分解光学ゲート法(SHG-FROG)が広く用いられています。しかし、本レーザーシステムの出力光のスペクトル帯域は1オクターブを超えており、基本波と2倍波の成分を最初から含んでいるためSHG-FROGを使用できません。

そこで、米国のマサチューセッツ工科大学とドイツの Center for Free-Electron Laser Science の研究グループが開発した、2次元シアリング干渉(2DSI)^[11]の手 法を用いました。2DSI では、被測定光に対して周波数がわずかに 4.1THz ずれた 二つのレプリカパルス光を作り、そのスペクトル干渉から被測定光の群遅延^[12] とスペクトル位相^[12]を再構築します。

測定で得られた 2DSI スペクトログラムと群遅延を図 4(a)に、群遅延を角振動 数について積分して得られたスペクトル位相と被測定光のスペクトルを図 4(b) に、さらにこれらから再構築されたパルス波形を図 4(c)に示します。スペクトル 波形から計算されるフーリエ限界^[12]のパルス幅は 4.2 fs であるのに対し、再構 築されたパルス波形のパルス幅は 4.3 fs となり、フーリエ限界に近い値となり ました。また、図 4 (b)のスペクトルの重心周波数は 167 THz (波長 1.8 µ m) で あり、振動の周期は 6 fs であることから、得られた出力光はパルス幅が振動周 期よりも短いサブサイクル光であることが分かりました。このとき cos 型の CEP



を仮定すると、この光パルスの電場波形は図 4(d)の実線のようになります。 また、シグナル光のパルスエネルギーは 32 マイクロジュール(µJ、1µJは 100 万分の 1 ジュール)であり、この種の増幅システムとしてはそれ程大きな 値ではありませんが、固体からの高調波発生などの非線形光学効果を利用した 応用実験が可能です。



図 4 出力光がサブサイクル光であることの確認

(a) 増幅光の2次元シアリング干渉(2DSI)スペクトログラムと得られた群遅延(赤線)。

- (b) 群遅延から得られたスペクトル位相(緑線)と増幅光のスペクトル(赤線)。
- (c) スペクトルとスペクトル位相から再構築された増幅光のパルス波形(赤の領域)。
- (d) CEP が0のときの増幅光の光電場波形(赤線)。

3. 今後の期待

図4(d)に示した光電場波形を見ると、+方向の振幅の最大値は1であるのに 対し、-方向の振幅の最小値は-0.7程度です。このような電場の形の「偏り」は 通常のパルス光ではほとんど無視できる値であり、サブサイクル光の大きな特 徴の一つとなっています。この特徴を、高次高調波発生などの高次非線形光学効 果や偏光制御と組み合わせて利用することで、物質の新たな超高速応答現象を 探索・解明できると考えられます。





4. 論文情報

<タイトル> Optical parametric amplification of sub-cycle shortwave infrared pulses <著者名> Yu-Chieh Lin, Yasuo Nabekawa, and Katsumi Midorikawa <雑誌> *Nature Communications* <DOI> 10.1038/s41467-020-17247-9

5. 補足説明

[1]1オクターブ

ある周波数の振動に対して、その2倍の周波数を持つ振動を「1オクターブ高い周波数の振動」と表現する。西洋音階で一つの音から1オクターブ高い音は、周波数が元の音の2倍であることから援用されている。

- [2] 光学パラメトリック増幅(OPA)、励起光、シグナル光、アイドラー光 「光学パラメトリック増幅」は、非線形結晶中に強度の高いレーザー光とこれより波 長が長く強度の低いレーザー光を同時に通すと、強度の低いレーザー光が増幅される 現象。非線形結晶における2次の非線形性に起因した3光波混合の一種で、強度の高 く波長の短いレーザー光を「励起光」、増幅されるレーザー光を「シグナル光」、励起 光とシグナル光との差周波として発生するレーザー光を「アイドラー光」と呼ぶ。OPA は Optical Parametric Amplification の略。
- [3] 利得周波数帯域幅

レーザー光の強度を増すための増幅器は、ある特定の波長(または周波数)領域のレ ーザー光しか増幅できない。例えば、チタンサファイアレーザーで増幅可能なレーザ ー光は、波長約 680 nm(周波数約 440THz)から約 1000 nm(約 300THz)までであ り、この間の周波数の幅、約 140THz を利得周波数帯域幅と呼ぶ。

[2] 非線形光学結晶 BBO、BIBO

通常のガラスや結晶は光が通るとき、その光電場の大きさに比例して分極(電荷の偏 り)が生ずる。これに対して非線形光学結晶は、特殊な構造を持つため光電場の大き さの2乗に比例した(非線形な)分極が生ずる。この性質により、強度の高いレーザ ー光を入射すると波長の異なるレーザー光を発生したり、増幅したりできる。BBO、 BIBO、はそれぞれ異なる種類の非線形光学結晶の名称。

[5] キャリア包絡線位相(CEP)

パルス光では、パルス包絡線の中で光電場が振動している。例えば、下図左の薄赤領 域がパルス包絡線で赤線が光電場である。この図の場合、パルス包絡線が最大となる 所で光電場の大きさが最大になっている(cos 型)。光電場の形は必ずしもこの通りに





なるとは限らず、下図右のようにパルス包絡線が最大となる所で電場の大きさが0に なる形(sin型)にも成り得る。このようにパルス包絡線に対して、光電場の形がどの ように変化するのかを決定する位相をキャリア包絡線位相という。下図右の場合、下 図左よりもキャリア包絡線位相が90度遅れている。CEPはCarrier Envelope Phaseの 略。



[6] 非線形光学効果

非線形光学結晶でなくとも、非常に強度の高いレーザー光をガラスや結晶、さらには ガス媒質などに通す場合、光電場の大きさに比例しない効果が現れる。これらの総称 が非線形光学効果である。例えば、光電場の大きさの3 乗に比例した分極が生ずる と、伝搬するレーザー光に対して非線形屈折率の効果を与えるので、レーザー光の性 質が変化する。

[7] 自己位相変調

高強度のレーザー光をガラスや結晶などに集光すると、レーザー光がそれら固体媒質の非線形屈折率の影響を受ける。特に、レーザー強度の急激な上昇と下降をもたらす 超短パルスレーザー光の場合、レーザー光の位相変調が誘起されスペクトル幅が大き く広がる。この現象が自己位相変調である。

[8] 負帰還制御

ある装置の出力を一定に保つため、出力の値を監視して、出力の発生源にその情報を 戻して制御する方法を負帰還制御という。出力が上がれば下げるように、出力が下が れば上げるように、出力の変化と反対向きに情報を発生源に戻すことから、負帰還と 呼ばれる。

[9] f-2f スペクトル干渉

超短パルスレーザー光を半透鏡などで二つに分けて、再び半透鏡などで空間的に重ね 合わせた後、分光器でスペクトルを観測すると、本来のスペクトルの形に加えて一定 間隔で強弱を繰り返す「縞」が現れる。これは二つの超短パルスレーザー光の間の干 渉効果によるものであり、スペクトル干渉と呼ばれる。測定される超短パルスレーザ ー光の長い波長成分の2倍波(2f)を発生させ、これを超短パルスレーザー光自身(f) の短い波長成分とスペクトル干渉させることを f-2f スペクトル干渉と呼ぶ。このと き干渉縞の揺らぎの大きさは、CEP の揺らぎの大きさと同等になる。





[10] フェムト秒レーザー光

慣例として、1000 フェムト秒未満のパルス幅のレーザー光を「フェムト秒レーザー 光」と呼んでいる。

[11] 2 次元シアリング干渉(2DSI)

スペクトル干渉させる二つの超短パルスレーザー光のうち、一つのスペクトルをわず かにずらす(shear)と、測定したスペクトル干渉縞(シアリング干渉)から超短パル スレーザー光の持つ群遅延を再構築できる。この手法の中で、二つの超短パルスレー ザー光の間の時間差を0とし、一方の超短パルスレーザー光の位相を走査して「周波 数-位相」の2次元干渉縞を記録する手法を2次元シアリング干渉という。2DSIは 2-dimensional shearing interferometryの略。

- [12] 群遅延、スペクトル位相、フーリエ限界
 - 超短パルスレーザー光は、広帯域の光周波数成分を含んでいる。各周波数成分がどの くらい時間的にずれて、超短パルスレーザー光の中に存在しているかを示す指標を 「群遅延」という。「スペクトル位相」とは各光周波数成分の位相のことで、群遅延 はスペクトル位相を角振動数で微分したものである。全ての周波数成分について、群 遅延がゼロの超短パルスレーザー光を「フーリエ限界」パルスという。フーリエ限界 のとき、全ての周波数成分においてスペクトル位相が同じ値となる。群遅延が測定で きれば、これを角振動数で積分することで、スペクトル位相が得られる。さらにスペ クトル波形を、スペクトル位相を考慮した上で逆フーリエ変換すると、超短パルスレ ーザー光のパルス包絡線を再構築でき、パルス幅を決定できる。

6. 発表者・機関窓口

<発表者> ※研究内容については発表者にお問い合わせください。 理化学研究所 光量子工学研究センター アト秒科学研究チーム

研究員 専任研究員 チームリーダー 字研究センター アト秒科字研究テー リン・ユーチー(Lin Yu-Chieh) 鍋川 康夫(なべかわ やすお) 緑川 克美(みどりかわ かつみ)







 < JST事業に関すること>
科学技術振興機構 戦略研究推進部 グリーンイノベーショングループ 嶋林 ゆう子(しまばやし ゆうこ)
TEL:03-3512-3531 FAX:03-3222-2066
E-mail:crest[at]jst.go.jp





<機関窓口>

*今般の新型コロナウイルス感染症対策として、理化学研究所では在宅勤務を実施して おりますので、メールにてお問い合わせ願います。

理化学研究所 広報室 報道担当 E-mail:ex-press[at]riken.jp

科学技術振興機構 広報課 TEL:03-5214-8404 FAX:03-5214-8432 E-mail:jstkoho[at]jst.go.jp

※上記の[at]は@に置き換えてください。

