

最終報告

## 光電場利用社会実現のための光ファンクションジェネレーター開発

研究代表者：吉井 一倫 龍谷大学 先端理工学部 電子情報通信課程 講師



## 1. 研究の背景と達成目標

研究代表者と桂川(電気通信大学)は 2013 年からの一連の研究により、光の波長域で 1000 THz 以上の帯域を有す分散スペクトル群に対し、光を空間的に分離することなく、ほぼフーリエ変換限界パルス幅までパルス幅を回復できる条件がどれだけ分散媒質を伝搬させても必ず現れることを発見し、その物理メカニズムを解明した[K. Yoshii, *et al.*, *Light: Sic. Appl.*, 2, e58 (2013)]. 本手法が機能するのに必要な条件は「スペクトル間隔が数十 THz 以上」ということだけであり、波長、モード本数、媒質の種類によらず、どのような位相分布も必ず探索できる普遍的な原理である。この原理は既存の分散補償の概念を覆す全く新しい超短パルス光発生技術を生み出し、かつ、いかなる分散媒質中でもアト秒域の光電場との相互作用が可能であることを保障する。さらに研究代表者らはこの原理がスペクトル振幅の操作にも応用できることを発見し、分散スペクトル発生から振幅・位相操作まで一度も空間的に分離することなく全て同軸で発生できる OFG の提案を行った[M. Katsuragawa and K. Yoshii, *Phys. Rev. A*, 95, 033846 (2017)]. その手法は、光軸上に薄い透明な分散媒質を配置し、その厚みを調整するだけの極めて簡便な方法で機能する。操作の過程でビームを空間的に分離しないので高い位相安定性とビーム品質を保つことができる。

本研究で研究代表者は、波長  $1.0 \mu\text{m}$  を基本波光とする第 5 次高調波までのハーモニクスを対象に、上記の新規スペクトル振幅・位相操作手法を適用し、パルス幅約 400 as の任意電場波形を整形できる OFG の開発を目的とする。この OFG の実現により、これまで真空中や固体試料のごく表面近傍でのみ行われてきた 1 サイクル以内の光電場と物質との相互作用が、固体試料の深部や、異なる結晶接合界面、光平面導波路中や光ファイバーの伝送先、また液体中の金属粒子やイオン、さらには生体試料中などあらゆる透明媒質の内側で行えることを世に示す。装置の複雑・高価さと限られた相互作用環境を理由にこれまでごく一部の研究グループでしか行われていなかったアト秒科学が、他分野の研究者にとって身近に広く展開されていくことを目指す (図 1)。

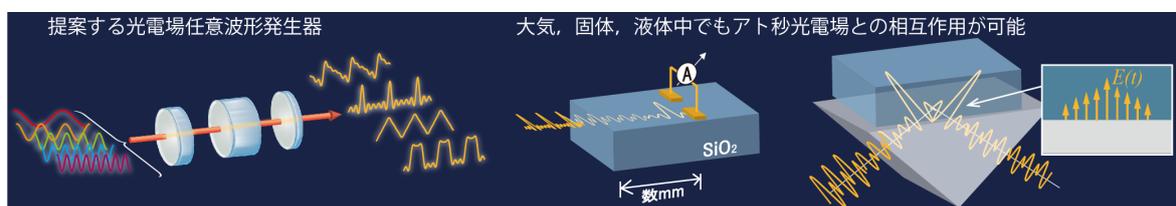


図 1. 光ファンクションジェネレーター (Optical function generator: OFG) とその応用の概念図。

## 2. 主な研究成果と社会、学術へのインパクト

上記の研究目標に対し以下の研究成果と社会・学術へのインパクトが得られた。

- ① 提案原理を用いてパルス幅 1.2 fs で 8.02 fs 周期で繰り返すパルス列の発生に成功。

周波数間隔 125 THz の 7 本のモードで構成される帯域 750 THz の離散スペクトルを対象に本研究構想と同様の振幅・位相制御を行い、パルス幅を評価した。その結果、分散媒質長に対するパルス幅の変化は計算と非常によく一致する周期構造を示した。強度時間波形のピーク値がフーリエ変換限界の 98.8%まで回復し、パルス幅 1.2 fs で 8.02 fs 周期で繰り返すパルス列の発生に成功した【論文[9], 招待講演[4,5]】。この結果は、本 OFG が実現可能であることを強く支持する。

- ② 波長 1.0  $\mu\text{m}$  を基本波光とする第 5 次高調波までのハーモニクス発生と振幅・位相制御に成功。

全エネルギー 200 mJ を有すナノ秒パルスレーザー（パルス幅：10 ns）の基本波から第 5 次高調波までの同軸発生を達成した。さらに、提案・構築した振幅制御装置を用いてハーモニクスを空間的に分離することなく同軸上にて任意の振幅形状の生成に成功した【学会発表[1-3]】。続いて、2 種類の媒質からなる位相制御装置を用いて任意のスペクトル位相を生成できることを示した。

- ③ ヨウ素安定化狭線幅半導体レーザー及び関連技術として光周波数コムの高機能化を達成。

OFG の周波数安定技術に必須の周波数安定化レーザーとして狭線幅半導体レーザーを用いたヨウ素安定化レーザーを新規に開発した【論文[2,5,8]】。この成果はこれまで比較的大型の固体レーザーで構築されていた装置の小型・堅牢化に貢献できた。また、周波数計測に必要な光周波数コムの波長変換技術を応用し、可視や中赤外といった様々な波長域での光周波数コムの開発とその分光応用を関連技術としてデモンストレーションした。これらの成果は光コム分野で高い評価を受けている【論文[1,3,4,6,7]】。

### 3. 研究成果

波長 1064 nm の注入同期型 Q-switched Nd:YAG レーザーから出力されるナノ秒パルス光を基本波光とし、非線形光学結晶(KDP, BBO 結晶)のセットを用いた倍波及び和周波発生による第 5 次高調波までのハーモニクスを同軸に発生させた。その結果、全エネルギー約 200 mJ（パルス幅：約 10 ns）の第 5 次高調波までのハーモニクス光の同軸発生を達成した。最も波長変換の難しい第 5 次高調波においても 5 mJ の出力が達成でき、振幅操作後も全体として百 mJ 級のエネルギーを有すハーモニクスが実現可能である。ハーモニクス発生装置構成と発生したビームを分光し撮影した写真を図 2 に示す。心配された波長変換後のビーム中心部の欠けが見られず良質な空間プロファイルを維持できている。

次に、提案した原理を用いた振幅・位相操作部を構築した。振幅制御(AM)部には複屈折媒質である水晶とロシオン偏光子のセットを、位相制御(PM)部には合成石英とフッ化カルシウムのプリズムペアを用い、それぞれを数十 nm の分解能を有す高精度自動ステージ上に設置した（図 2 写真）。

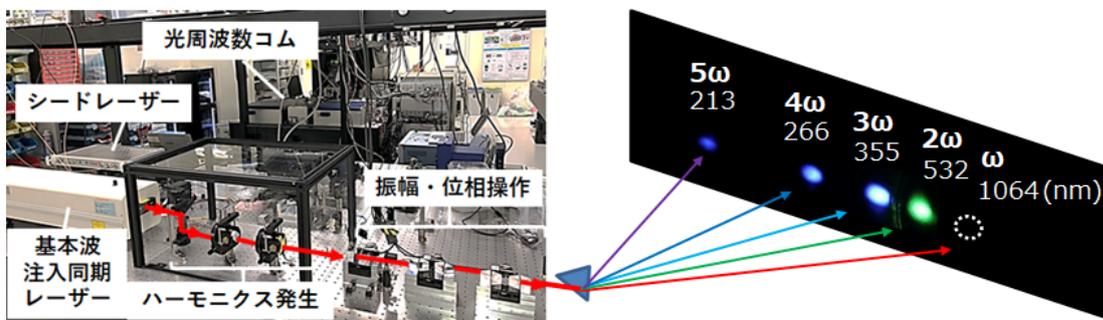


図 2. ナノ秒パルスレーザーを基本波とするハーモニクス発生系と提案した新規原理を実現する振幅・位相制御装置の装置写真，及び発生したビームの分光写真。

さらに、実際の実験条件を想定した振幅・位相制御の計算を行った。5本のハーモニックスの波長と偏光関係、並びに水晶の屈折率を用いてガウシアン型の振幅分布をターゲットとして探索を行った。その結果、初期条件では直交していた偏光がすべて平行に揃い、かつガウシアン分布を取る探索結果が得られた。この結果は結晶長掃引長さ数十 mm 程度の探索範囲を確保することで任意の振幅分布を探索できることを示している。

続いて、図3に提案する独自の位相制御手法を用いた位相操作の検討結果を示す。5本のハーモニックスの波長、並びに合成石英とフッ化カルシウムの屈折率を用いてフーリエ変換限界の位相分布をターゲットとして探索を行った。図3の横軸は合成石英の結晶長、縦軸はフッ化カルシウムの結晶長、色は規格化したパルスピーク強度を示している。探索した100 μm四方の中にフーリエ変換限界を示す1に近いピーク強度まで回復する点が数か所見つかっている。この結果は数mm程度の探索範囲を確保することで任意の位相分布を探索できることを示している。

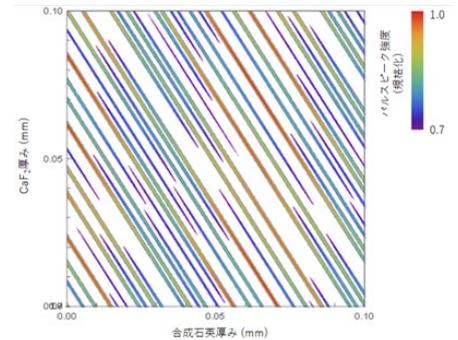


図3. 位相探索の検討結果.

さらに、提案した振幅操作部について発生させたハーモニックス光で実証実験を行った。5本のハーモニックスに対してガウシアン型の振幅分布をターゲットとして探索を行った結果を図4に示す。

図4(a)の横軸はステージの掃引長さ、縦軸は偏光子を透過する各ハーモニックス成分の光強度を示している。この結果から探索に用いる各周波数成分の周期 $L$ が実験的に求められた。図4(b)に初期条件、ターゲット、及び探索結果に対する振幅分布と偏光関係を示す。ここではターゲットとしてガウシアン分布の結果を示す。結果から結晶移動長21.529 mmにおいて最適値が探索されたことが分かる。図4(c)に探索された振幅を用いてフーリエ変換限界条件を想定し再構成した電場波形を示す。この結果は、電場波形でのパルス幅として460 asに達するガウシアン型光電場を、発生から振幅・位相操作まで一度も空間的に分離することなく生成できることを示している。

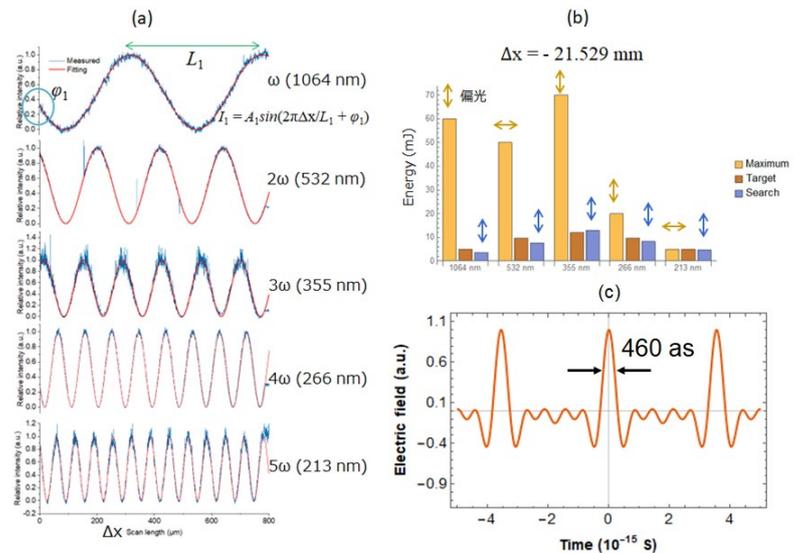


図4. (a)ステージの掃引長さに対する偏光子を透過する各ハーモニックス成分の光強度. (b) ガウシアン型の振幅分布をターゲットとした探索結果. (c)探索した振幅分布を用いて再構成した電場波形.

#### 4. 今後の展開

2023年ノーベル物理学賞が「電子のダイナミクスを研究するためのアト秒パルスの生成に関する実験手法」に貢献した3氏へ送られた。アト秒光源の基礎研究への寄与が評価された一方で他の受賞技術に見られるような画期的な社会実装技術がまだ途上であることも同時に明らかになった。既存のアト秒光源が社会実装されていく際に突き当たる壁(既存分散補償技術の限界)を打破できるのがまさに本研究で開発を目指したOFGである。研究の最終目標であった『真空中や固体の表面近傍でのみ行われてきたアト秒光電場と物質との相互作用が、固体の深部で行えることを世に示す。』ことを、今後さらに推進していきたい。

## 5. 発表実績

### 【論文】

- 1) 吉井一倫, “広帯域中赤外領域における光周波数コムとデュアルコム分光”, 光学, **53** 巻 2 号, 50-54 (2024).
- 2) Kazumichi Yoshii, Chaoyun Chen, Haruki Sakagami, and Feng-Lei Hong, “Hyperfine structure of molecular iodine measured using a light source with a laser linewidth at the megahertz level”, **OSA Continuum**, Vol. **4**, 1452-1460 (2021).
- 3) Hideki Kato, Yohei Sugiyama, Kazumichi Yoshii, and Feng-Lei Hong, “Spectral normalization in dual-comb spectroscopy of acetylene using a sealed gas cell and a liquid nitrogen trap”, **Journal of the Optical Society of America B**, Vol. **38**, 1024-1030 (2021).
- 4) Yuma Goji, Chaoyun Chen, Kohei Ikeda, Kazumichi Yoshii, and Feng-Lei Hong, “Towards generation of optical frequency comb in the short-wavelength visible region using periodically poled lithium niobate waveguides”, **Results in Optics**, Vol. **2**, 100035-1-3 (2021).
- 5) Haruki Sakagami, Kazumichi Yoshii, Takumi Kobayashi, and Feng-Lei Hong, “Absolute frequency and hyperfine structure of  $^{127}\text{I}_2$  transitions at 531.5 nm by precision spectroscopy using a narrow-linewidth diode laser”, **Journal of the Optical Society of America B**, Vol. **37**, 1027-1034 (2020).
- 6) Kousuke Ikeda, Yuko Yamada, Hideki Kato, Kazumichi Yoshii, Sho Okubo, Hajime Inaba and Feng-Lei Hong, “Development of 19.8 MHz repetition rate optical frequency combs for dual-comb spectroscopy”, **Japanese Journal of Applied Physics**, Vol. **59**, 028002-1-4 (2020).
- 7) Kohei Ikeda, Sho Okubo, Masato Wada, Ken Kashiwagi, Kazumichi Yoshii, Hajime Inaba, and Feng-Lei Hong, “Iodine-stabilized laser at telecom wavelength using dual-pitch periodically poled lithium niobate waveguide”, **Optics Express**, Vol. **28**, 2166-2178 (2020).
- 8) Kazumichi Yoshii, Haruki Sakagami, Hiroki Yamamoto, Sho Okubo, Hajime Inaba, and Feng-Lei Hong, “High-resolution spectroscopy and laser frequency stabilization using a narrow-linewidth planar-waveguide external cavity diode laser at 1063 nm,” **Optics Letters**, Vol. **45**(1), 129-132, (2020).
- 9) C. Zhang, K. Yoshii, D. Tregubov, C. Ohae, J. Zheng, M. Suzuki, K. Minoshima, M. Katsuragawa, “Optical technology for arbitrarily manipulating amplitudes and phases of coaxially propagating highly discrete spectra”, **Physical Review A**, Vol. **100**, 053836-1-10, (2019).

### 【学会発表】

- 1) 吉井一倫, 光本涼, ”ペタヘルツ帯域ハーモニクス光の全同軸振幅整形”, 第 71 回応用物理学会春季学術講演会, 23a-P02-10, 東京都市大学, (2024 年).
- 2) 吉井一倫, 光本涼, ”水晶くさびペアと偏光子を用いたペタヘルツ帯域ハーモニクス光の全同軸振幅整形”, レーザー学会学術講演会第 44 回年次大会, P01-18p-P-09, 日本科学未来館, (2024 年).
- 3) 吉井一倫, 光本涼, ”複屈折媒質と偏光子を用いたペタヘルツ帯域ハーモニクス光の全同軸振幅整形”, 日本光学会 Optics & Photonics Japan 2023, 28pPD9, 北海道大学, (2023 年).
- 4) (招待講演) 吉井一倫, ”ペタヘルツ帯域幅を有する離散スペクトルに機能する新規の振幅・位相同軸操作法”, 超高速光エレクトロニクス研究会 第7回研究会「超高速ダイナミクスを探る先端光源と計測技術」, 招待講演5, 徳島大学, (2023年).
- 5) (招待講演) 吉井一倫, ”離散スペクトルの新しい振幅・位相同軸操作法を用いた光ファンクションジェネレーター開発”, 第7回フォトニクスワークショップ@那覇「遍く拡がる光科学の可能性!」, 2-D, 沖縄県青年会館, (2022年).