スペクトル離散性の高い広帯域コヒーレント光源の 振幅および位相の任意操作

大饗 千彰^{1,2}, 吉井 一倫^{2,3}, Trivikramarao GAVARA³, 桂川 眞幸^{1,2,3}

¹電気通信大学 量子科学研究センター(〒182-8585 東京都調布市調布ヶ丘1-5-1)

²科学技術振興機構 ERATO美濃島知的光シンセサイザープロジェクト(〒182-8585 東京都調布市調布ヶ丘1-5-1)

³電気通信大学大学院 情報理工学研究科(〒182-8585 東京都調布市調布ヶ丘1-5-1)

Arbitrary Manipulation of Amplitude and Phase of a Broadband Coherent Radiation with a Highly-Discrete Spectrum

Chiaki OHAE,^{1,2} Kazumichi YOSHII,^{2,3} Trivikramarao GAVARA,³ and Masayuki KATSURAGAWA^{1,2,3}

¹Institute for Advanced Science, University of Electro-Communications, 1-5-1 Chofugaoka, Chofu, Tokyo 182-8585

²JST, ERATO, Minoshima Intelligent Optical Synthesizer Project, 1-5-1 Chofugaoka, Chofu, Tokyo 182-8585

³Graduate School of Informatics and Engineering, University of Electro-Communications, 1-5-1 Chofugaoka, Chofu, Tokyo 182-8585

(Received April 6, 2017)

We describe an interesting optical nature of a broadband coherent radiation consisting of a highly-discrete spectrum. We show that the amplitude and phase distributions among such highly-discrete spectral components can be almost arbitrarily manipulated by simply placing three fundamental optical elements (waveplate, polarizer, and dispersive plate) on an optical axis and then precisely controlling their thicknesses. We also briefly describe the physical mechanism behind such optical property. Furthermore, as a typical application of such optical nature, we demonstrate an optical waveform synthesis numerically and experimentally.

Key Words: Amplitude and Phase manipulation, Arbitrary optical waveform generation, High repetition rate

1. はじめに

1960年にレーザーが発明されて以来、レーザー技術のより高度化を追い求めて、光波を完全に制御しようとする研究が連綿と続けられてきた。近年の典型例である任意波形整形技術は、ピコ秒パルス¹⁾に始まり、フェムト秒パルス^{2,3)}、さらに、line-by-line制御⁴⁻⁸⁾へと展開された。また、Carrier Envelope Offset 周波数の制御技術は、2000年を前後して光周波数コム^{9,10)}として開花し、さらに絶対位相制御を加えた電場振幅波形整形^{8,11)}や超広帯域コヒーレント加算¹²⁾などの極限的光波制御技術としても派生した。このような光波技術の革新は、実際に様々な分野に応用され、多くの重要な知見をもたらした。化学反応の制御を狙いとした量子状態制御^{13,14)}や、高次非線形光学現象の制御¹⁵⁾、さらには、固体における誘電応答や電子輸送の超高速アト秒制御^{16,17)}など、分野を横断して、革新的な成果があまた報告されている。

これらの事実が示すように、光波制御技術の新しい可能性を探索することは、極めて本質的な課題である。この解説では、離散性の高いコヒーレントスペクトル群

(典型的にはスペクトル間隔が数十 THz以上)がもつ興味深い光学特性について紹介したい^{18,19)}。スペクトル群の相対振幅と位相が、少数の基本光学素子を光軸上に置き、実効的にその厚みを制御するだけで、ほぼ任意の状態に操作されることを示す。またこの性質の利用例として、光波形整形に用いた結果を数値計算と実験の双方から紹介する。この光波制御技術は、使用可能な波長帯域、高いビーム品質の保持、高エネルギーレーザーへの適用性、簡便性等の点でとても優れている。

2. 振幅・位相制御光学系の構成

Fig. 1 に(振幅および位相を任意に操作する)系の概略を示す。構成は極めてシンプルで、三つの基本光学素子のみから構成される。振幅と位相は独立に制御され、最初の二素子：波長板(1軸性の複屈折物質)と偏光子(y軸偏光が透過)で振幅を、最後の一素子：分散素子で位相を任意に制御する。ただし、波長板である1軸性の複屈折物質は厚み L_A と光学軸のy軸からの角度 θ_A が、分散素子はその厚み L_D が精密に調整可能である。

Fig. 1 Schematic illustration for arbitrary amplitude and phase manipulations by using three fundamental optical elements.

被制御対象とするのは、離散性が高く互いに位相コヒーレントなスペクトル群で構成されるレーザー光である。ここでは、典型例としてモード間隔： $\Delta\omega = 2\pi \times 124 \text{ THz}$ の5モードからなるハーモニクス ($2\pi \times 124 \text{ THz}$: $2417.68 \text{ nm} - 2\pi \times 620 \text{ THz}$: 483.54 nm) を取り上げる。この5モードが時間軸において形成する電場波形 $E(t)$ は

$$E(t) = \sum_{m=1}^5 a(\omega_m) \exp[i\{\omega_m t - \phi(\omega_m)\}] \quad (1)$$

と表される。 m はモード次数、 $\omega_m = m\Delta\omega$ 、 $\phi(\omega_m)$ 、 $a(\omega_m)$ はそれぞれ m 次モードの角周波数、位相、振幅である。明示はされていないが、絶対位相(キャリア・エンベロープ位相: CEP)も制御され得るとする^{8,20)}。また、ここでは、結果を見やすくするために、入射光は全てのモードにおいて、振幅が1、位相が0、偏光は y 軸に平行な直線偏光とした(Fig. 1)。そのように仮定しても議論の一般性は失われない。

Fig. 1の系で振幅と位相が任意に制御されることは、扱うレーザー光が単一波長であれば何ら不思議はない。興味深いのは対象となる光が広帯域に渡っても、構成スペクトルの離散性が高い場合には、同じ簡便な光学素子構成とその現実的な制御に基づいて、構成スペクトルモード間に、ほぼあらゆる振幅・位相分布をつくり出せることにある。

3. 振幅・位相制御のメカニズムおよび数値計算実験例

3.1 振幅制御

この配置で偏光子を透過する次数 m のモードの電場強度は、

$$I_m = |E_m^y|^2 = 1 - \sin^2 2\theta_A \sin^2(\Gamma_m/2) \quad (2)$$

と与えられる。ここで、 $\Gamma_m = (n_s(\omega_m) - n_t(\omega_m))\omega_m L_A / c$ とした。ただし、 n_s 、 n_t 、 c はそれぞれ波長板の遅軸(光学軸)、速軸の屈折率、および真空中の光速である。各スペクトルモードの電場強度は主として波長板の厚み L_A によって、また補助的に角度 θ_A によって制御される。上式に表されるように、透過光強度 I_m は厚み L_A の周期関数であり、スペクトルモードの離散性が高いと、その周期がモード間で大きく異なるので、モード間に様々な強度分布が作りだされる。

鋸歯波形を具体的なターゲットとして、それを実現する強度分布を探索した例を紹介する。波長板として水晶を、偏光子に MgF_2 偏光子(長さ: 57.2 mm)を用いて数値計算をおこなった。各モードの屈折率 $n_s(\omega_m)$ 、 $n_t(\omega_m)$ にはSellmeier方程式から得られる値²¹⁾を用いた。Fig. 2(a)の灰色バーは、5モードで鋸歯波形を実現するための望ましいスペクトル強度分布 $\{1, 1/4, 1/9, 1/16, 1/25\}$ を示している。これをターゲットとして、波長板の最適な厚み L_A 、および光学軸からの角度 θ_A を探索した。解の探索には数値最適化法の手法の一つである「Random search method」を用いた。目的関数にターゲット値からの偏差 $\sum_{m=1}^5 \delta_m^2$ をセットし、これが最小になる L_A 、 θ_A を探した。ここで、

$$\delta_m = \frac{\left(i_m^0 - \frac{I_m(L_A, \theta_A)}{I_m(L_A, \theta_A)} \right)}{i_m^0} \quad (3)$$

また、 i_m^0 は最大振幅で規格化されたターゲット振幅である。探索の結果、 $L_A = 11.447 \text{ mm}$ 、 $\theta_A = 45.00 \text{ degree}$ で最もターゲットに近い強度分布が見出された。Fig. 2(a)には得られた強度スペクトルを黒色バーで示している。ほぼ狙った強度分布が得られていることが分かる。

Fig. 2 Synthesis of a sawtooth optical waveform by manipulating spectral amplitudes and phases. (a) The target (gray bars) and explored (dark gray bars) intensity distributions and spectral phases before (circles) and after (solid circles) phase manipulation. (b) Target (bold gray) and synthesized (black) optical field waveforms.

3.2 位相制御

次に位相制御について述べる。スペクトル位相は、対象としている離散スペクトル群が5モードから成るので、原理的に高々4次までの分散項を用いて、

$$\phi(\omega_m) = \sum_{k=2}^4 \{\Phi_k L_p (m\Delta\omega)^k\} \quad (4)$$

と表すことができる。ただし、ここでは0次と1次の項は組み入れていない。位相操作として、分散制御に主たる関心があるので、それに関与する2次以上を残している。また、位相は 2π の周期関数なので $\phi_k = \text{mod}[\phi_k L_p \Delta\omega^k, 2\pi]$ と置き換える。この表現を使うとスペクトル位相は簡潔に、

$$\phi'(\omega_m) = \phi_2 m^2 + \phi_3 m^3 + \phi_4 m^4 \quad (5)$$

と表される。

メカニズムは定性的には振幅制御の場合に似ている。対象とするスペクトル群の離散性が高いので、素子のわずかな厚みの変化に対して、分散の各次数がそれぞれ“独立に”大きく変化し、その様々な組合せが網羅されることが、一枚の分散媒質ではほぼ任意のスペクトル位相を形成できることの要点になっている。

位相制御の例として、Fig. 2(a)にやはり鋸波をターゲットとして探索したスペクトル位相の結果を示す。制御前のランダムな形状のスペクトル位相(i)から、目的としたフラットなスペクトル位相(ii)に良く制御されていることが分かる。

ここで、これらの振幅・位相制御が、波形整形を目的とした場合に、どれくらいの達成度に相当するのかを知るために、振幅操作で得られた振幅分布 (Fig. 2(a), 黒色バー) とこのスペクトル位相の双方を用いて電場波形を再構成した (Fig. 2(b) 細曲線)。振幅、及び位相のトータルの操作に対してターゲットとする繰り返し間隔8.06 fs の鋸歯波形 (灰色太線) と良い一致度 (相関係数: 0.9956) の電場波形が得られた。

電場波形制御は、正確には絶対位相の制御も必要であるが、絶対位相の制御は、離散スペクトル群の発生過程において、独立に制御することが可能である^{8,20)}。ここでは、議論を簡潔にするため、Fig. 1の位置(ii)において絶対位相が $\pi/2$ となるように制御したと設定した。

ところで、このように数値計算を実行してみると、最適解とほとんど遜色のない解が想像されるよりも極めて高い頻度で見つかるのに驚く。位相制御のメカニズムについて、もう少し踏み込んで議論してみたい。主たる理由は、位相が 2π の周期関数であることから、ターゲットになるスペクトル位相が無数に存在することにある。鋸歯波形を形成する場合の位相操作を例に説明してみる。付加すべきターゲット位相 p_m は、それと等価な位相が各スペクトルモードにおいて 2π の間隔で並び、全体としては格子状の点列を形成する。各モードにおいてどの格子点を選んでもスペクトル位相

は互いに等価であるが、そのスペクトル位相が含む高次分散項は格子点の選び方によって異なったものになる。ここで、スペクトル位相に含まれる各高次分散項は、スペクトルモードごとに成り立つ次の方程式をモード数個連立させて解くことで正確に知ることができる。

$$p_m + 2q_m\pi = \sum_{k=0}^4 \Phi_k L_p (m\Delta\omega)^k \quad (6)$$

ここで、 q_m は任意の整数。結果として、ターゲット位相 p_m を形成するための高次分散項は、たとえば、2次分散項および3次分散項をプロットした平面のFig. 3中に灰色点で表される格子点列を形成する (I は、 $q_m = 0$ の場合の解)。どの(解)格子点も等価なスペクトル位相を与えるので、結局、探索すべき独立な位相領域は $2\pi \times 2\pi$ の全領域から図に示される六角の領域に、およそ2ケタ劇的に狭められることになる。

近似解が頻繁に見出されるもう一つの理由は、解に許容される誤差がとても大きいことにある。ターゲットスペクトル位相にわずかな誤差を許容すると、高次分散項を与える解空間にも $2\pi^3$ の全領域に対して相対的に同程度の誤差が許容される。ただし、解空間の領域は上述のように格子点の数だけ実効的に縮小されるので、許容される誤差領域は、逆に格子点の数だけ実効的に拡大されることになる。例として、ターゲット位相 p_m に $\pm 0.5\%$, 1% , 2% の誤差を許容した際に許される解の領域を Fig. 3 に濃淡の灰色で示した。スペクトル位相に高々2%の誤差を許容すると、六角の単位胞解空間に対して相対的にとても広い葉巻形状の領域が解として許容

Fig. 3 Physical mechanism of phase manipulation. Dispersion term (ϕ_2, ϕ_3) corresponding to the target spectral phase, is shown as the black dot and other, equivalent, coefficients are indicated by red dots.

されることが分かる。

Fig. 3 中に、Fig. 2(a)でスペクトル位相を数値探索した結果、得られた最適解(星印)と、さらに、そこへ到る直近 600 μm の軌跡を示した。ここに見られるように、鋸歯波形を探索した結果の最適解は、実は、 $q_m = 0$ の場合の解 I の近傍ではなく、等価な別の格子点近傍に見いだされている。解の探索範囲が実効的に単位胞解空間に縮小され、かつ、同時に許容誤差が実効的に拡大される仕組みが、実際の探索において良く機能したことが分かる。

4. 実験

実際にFig. 1に相当する光学系を構築し、この原理に基づく振幅・位相制御実験を試みた。振幅および位相の操作に用いた水晶と合成石英の厚みは、およそ $\sim 10\ \mu\text{m}$ の精度で制御された。離散スペクトルで構成される広帯域コヒーレント光源には、単一周波数・連続発振レーザー光に光周波数三分割分周の技術^{20,22)}を適用することで発生させた、基本モード周波数125 THz (2.40 μm)の高調波光系列、5周波数成分($\omega_1 - \omega_5$)を用いた。基本的に前節までの議論において仮定された光源と同等のものである。Fig. 4(a)に用いた5周波数の高調波光系列のビームプロファイルが示されている。各スペクトル成分は空間的に分離されることなく全て同軸上に発生されているので、高いビーム品質と長時間に渡る安定な相互位相コヒーレンスが得られている。また、出力も全ての高調波光成分において数 mW以上が得られており、十分に様々な目的に利用可能なパワーであることが分かる。

振幅・位相制御実験としては最初の試みであったので、比較的シンプルな、時間領域において超高速パルス列を形成する振幅と位相、つまり、フラットに近い振幅分布(各スペクトルパワー： $> 7\ \text{mW}$)と完全にフラットなスペクトル位相をターゲットとする振幅・位相制御実験をおこなった。Fig. 4(b),(c)は、それぞれ、制御前、および、制御後のスペクトル強度分布とスペクトル位相²³⁾である。目的を十分に満足するスペクトル強度分布と位相が得られたことが分かる。また、ここで得られた振幅と位相をもとに再構成した電場強度波形をFig. 4(d)に描いた。点線は制御前の波形、太実線は振幅・位相制御後の波形、細実線はフーリエ変換限界(TL)を仮定して描いたパルス列波形である。ほぼ、TLの超高速パルス列が形成されたことが実験的に確認された。得られた電場強度波形のパルス幅は、1.59 fs(半値全幅)、パルス間隔は8.06 fsであった。これは、繰り返しレートでは125 THzに相当する。

この実験で用いた5周波数成分の高調波光系列は、相対位相はもとより絶対位相も長時間にわたり安定に保たれていることが実験的に確認されている。Fig. 4(d)で示されたのは電場強度波形であったが、前節までの数値計算実験で示されたような振幅(キャリア)波形を制御した電場波形整形も近い将来に実現可能だろう。

Fig. 4 Experimental results of waveform synthesis as an example of arbitrary amplitude and phase manipulations. (a) Beam profiles. Intensity and phase distributions (b) Before and (c) After manipulation. (d) Retrieved ultrafast pulsed waveform in the time domain.

5. まとめ

離散性が高いコヒーレントスペクトル群のもつ興味深い光学特性について述べた。スペクトル群の相対振幅と相対位相が三つの基本光学素子(波長板、偏光子、分散素子)を光軸上におき、その厚みを高精度に制御するだけでほぼ任意の状態に操作されることを説明した。さらにそのような解が極めて頻繁に現れ実用的な技術になること、また、その物理的メカニズムを簡潔に述べた。最後に、実際に波形整形に応用した例を、数値計算と実験の双方から示した。

ここで述べた手法はベクトル波形成などを目的とする偏光制御にも自然に拡張される²⁴⁾。また、この手法は各スペクトルモードを空間的に分離しないので、高いビーム品質が保持され、かつ外乱に対してロバストである。さらに、損傷閾値の高い光学部品のみで構成され、ジュールクラスの高エネルギーパルスレーザー光にも適用可能である。高次の非線形光学現象を扱う分野への利用もとても興味深い。

謝 辞

N. S. Suhaimi 博士, 中川 賢一 博士, 洪 鋒雷 博士, 美濃島 薫 博士には, ここで紹介した成果に密接に関係する一連の研究において様々な協力をいただきました。感謝いたします。また, 本研究の一部は科学研究費補助金 基盤研究A, No. 24244065, および, 科学技術振興機構, ERATO美濃島知のシンセサイザープロジェクト (JST ERATO Grant Number JPMJER1304) の支援によっておこなわれました。

参考文献

- 1) C. Froehly, B. Colombeau, and M. Vampouille: *Progress in Optics*, **20** (1983) 63.
- 2) A. M. Weiner: *Rev. Sci. Instrum.* **71** (2000) 1929.
- 3) N. K. Fontaine, R. P. Scott, L. Zhou, F. M. Soares, J. P. Heritage, and S. J. B. Yoo: *Nat. Photonics* **4** (2010) 248.
- 4) K. Takiguchi, K. Okamoto, I. Kominato, H. Takahashi, and T. Shibata: *Electron. Lett.* **40** (2004) 537.
- 5) S. T. Cundiff and A. M. Weiner: *Nat. Photonics* **4** (2010) 760.
- 6) K. R. Pandiri, T. Suzuki, A. Suda, K. Midorikawa, and M. Katsuragawa: *Opt. Express* **18** (2010) 732.
- 7) K. R. Pandiri and M. Katsuragawa: *New J. Phys.* **13** (2011) 023030-1-8.
- 8) H.-S. Chan, Z.-M. Hsieh, W.-H. Liang, A. H. Kung, C.-K. Lee, C.-J. Lai, R.-P. Pan, and L.-H. Peng: *Science* **331** (2011) 1165.
- 9) Th. Udem, J. Reichert, R. Holzwarth, and T. W. Hänsch: *Phys. Rev. Lett.* **82** (1999) 3568.
- 10) D. J. Jones, S. A. Diddams, J. K. Ranka, A. Stentz, R. S. Windeler, J. L. Hall, and S. T. Cundiff: *Science* **288** (2000) 635.
- 11) E. Goulielmakis, M. Uiberacker, R. Kienberger, A. Baltuska, V. Yakovlev, A. Scrinzi, Th. Westerwalbesloh, U. Kleineberg, U. Heinzmann, M. Drescher, *et al.*: *Science* **305** (2004) 1267.
- 12) A. Wirth, M. Th. Hassan, I. Grguraš, J. Gagnon, A. Moulet, T. T. Luu, S. Pabst, R. Santra, Z. A. Alahmed, A. M. Azzeer, *et al.*: *Science* **334** (2011) 195.
- 13) M. Shapiro and P. Brumer: *Rep. Prog. Phys.* **66** (2003) 859.
- 14) C. Brif, R. Chakrabarti, and H. Rabitz: *New J. Phys.* **12** (2010) 075008-1-68.
- 15) R. Bartels, S. Backus, E. Zeek, L. Misoguti, G. Vdovin, I. P. Christov, M. M. Murnane, and H. C. Kapteyn: *Nature* **406** (2000) 164.
- 16) A. Schiffrin, T. P. Colberg, N. Karpowicz, V. Apalkov, D. Gerster, S. Mühlbrandt, M. Korbman, J. Reichert, M. Schultze, S. Holzner, *et al.*: *Nature* **493** (2013) 70.
- 17) M. Schultze, E. M. Bothschafter, A. Sommer, S. Holzner, W. Schweinberger, M. Fiess, M. Hofstetter, R. Kienberger, V. Apalkov, V. S. Yakovlev, *et al.*: *Nature* **493** (2013) 75.
- 18) M. Katsuragawa and K. Yoshii: *Phys. Rev. A*, **95** (2017) 033846.
- 19) K. Yoshii, J. K. Anthony, and M. Katsuragawa: *Light Science and Application* **2** (2013) e58.
- 20) N. S. Suhaimi, C. Ohae, T. Gavara, K. Nakagawa, F.-L. Hong, and M. Katsuragawa: *Opt. Lett.* **40** (2015) 5802.
- 21) G. Ghosh: *Opt. Commun.* **163** (1999) 95.
- 22) C. Ohae, N. S. Suhaimi, T. Gavara, K. Nakagawa, F.-L. Hong, and M. Katsuragawa: *レーザー研究* **43** (2015) 517.
- 23) T. Suzuki, N. Sawayama, and M. Katsuragawa: *Opt. Lett.* **33** (2008) 2809.
- 24) M. Nomura: Master thesis, University of Electro-Communications, Tokyo, Japan (2016).