

# キャリアエンベロープ位相制御による光電場の時間波形制御

欠端 雅之・小林 洋平・鳥塚 健二

## Carrier-Envelope Phase Control and Optical-Field Shaping

Masayuki KAKEHATA, Yohei KOBAYASHI and Kenji TORIZUKA

Carrier-envelope phase stabilization is a way to control the optical-field shape. Optical field controlled high-intensity laser system based on carrier-envelope phase stabilized chirped pulse amplification system and pulse shaping/carrier-envelope phase shifter is reported. The carrier-envelope phase shifter using a pulse shaping device that control the spectral phase is described. A multi-color phase stabilized optical parametric oscillator developed for Fourier synthesis of optical field is also reported. The prospect to Fourier synthesis of optical field and the stability of the developed optical parametric oscillator system enough to demonstrate Fourier synthesis of optical field are described.

**Key words:** ultrafast laser, carrier-envelope phase, phase control, pulse shaping, Fourier synthesis

近年、非線形光学現象の精密制御、また分散補償技術の高度化等により、パルス幅が中心光周波数の数サイクル程度まで光パルスの短パルス化が進んでいる<sup>1-3)</sup>。また、チャープパルス増幅技術により、多光子過程の現象を誘起するに十分なピーク強度を有するパルスを比較的容易に発生することが可能となった。高いピーク強度をもつ数サイクルの光パルスでは<sup>4)</sup>、パルスの包絡線(エンベロープ)に対する光電場振動(キャリア)の位相であるキャリアエンベロープ位相(carrier-envelope phase: CEP)は、ある条件では光と媒質との相互作用の結果に影響を与える。例えば、トンネルイオン化における電子の運動方向<sup>5)</sup>、高次高調波スペクトル<sup>6)</sup>などがあげられ、高次高調波によるアト秒パルスの発生<sup>7)</sup>や計測応用<sup>8-10)</sup>にとって CEP 制御が今後重要になると考えられる。

CEP 制御技術研究のひとつの契機は、モード同期レーザー発振器パルス列の縦モードが光周波数コムとして利用でき<sup>11)</sup>、縦モードを制御するためにパルス列間での CEP の変化量であるキャリアエンベロープオフセット位相(carrier-envelope offset phase: CEO phase)を制御する

技術が光周波数標準を目指した研究所で開発されたことであった。以降、急速に多くの実験研究が行われ<sup>12,13)</sup>、現在では発振器の高精度な CEO 制御のみならず<sup>14)</sup>、増幅器やパラメトリック増幅システムでの CEP 安定化が実現されている<sup>6,15-18)</sup>。

CEP を安定化させたレーザーは、正確に同じ光電場波形を発生できる。従来のパルスエンベロープ制御での波形整形技術<sup>19)</sup>から、パルスエンベロープと内部の光位相を含む光電場波形の制御へと展開が可能である<sup>20)</sup>。また、CEP 安定化が行われたパルスを光電場のフーリエ合成に用いれば、スペクトル幅のフーリエ変換で決まる光パルスエンベロープ幅と内部のキャリアという形式を超えた光電場波形の制御が可能になると期待される<sup>21,22)</sup>。

本稿では、CEP の安定化・制御の原理を説明し、CEP 安定化増幅システムと波形整形器・CEP シフターの組み合わせによる光電場波形制御、および光電場波形のフーリエ合成を目的とした位相同期光パラメトリック発振器の結果について、筆者らの研究を中心に報告する。

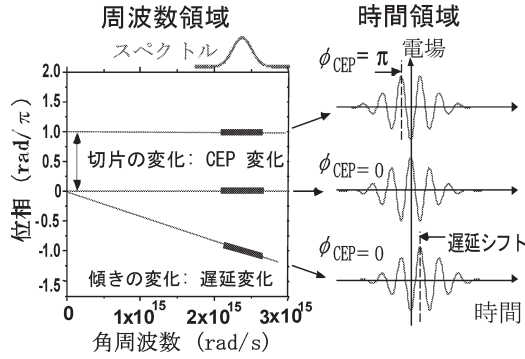


図1 CEP, 時間遅延のスペクトル領域と時間領域の関係。

## 1. CEP, CEO の説明

### 1.1 1個の光パルスの CEP: 時間領域とスペクトル領域の関係

CEP は, 時間領域でパルスの包絡線に対する光電場の相対的な位相を指す<sup>4,23,24</sup>. 数サイクルの光電場しか含まない短パルスでは, エンベロープが同じであっても, CEP により瞬時電場強度のピーク値が異なる.

CEP が  $\phi_{\text{CEP}}$  であるパルスの光電場波形は次式のように表される.

$$E(t) = A(t) \cos(\omega_c t + \phi_{\text{CEP}}) \quad (1)$$

エンベロープピークに対して時間が負の方向にキャリアがシフトする場合に, CEP が正となるように符号をとっている. こうすることで CEO 位相と CEO 周波数の符号が矛盾しない<sup>23,24</sup>. スペクトル領域ではフーリエ変換により以下のように表される.

$$E(\omega) = (1/2) \{ A(\omega + \omega_c) + A(\omega - \omega_c) \} \exp(j\phi_{\text{CEP}})$$

ここで,  $A(\omega)$  はパルスエンベロープ  $A(t)$  のフーリエ変換対でありスペクトル形状に相当する. フーリエ変換限界のパルスでは ( $t$  の二次以上の位相項がない場合), スペクトル位相が周波数によらない定数  $\phi_{\text{CEP}}$  になる. 図1のようにスペクトル位相を周波数に対してプロットした場合, 切片が CEP に対応する. CEP の変化は直線が上下に平行移動することに対応する<sup>25</sup>.

フーリエ変換限界パルスでない場合, CEP は簡単には定義できない. しかし, スペクトル位相の上下方向の平行移動によって, パルス包絡線内部の電界位相はシフトする. なお, 通常の短パルスの位相計測方法 (SPIDER<sup>26</sup>) などでは CEP の情報を計測できない.

### 1.2 分散媒質透過による CEP のシフト

分散媒質をパルスが伝搬すると, 光電場の波は位相速度で伝搬し, パルスのエンベロープが群速度で伝搬するた

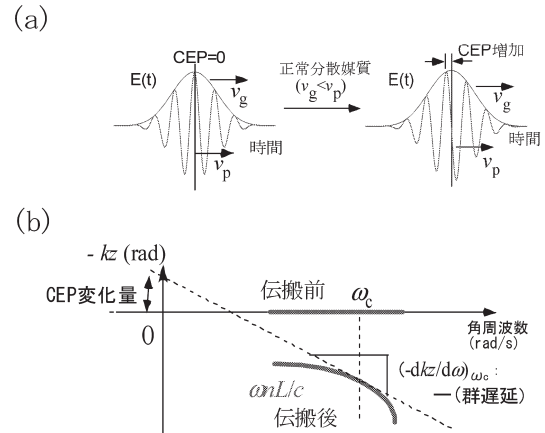


図2 分散媒質の伝搬による CEP の変化. (a) 時間領域, (b) 周波数領域.

め, 図2のように伝搬とともに CEP が変化する. 伝搬後のパルスは  $E(t, z) = A(t) \cos(\omega_c t - kz)$  である ( $k = 2\pi n/\lambda$ ,  $n$  は屈折率). 位相速度  $v_p = n/c$ , 群速度  $v_g = c/(n - dn/d\lambda)$  であり, 正常分散領域では  $v_p > v_g$  であるので, 距離  $L$  伝搬後エンベロープがキャリアに対して遅れ CEP は増大する. CEP の変化量は  $2\pi L (dn/d\lambda)$  であり, 逆に CEP が  $2\pi$  シフトする (もとに戻る) 距離は  $1/(dn/d\lambda)$  である. 波長 800 nm において  $\text{SiO}_2$  では  $58 \mu\text{m}$ , 空気では  $157 \text{ mm}$  である.

位相-角周波数のプロット上で表すと, 分散媒質では伝搬後の位相は曲線となる (図2 (b)). 中心周波数における傾きが平均的群遅延に相当し, 中心周波数で引いた接線の切片が伝搬後の CEP シフト量に相当する. スペクトル幅が広くかつ媒質の通過量変化が大きい場合には, 伝搬後の位相が直線からずれてパルスエンベロープが歪み, CEP シフト量が一次近似からずれる<sup>27</sup>. パルスエンベロープを保ち遅延と独立に CEP シフトを行うために, 後述する波形整形器を用いた CEP シフトの方法<sup>20</sup>) などが重要となる.

### 1.3 モード同期レーザーパルス列間の CEP 変化と周波数コム<sup>11-13,23,24</sup>

フェムト秒光パルス列を発生するモード同期レーザー共振器内部ではパルスが1往復するたびに, 群速度で決まる群位相変化  $\phi_g$  と中心周波数  $f_c$  の光電場の位相速度で決まる位相変化  $\phi_p$  の差だけ CEP が変化する ( $f_c = \omega_c/2\pi$ ). CEP の変化量  $\Delta\phi$  を  $0 \sim 2\pi$  の範囲で定義すると, 剰余関数 mod を使って,  $\Delta\phi = (\phi_g - \phi_p) \text{ mod } 2\pi$  となる.  $\Delta\phi$  は CEO 位相とよばれる.

時間領域で CEO 位相を考える. 図3に示すように, キャリヤー周波数  $f_c$  とパルス繰り返し周波数  $f_{\text{rep}}$  との比に,

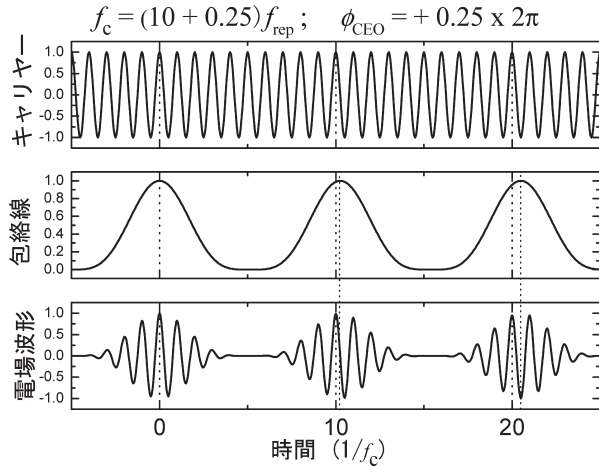


図3 時間領域での CEO 位相の説明.

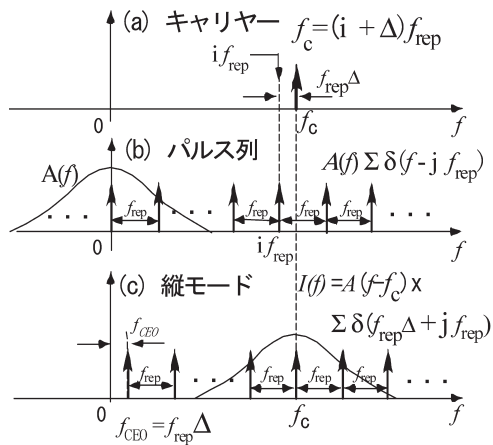


図4 キャリヤーエンベロープオフセット周波数の説明.

CEO 位相が依存する。一般的に  $f_c = (i + \Delta)f_{\text{rep}}$  と表される場合 ( $i$  はある自然数,  $\Delta$  は実数,  $0 \leq \Delta < 1$ ), 時間領域 CEO 位相は  $\phi_{\text{CEO}} = 2\pi\Delta$  となることがわかる。

時間領域ではキャリアーとエンベロープパルス列の積で表されるので, 周波数領域ではキャリアーの周波数成分  $\delta(f - f_c)$  と繰り返しの周波数成分  $A(f) \sum \delta(f - j f_{\text{rep}})$  の畳み込みとなる ( $A(f)$  はパルスエンベロープのフーリエ変換,  $\delta$  はデルタ関数,  $j$  は整数,  $\omega = 2\pi f$ ).  $f_c = (i + \Delta)f_{\text{rep}}$  より, 縦モード周波数は  $f_j = f_{\text{rep}}\Delta + j f_{\text{rep}}$  となる。ここで縦モードの  $f_{\text{rep}}$  の整数倍からのずれを CEO 周波数  $f_{\text{CEO}} \equiv f_{\text{rep}}\Delta$  として定義する。時間領域での  $\phi_{\text{CEO}} = 2\pi\Delta$  の関係より  $\phi_{\text{CEO}} = 2\pi(f_{\text{CEO}}/f_{\text{rep}})$  が導かれ, 縦モードは  $f_{\text{rep}}$  間隔で並んでいるが全体が  $f_{\text{CEO}}$  だけシフトしている (図4)。またこれは, 周波数  $f_c$  の連続波を周波数  $f_{\text{rep}}$  で振幅変調し,  $f_c$  を中心に  $f_{\text{rep}}$  間隔のサイドバンドが発生した結果とも解釈できる。

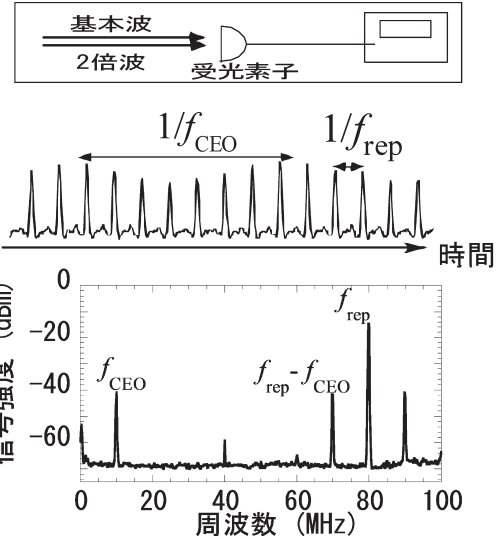


図5 キャリヤーエンベロープオフセット周波数の計測方法.

レーザー共振器の縦モード間隔を考えると, モード同期状態でない場合は媒質の分散により等間隔ではない。しかし, モード同期状態では, 共振器 1 往復での高次分散がゼロというパルスエンベロープが安定に保たれる条件が (非線形等により) 成立し, 縦モード間隔が一定になる。

## 2. CEO, CEP の計測・制御方法

### 2.1 CEO の計測・制御方法

はじめて行われた CEO 位相の計測は, 連続する 2 つのパルスのフリンジ分解相互相関信号を計測したものであった<sup>28)</sup>。その後マイクロストラクチャーファイバーにより<sup>29,30)</sup>, 1 オクターブを超えるスペクトル発生が実現し, 計測・制御技術と結びついた<sup>12,13)</sup>。

モード同期パルス列の基本波と 2 倍波 (あるいは 2 倍波と 3 倍波) が同じ周波数成分を有する場合に, それらの信号を 1 つの受光素子で受け時間領域で観測すると, 基本波と 2 倍波の干渉強度が CEP の値に依存して変化するため周波数  $f_{\text{CEO}}$  の強度変調を受けたパルス列となる (図5)。スペクトルアナライザーで  $f_{\text{rep}}$  と  $f_{\text{CEO}}$  成分が観測される。周波数領域では基本波の縦モード  $f_\omega = f_{\text{CEO}} + n \times f_{\text{rep}}$  と 2 倍波の縦モード  $f_{2\omega} = 2f_{\text{CEO}} + m \times f_{\text{rep}}$  のビート成分を観測していると考えてもよい。このように自分自身とその高調波との干渉を観測する方法は, 自己参照型計測法 (self-referencing method),  $f - 2f$  干渉計測などとよばれている<sup>11)</sup>。一般に共振器内のゆらぎのために  $f_{\text{rep}}$  と  $f_{\text{CEO}}$  の両者にゆらぎがあるが,  $f_{\text{rep}}$  や  $f_{\text{CEO}}$  を基準周波数に位相同期制御して CEO 位相の安定化が行われる。 $f_{\text{CEO}} = 0$  に制御すればすべてのパルスが同じ CEP をもち,  $f_{\text{CEO}} = f_{\text{rep}}/n$  とすれ

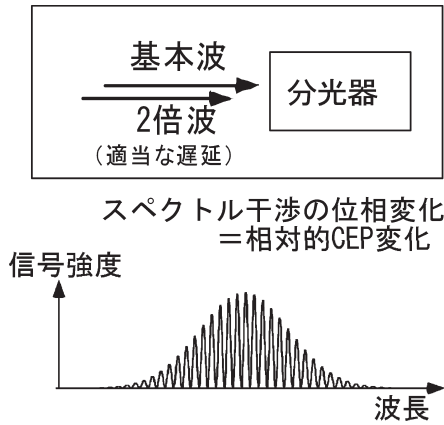


図6 相対的 CEP の単一ショット計測方法.

ば、 $n$  パルスごとに同じ CEP をもつパルスが発生する。

### 2.2 相対的 CEP の単一ショット計測方法

増幅パルスのように繰り返しが低く、強度ゆらぎを伴う場合、CEP の相対的な値を単一ショット計測する方法について説明する。測定値は真の CEP 値から未知の定数だけずれているので、「相対的」とよんでいる。

広帯域スペクトルの  $n$  次高調波 (例えば 2 倍波と 3 倍波) のスペクトル位相は、基本波 CEP の  $n$  倍 (2 倍, 3 倍) の成分 (一般には定数のずれも含む) を有している。これらのスペクトル成分に重なりがあれば成分間の干渉が生じ、位相差に応じて強度が変化する<sup>31)</sup>。さらに、2つの成分間に時間遅延をつけばスペクトル干渉 (SI) を観測すれば、強度ゆらぎに影響されずにフリンジの相対位置から相対的 CEP の単一ショット計測が可能である<sup>32)</sup> (図 6)。なお、スペクトル干渉計測の方法と自己参照型 CEO 周波数計測方法は、時間領域とスペクトル領域の違いがあるが CEP の相対的な情報を得るという意味では同じである<sup>33)</sup>。

### 2.3 CEP の真の値の計測方法

ある場所における CEP の値を決定するには、焦点付近で生じる幾何学的位相変化の影響も考慮し<sup>34)</sup>、CEP に依存する物理現象を観測して測定・評価することが必要となる。これまで計測方法の提案があったが<sup>35,36)</sup>、CEP に依存した現象のはじめての実験的な報告は、数サイクルの高強度パルスによりイオン化されて空間的に反対方向に放出される電子個数の相関を計測したものであった<sup>5)</sup>。最近では高調波の変化<sup>6)</sup>、電子エネルギー分布の変化<sup>37)</sup>等により CEP が推定されている。また、媒質伝搬を避けるために表面での非線形光学過程を利用した計測方法も行われている<sup>38)</sup>。また一方で、発振器出力パルスを用いて観測される現象で CEP を評価する方法として、金属表面から放出される電子の信号や<sup>27,39)</sup>、半導体中での多光子遷移の干渉を

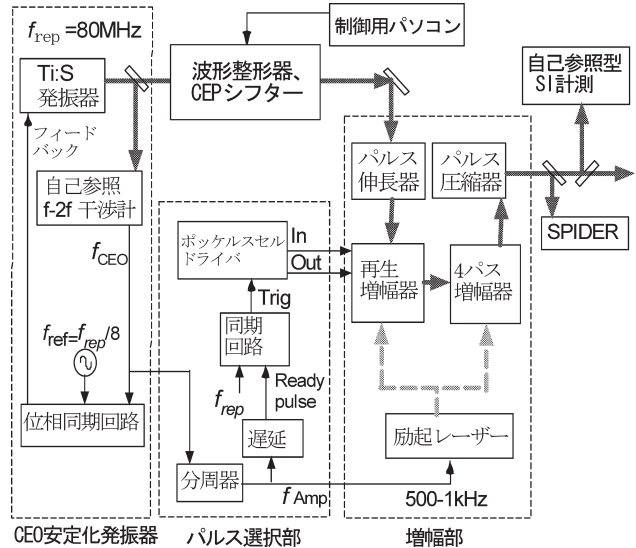


図7 光電場波形制御パルス発生システム構成図.

利用したものが報告されている<sup>40)</sup>。

## 3. 光電場波形制御チャープパルス増幅システム

### 3.1 装置の構成

CEP の安定化により光電場の位相がパルスエンベロープに対して固定された光電場波形が発生し、波形整形技術は光電場波形の整形へと展開できる。スペクトル位相の相対値制御は、従来のようにパルスエンベロープ制御として働き<sup>19)</sup>、スペクトル位相の値の制御は理想的な CEP 制御器として働く<sup>20,41)</sup>。これを実証するため、CEO 安定化増幅システムと波形整形器を組み合わせた (図 7)。CEO 安定化増幅システムは CEO 安定化発振器 (35 fs, 80 MHz)、パルス選択回路部、回折格子とシリンドリカルミラーによるパルス伸長器、再生増幅器、4パス増幅器、回折格子対のパルス圧縮器で構成される<sup>15)</sup>。発振器の CEO 周波数を  $f_{rep}/8$  に位相同期制御し、 $f_{CEO}$  の分周信号と  $f_{rep}$  の信号を用いたパルス選択方式で再生増幅器へのパルスを取り込む。波形整形器は液晶の空間位相変調器 (SLM-S640/12 Jenoptic) を使い、SFL03 媒質のプリズムと焦点距離 224 mm のシリンドリカルミラーを用いた結像光学系で構成した。増幅後のパルスエネルギーは 3.5 mJ でありパルス圧縮器後のエネルギーは 1 mJ であった。増幅後のスペクトル幅は 20 nm でパルス幅は 60 fs 程度であった。相対的な CEP 安定性や波形整形器による CEP 制御は自己参照型スペクトル干渉計測で評価し、スペクトル位相の相対的制御は SPIDER で評価した。

### 3.2 波形整形器を用いた CEP シフター特性<sup>42)</sup>

波形整形器の CEP シフター特性を、スペクトル干渉計



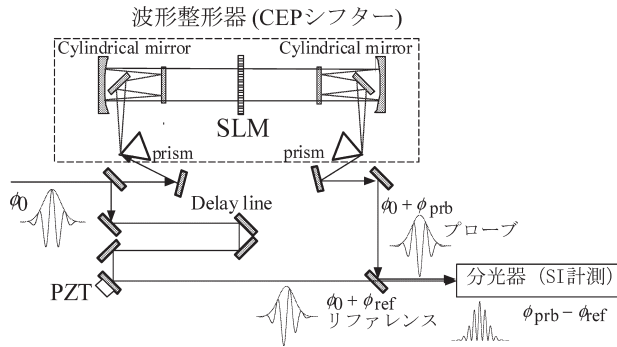


図8 CEP シフターの動作確認実験配置。

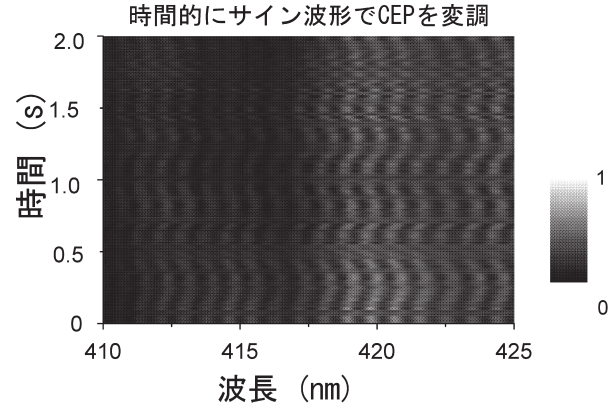


図10 CEP シフターで変調を与えた場合の自己参照 SI 信号。

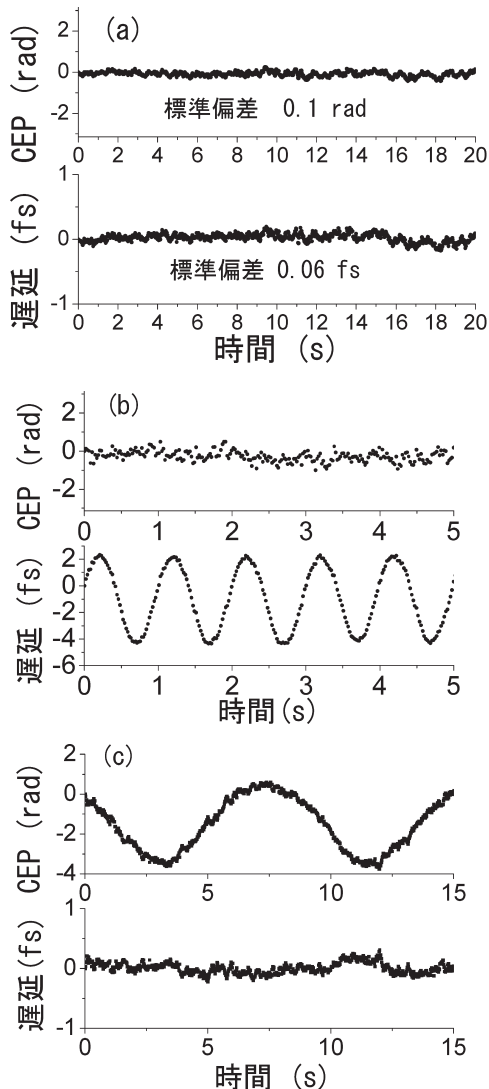


図9 CEP シフターの動作確認結果。(a) フリーランニング、(b) 遅延変化 (PZT)、(c) 波形整形器による CEP シフト。

測で評価した。発振器の出力パルスを図8に示した干渉計に入射した。干渉計の一方の光路には波形整形器を挿入し、挿入していない光路側をリファレンスパルスとし、両者の位相差の時間変化をスペクトル干渉計測で評価した。

両者の腕には分散の違いがあるが、スペクトル干渉で計測した位相差が時間遅延の一次の項を除いて定数になるように、波形整形器に位相を与えて動作開始の基準を選んだ。

波形整形器に与える信号は以下のようにした。1つのパターンは640ピクセルに対してある位相を与え、パルスの相対的な CEP や遅延を決める。64種類の位相パターンを周期的に与えながら、スペクトル干渉を20ミリ秒ごとに計測した。スペクトル干渉信号から相対位相変化を求め、位相-周波数平面で一次関数近似し、切片の変化から CEP 変化、傾きの変化から遅延変化を求めた。

干渉計の安定性を評価したところ、0.1 rad, 0.06 fs の安定性であった (図9 (a))。また、リファレンス側の遅延を piezoelectric 素子で変調したところ、piezoelectric の誤差範囲内で遅延のみが変化する結果が得られた (図9 (b))。そして、波形整形器を用いて位相の絶対値を変調した場合、与えた変化に等しい CEP の変化のみが観測された。以上より、波形整形器を用いて高精度に CEP と遅延の独立制御が行われたことがわかる。

### 3.3 増幅出力パルスの CEP シフト動作、パルスエンベロープ制御

上記の波形整形器を増幅システムに挿入し、CEP シフターおよび波形整形器としての動作を評価した。相対的な CEP を自己参照スペクトル干渉で計測し、相対的なスペクトル形状 (パルスエンベロープ) を SPIDER により計測した。自己参照スペクトル干渉のフリンジは相対的な CEP を示しており、波形整形器で CEP シフトを周期的に与えた結果を図10に示す。与えた2 Hz の CEP シフトが観測され波形整形器による CEP シフト動作が確認された。次に、波形整形器で二次の位相を与え SPIDER で計測した。与えた二次分散に対して測定値をプロットすると、ほぼ直線上に乗っている (図11)。以上から、CEP 安定化増幅システムと波形整形器の組み合わせにより、遅延を伴

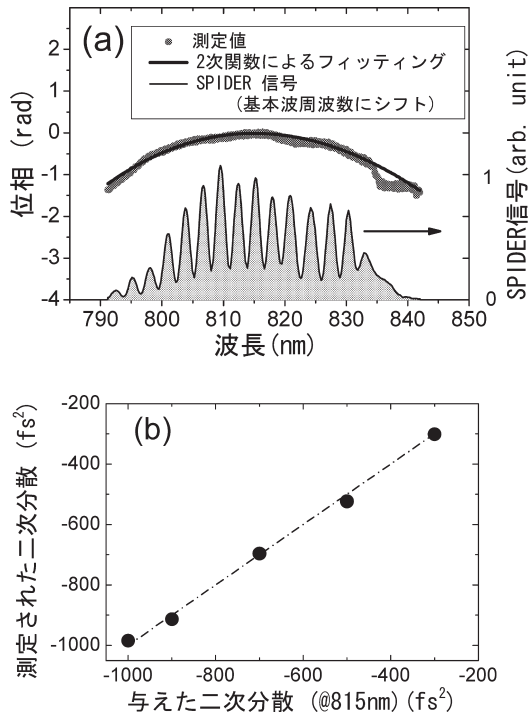


図 11 波形整形器による相対位相制御結果。

われない CEP シフト動作, およびパルスエンベロープ制御を確認し, 限られたスペクトル幅ではあるが, 光電場波形を制御できる増幅システムの原理を実証したといえる。

CEP 制御システムの安定性に影響を与えるものは, さまざまなゆらぎである<sup>43)</sup>。CEO, CEP を計測する部分での誤差が一番重要と考えられる。自己参照型  $f-2f$  干渉計に用いられる非線形ファイバーにおける (強度ゆらぎに起因する) 位相ゆらぎ<sup>44,45)</sup>, 干渉計の光路長のゆらぎなどがある。また, 単一ショットの自己参照型スペクトル干渉計測ではビームのポインティングゆらぎにより計測値に誤差が生じることが観測されている。CEP に依存した現象を観測し, その現象をもとにフィードバックすることが必要である<sup>37)</sup>。S/N 比の改善やフィードバックの方法などにより, 安定性の向上が進められている<sup>46,47)</sup>。

#### 4. 光電場波形のフーリエ合成

##### 4.1 フーリエ合成の原理

発振器レベルで任意の光電場波形を生成する方法について解説する。モード同期レーザーとは繰り返し周波数ごとに縦モードが並んで位相が同期しているレーザーであり, スペクトル幅の逆数程度のパルス幅が得られる。それぞれの縦モードの位相を自由にコントロールすればスペクトル幅内の任意波形が得られることになるが, スペクトルの広いチタンサファイアレーザーでこれを行っても  $\sim 200$  nm

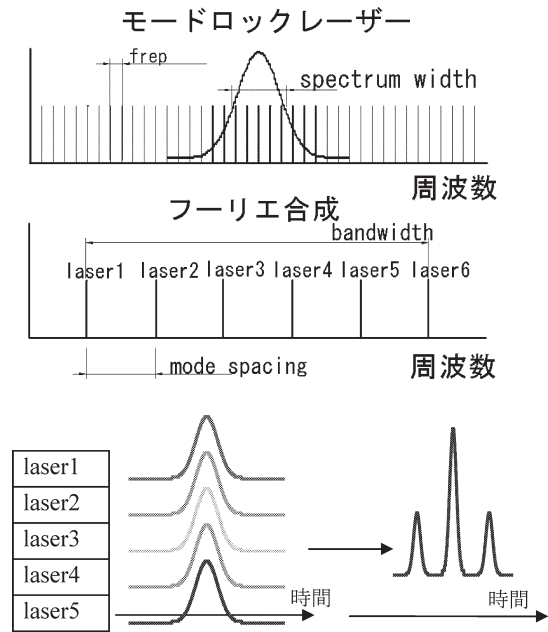


図 12 フーリエ合成の模式図。

程度の帯域に限られ, 正弦波が少し歪んだ程度の光電場となる。より自由度の高いシステムにするには, 縦モードをそれぞれ異なるレーザーから出力すればよい。図 12 に複数のレーザーをコヒーレントに重ねるフーリエ合成の模式図と, モード同期レーザーと本方式の周波数領域図を示す。すべての位相を適当に (電場のピークを揃えるように) 調整した場合に最小のパルス幅となり, これは用いるレーザーの光周波数帯域の逆数となるため, 単一のレーザー媒質で得られる最小パルス幅以下となる。また, レーザーの光周波数間隔の逆数がこのパルスの繰り返し周波数となる。このアイデアは, 1990 年に Hänsch, 1995 年に霜田によって提案されている<sup>21,22)</sup>。各レーザーの位相を自由にコントロールすることにより任意光電場が生成する。これは電気回路でよく用いられるファンクションジェネレーターの光版であり, 光の電場波形は正弦波から解き放たれる。

波長 2550 nm, 1275 nm, 850 nm, 638 nm, 510 nm, 425 nm の 6 つのフェムト秒パルスを合成したときに得られる光電場の計算例を図 13 に示す。これらの光周波数は 2550 nm パルスの光周波数を  $\omega$  とすると,  $\omega, 2\omega, 3\omega, 4\omega, 5\omega, 6\omega$  となっている。つまり, 整数倍の光周波数比をもち, モード間隔は一定となる。すべての成分のパルス電界強度を等しくして絶対光位相をゼロに揃えると, 図 13 (a) に示すようなアト秒パルス列ができる。このときのパルス幅は 300 アト秒である。また,  $\omega \sim 6\omega$  の振幅と位相をそれぞれ振幅 = (1, 1/2, 1/3, 1/4, 1/5, 1/6) と位相 = ( $-\pi/2, \pi/2, -\pi/2, \pi/2, -\pi/2, \pi/2$ ) と選ぶと, 図 13 (b) のような

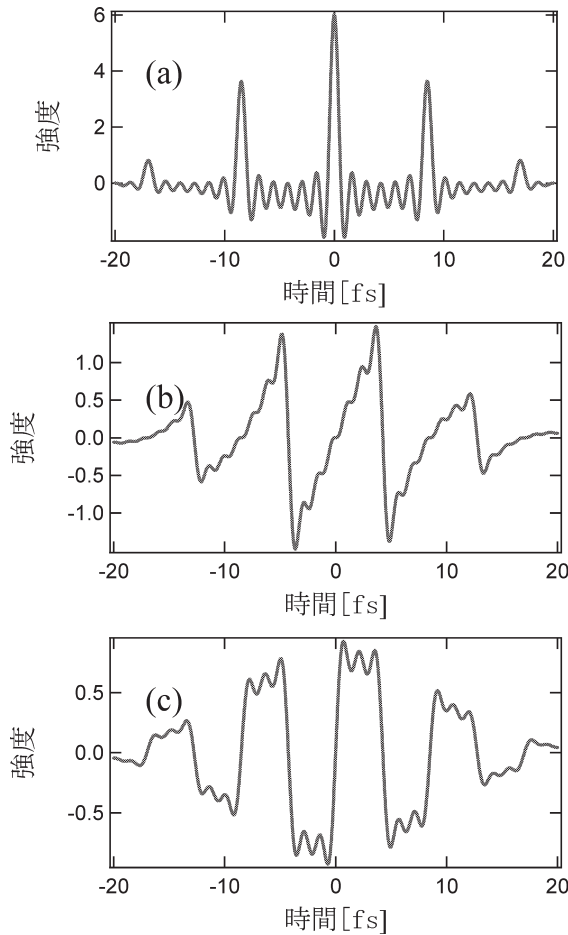


図13 6本の10フェムト秒パルスをフーリエ合成したときの電場波形の計算例。

こぎり波ができる。振幅 $= (1, 0, 1/3, 0, 1/5, 0)$ 、位相 $= (-\pi/2, \pi/2, -\pi/2, \pi/2, -\pi/2, \pi/2)$ としたときには、図13(c)のような矩形波が生成される。CWレーザーを6本用意するよりはフェムト秒パルスを6本使うほうが、パルスタイミング同期が必要になるがピーク強度が高いため波長変換の効率がよく、合成された光電場の強度も大きくなる。光電場に直接起因する高次の非線形光学効果の測定などの応用を考えると、フェムト秒パルスのコヒーレント合成のメリットは多い。

#### 4.2 フーリエ合成用フェムト秒パラメトリック発振器

これを実現するための重要な技術である、異なる波長の光源での光位相制御について解説する。フェムト秒パラメトリック発振器(OPO)は、ポンプ、シグナル、アイドラーがタイミング同期して出力するため有望な光源である。さらに、上記任意電場波形を実現するために、適当な光周波数比をもつパルスを出力することができる。筆者らは、チタンサファイアレーザーをポンプとして、光周波数を2:1に分割するフェムト秒パラメトリック発振器を作

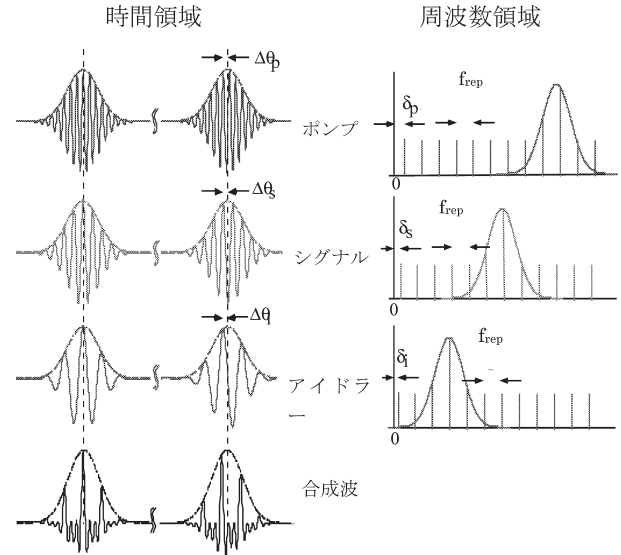


図14 OPOの光位相関係における時間-周波数対応。

製した。非線形結晶としてMgO-PPLNを用いると、発振器からシグナルとアイドラー、さらにはポンプ、シグナル、アイドラーの和周波、第二高調波がそれぞれ発生する。チタンサファイアレーザー(ポンプ)の波長は850 nmであり、この光周波数を $3\omega$ とすると、シグナルは1275 nm ( $2\omega$ )でアイドラーは2550 nm ( $\omega$ )となる。シグナルの第二高調波とポンプとアイドラーとの和周波はいずれも638 nm ( $4\omega$ )、ポンプとシグナルとの和周波は510 nm ( $5\omega$ )、ポンプの第二高調波は425 nm ( $6\omega$ )である。1つのOPOからこのようにタイミングの同期した6本のフェムト秒パルスが発生し、さらに光周波数比は1:2:3:4:5:6となる。ポンプであるチタンサファイアレーザーの平均パワーは1.2 W、パルス幅は50 fs程度、繰り返しは80 MHzである。このとき、シグナルのパワーは $\sim 100$  mW、その他和周波光や第二高調波はmW程度である。

ポンプ、シグナル、アイドラーの中心光周波数はおよそ3:2:1となっているが、フーリエ合成するためには、それぞれのCEPの関係を精密に制御する必要がある。そして、CEPの関係を制御するにはCEO周波数制御が必要である。

#### 4.3 OPOのCEP制御<sup>48,49)</sup>

OPOにおけるポンプ、シグナル、アイドラー間の光位相関係はどのように計測制御できるかを述べる。OPOの光位相関係における時間-周波数対応を図14に示す。時間領域では、ポンプのCEPのずれにシグナルとアイドラーが追従していく必要がある(図14左)。このとき光電場のピークの位置が同じになるように動かすために、ポンプ、シグナル、アイドラーのCEP変化を $\Delta\theta_p$ ,  $\Delta\theta_s$ ,  $\Delta\theta_i$ とす

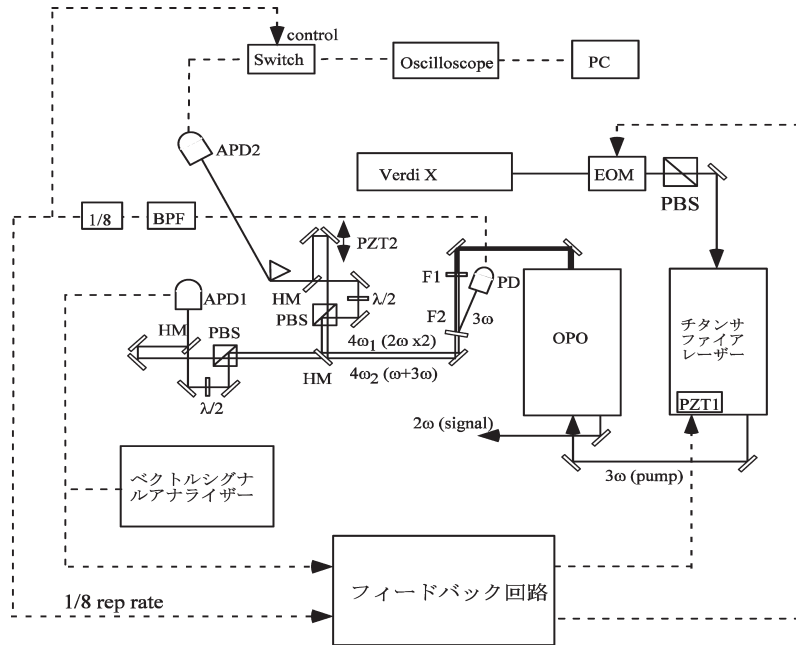


図 15 OPO の実験セットアップ。

ると  $\Delta\theta_p : \Delta\theta_s : \Delta\theta_i = 3 : 2 : 1$  となる必要がある。

このとき周波数領域で考えると、上記 CEP のずれと CEO 周波数との関係式からポンプ、シグナル、アイドラーの CEO 周波数をそれぞれ  $\delta_p$ ,  $\delta_s$ ,  $\delta_i$  とするとき、 $\delta_p : \delta_s : \delta_i = 3 : 2 : 1$  となる。三者の波長が大きく異なり、このままでは干渉を起こさず CEP の比較ができないため、波長変換を施し同じ波長にしてから、干渉をみて位相を制御する必要がある。OPO から同時に出力される色のうち、シグナルの第二高調波 ( $2\omega \times 2 = 4\omega_1$ )、ポンプとアイドラーとの和周波 ( $3\omega + \omega = 4\omega_2$ ) が同じ光周波数になる。これらを重ね合わせてビートをみることにより、三者の相対的光位相を観測することができる。ここでみえるビートの周波数は、相対的光位相のずれ方の周波数となる。例えばビート周波数が 0 Hz ならば、三者の相対的光位相は常に固定されていて、フーリエ合成された光電場の形は一定となる。ポンプ、シグナル、アイドラーの光周波数を  $f_p$ ,  $f_s$ ,  $f_i$  とすると、 $f_p = \delta_p + l \times f_{\text{rep}}$ ,  $f_s = \delta_s + m \times f_{\text{rep}}$ ,  $f_i = \delta_i + n \times f_{\text{rep}}$  と書ける。パラメトリック過程の条件により  $f_p = f_s + f_i$  があるため、 $4\omega_1$  と  $4\omega_2$  の光周波数差として現れるビート周波数は  $f_{\text{beat}} = |2f_s - (f_p + f_i)| = |(2\delta_p - 3\delta_s) + m' \times f_{\text{rep}}|$  と書ける。ここで  $m'$  は整数である。ビート周波数を制御することにより、3つのパルスの光位相関係を制御することができる。OPO が発振する範囲内で OPO とチタンサファイアレーザー共振器との共振器長を微妙に動かすと位相関係のみ変化し、ビート周波数を制御することができる。

図 15 に位相制御の実験配置図を示す。

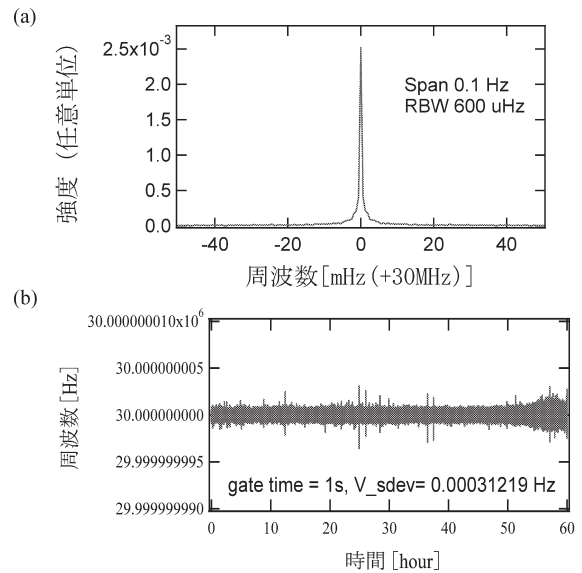


図 16 (a) 制御されたビート信号 (この場合 30 MHz にロックしている), (b) カウンターによるビート周波数のゆらぎ測定。

2つの  $4\omega$  パルスを同軸に重ね合わせて、ビートを APD で検出する。得られる RF 信号には、繰り返しとビートが含まれる。ビート信号をバンドパスフィルターで切り出し、参照信号との位相比較をする。誤差信号を共振器長にフィードバックする。参照信号は繰り返しの  $1/n$  に設定されていて、 $n$  パルスごとに位相関係の固定される同期をかけている。光周波数を音響光学素子でシフトさせることにより、ビートを 0 Hz にロックすることもできる。共振器長制御には、ピエゾや電気光学素子を用いている。電気



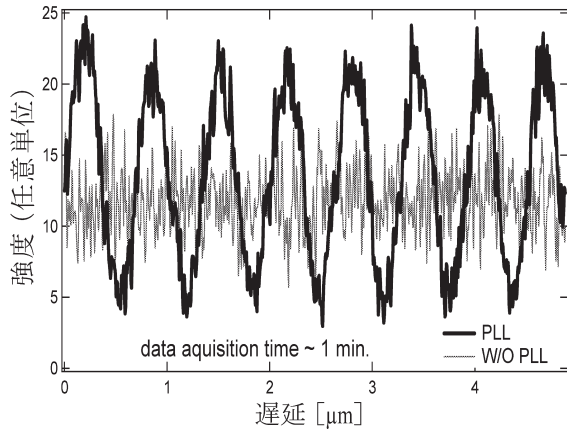


図17  $4\omega$  パルスの干渉測定.

光学素子はポンプ光の強度を変化させ、レーザー媒質の屈折率変化により高速で光路長を変化させることができる。図16(a)に、ロックされたビートのRFスペクトルを示す。

ビートの線幅は  $600 \mu\text{Hz}$  (分解能) である。これはポンプ、シグナル、アイドラーの縦モード間のビートであるから、縦モードの相対的光周波数 (数百 THz) が mHz レベルで制御されていることになる。パワースペクトル密度の  $10 \text{ mHz} \sim 1 \text{ MHz}$  の積分値は  $0.24 \text{ rad}$  であり、OPO から出力される6本のフェムト秒パルスは  $\lambda/30$  程度の位相誤差で制御されている。通常の干渉計程度の位相ゆらぎが、制御によって独立した光源で達成された。次に、光位相同期がどの程度長時間続くかをビートのカウンター測定で調べた。図16(b)に示すように、 $30 \text{ MHz}$  にロックされたビートは60時間の間でゆらぎ  $0.3 \text{ mHz}$  であった。十分長時間、光周波数関係が固定されていることがわかる。

次に、2つの  $4\omega$  パルスどうしの干渉を観測した。ビートを繰り返し周波数の整数分の1に制御すると、その周期ごとに位相関係が固定されるが、その周期でパルスを抜き出し干渉を観測した(図17)。位相同期をかけたときのみフリッジが観測され、位相関係が固定されているのがわかる。なお、これは位相同期のループ外での測定に相当する。

位相関係が常に固定されるDCロックも実現している。ポンプ、シグナル、アイドラーの位相関係が固定されていれば、それぞれの和周波、第二高調波も位相関係も固定されているため、フーリエ合成に必要な整数倍の光周波数比をもつ6本のフェムト秒パルスが実現したことになる。これで任意光電場を発生させることができるわけであるが、現在のところそれを観測する手段がない。高次の非線形光学効果を通して光電場強度を測定することが有力な候補で

あるため、今後、これらのパルスを増幅する必要がある。また、縦モード間隔が等しく、オフセット周波数関係も固定された  $400 \sim 2550 \text{ nm}$  のフェムト秒パルス発生は光周波数コムを広げた意義もあり、コムを用いた超高分解分光などの応用もあると考えられる。

## 5. 今後の展望

CEP安定化により光電場の操作が可能になり、光電場のフーリエ合成への道も開かれている状況にある。制御精度の向上、スペクトルの広帯域化、高エネルギー化など、今後改善すべき技術的な課題はあるが、光電場波形制御技術によってアト秒パルスの短パルス化<sup>50)</sup>、新しい計測や制御への発展が期待される。

本研究の一部は、原子力委員会の評価に基づき文部科学省原子力試験研究費により実施されたものである。また、本研究の一部は科学研究費補助金により遂行されたものである。

## 文 献

- 1) K. Yamane, Z. Zhang, K. Oka, R. Morita, M. Yamashita and A. Suguro: "Optical pulse compression to 3.4 fs in the monocycle region by feedback phase compensation," *Opt. Lett.*, **28** (2003) 2258-2260.
- 2) M. Yamashita, K. Yamane and R. Morita: "Quasi-automatic phase-control technique for chirp compensation of pulses with over-one-octave bandwidth—Generation of few- to mono-cycle optical pulses," *IEEE J. Sel. Top. Quantum Electron.*, **12** (2006) 213-222.
- 3) M. Y. Sheverdin, D. R. Walker, D. D. Yavuz, G. Y. Yin and S. E. Harris: "Generation of a single-cycle optical pulse," *Phys. Rev. Lett.*, **94** (2005) 033904.
- 4) T. Brabec and F. Krausz: "Intense few-cycle laser fields: Frontiers of nonlinear optics," *Rev. Mod. Phys.*, **72** (2000) 545-591.
- 5) G. G. Paulus, F. Grasbon, W. Walther, P. Villoresi, M. Nisoli, S. Stagira, E. Priori and S. De Silvestri: "Absolute-phase phenomena in photoionization with few-cycle laser pulses," *Nature*, **414** (2001) 182-184.
- 6) A. Baltuska, T. Udem, M. Uiberacker, M. Hentschel, E. Goulielmakis, C. Gohle, R. Holzwarth, V. S. Yakovlev, A. Scrinzi, T. W. Hänsch and F. Krausz: "Attosecond control of electric processes by intense light fields," *Nature*, **421** (2003) 611-615.
- 7) M. Hentschel, R. Kienberger, C. Spielmann, G. A. Reider, N. Milosevic, T. Brabec, P. Corkum, U. Heinzmann, M. Drescher and F. Krausz: "Attosecond metrology," *Nature*, **414** (2001) 509-513.
- 8) R. Kienberger, M. Hentschel, M. Uiberacker, C. Spielmann, M. Kitzler, A. Scrinzi, M. Wieland, T. Westerwalbesloh, U. Kleineberg, U. Heinzmann, M. Drescher and F. Krausz: "Steering attosecond electron wave packets with light," *Science*, **297** (2002) 1144-1148.
- 9) M. Drescher, M. Hentschel, R. Kienberger, M. Uiberacker,

- V. Yakovlev, A. Scrinzi, T. Westerwalbesloh, U. Kleineberg, U. Heinzmann and F. Krausz: "Time-resolved atomic inner-shell spectroscopy," *Nature*, **419** (2002) 803-807.
- 10) E. Goulielmakis, M. Uiberacker, R. Kienberger, A. Baltuška, V. Yakovlev, A. Scrinzi, T. Westerwalbesloh, U. Kleineberg, U. Heinzmann, M. Drescher and F. Krausz: "Direct measurement of light waves," *Science*, **305** (2004) 1267-1269.
  - 11) H. R. Telle, G. Steinmeyer, A. E. Stenger, D. H. Sutter and U. Keller: "Carrier-envelope offset phase control: A novel concept for absolute optical frequency measurement and ultrashort pulse generation," *Appl. Phys. B*, **69** (1999) 327-332.
  - 12) D. J. Jones, S. A. Diddams, J. K. Ranka, A. Stentz, R. S. Windeler, J. L. Hall and S. T. Cundiff: "Carrier-envelope phase control of femtosecond mode-locked lasers and direct optical frequency synthesis," *Science*, **288** (2000) 635-639.
  - 13) A. Apolonski, A. Poppe, G. Tempea, C. Spielmann, T. Udem, R. Holzwarth, T. W. Hänsch and F. Krausz: "Controlling the phase evolution of few-cycle light pulses," *Phys. Rev. Lett.*, **85** (2000) 740-743.
  - 14) T. M. Fortier, D. J. Jones, J. Ye, S. T. Cundiff and R. S. Windeler: "Long-term carrier-envelope phase coherence," *Opt. Lett.*, **27** (2002) 1436-1438.
  - 15) M. Kakehata, H. Takada, Y. Kobayashi, K. Torizuka, H. Takamiya, K. Nishijima, T. Homma, H. Takahashi, K. Okubo, S. Nakamura and Y. Koyamada: "Carrier-envelope phase stabilized chirped-pulse amplification system scalable to higher pulse energies," *Opt. Express*, **12** (2004) 2070-2080.
  - 16) A. Baltuška, T. Fuji and T. Kobayashi: "Controlling the carrier-envelope phase of ultrashort light pulses with optical parametric amplifiers," *Phys. Rev. Lett.*, **88** (2002) 133901-133904.
  - 17) C. P. Hauri, P. Shlup, G. Arisholm, J. Biegert and U. Keller: "Phase-preserving chirped-pulse optical parametric amplification to 17.3 fs directly from a Ti:sapphire oscillator," *Opt. Lett.*, **29** (2004) 1369-1371.
  - 18) R. T. Zinkstok, S. Witte, W. Hogervorst and K. S. E. Eikema: "High-power parametric amplification of 11.8-fs laser pulses with carrier-envelope phase control," *Opt. Lett.*, **30** (2005) 78-80.
  - 19) A. M. Weiner, D. E. Leaird, J. S. Patel and J. R. Wullert: "Programmable femtosecond pulse shaping by use of a multielement liquid-crystal phase modulator," *Opt. Lett.*, **15** (1990) 326-328.
  - 20) M. Kakehata, H. Takada, Y. Kobayashi, K. Torizuka, K. Nishijima, H. Takamiya, T. Homma and H. Takahashi: "Route to design electric fields of optical pulses: A combination of a pulse shaper and a carrier-envelope phase stabilized chirped-pulse amplifier system," *Ultrafast Phenomena XIV (Springer Series in Chemical Physics 79)* (Springer Verlag, Berlin, 2005) pp. 88-90.
  - 21) T. W. Hänsch: "A proposed sub-femtosecond pulse synthesizer using separate phase-locked laser oscillators," *Opt. Commun.*, **80** (1990) 71-75.
  - 22) K. Shimoda: "Theory and application of optical subharmonic oscillator," *Jpn. J. Appl. Phys.*, **34** (1995) 3566-3569.
  - 23) S. T. Cundiff: "Phase stabilization of ultrashort optical pulses," *J. Phys. D*, **35** (2002) R43-R59.
  - 24) S. T. Cundiff and J. Ye: "Femtosecond optical frequency combs," *Rev. Mod. Phys.*, **75** (2003) 325-342.
  - 25) A. W. Albrecht, J. D. Hybl, S. M. G. Faeder and D. M. Jonas: "Experimental distinction between phase shifts and time delays: Implications for femtosecond spectroscopy and coherent control of chemical reactions," *J. Chem. Phys.*, **111** (1999) 10934-10956.
  - 26) C. Iaconis and I. A. Walmsley: "Spectral phase interferometry for direct electric-field reconstruction of ultrashort optical pulses," *Opt. Lett.*, **23** (1998) 792-795.
  - 27) P. Dombi, Apolonski, C. Lemell, G. G. Paulus, M. Kakehata, R. Holzwarth, T. Udem, K. Torizuka, J. Burgdörfer, T. W. Hänsch and F. Krausz: "Direct measurement and analysis of the carrier-envelope phase in light pulses approaching the single-cycle regime," *New J. Phys.*, **6** (2004) 39.
  - 28) L. Xu, C. Spielmann, A. Poppe, T. Brabec and F. Krausz: "Route to phase control of ultrashort light pulses," *Opt. Lett.*, **21** (1996) 2008-2010.
  - 29) J. K. Ranka, R. S. Windeler and A. J. Stentz: "Visible continuum generation in air-silica microstructure optical fibers with anomalous dispersion at 800 nm," *Opt. Lett.*, **25** (2000) 25-27.
  - 30) T. A. Birks, J. C. Knight and P. S. Russell: "Endlessly single-mode photonic-crystal fiber," *Opt. Lett.*, **22** (1997) 961-963.
  - 31) M. Mehendale, S. A. Mitchell, J.-P. Likforman, D. M. Villeneuve and P. B. Corkum: "Method for single-shot measurement of the carrier envelope phase of a few-cycle laser pulse," *Opt. Lett.*, **25** (2000) 1672-1674.
  - 32) M. Kakehata, H. Takada, Y. Kobayashi, K. Torizuka, Y. Fujihira, T. Homma and H. Takahashi: "Single-shot measurement of the carrier-envelope phase changes by spectral interferometry," *Opt. Lett.*, **26** (2001) 1436-1438.
  - 33) Y. Fujihira, M. Kakehata, H. Takada, Y. Kobayashi, K. Torizuka, T. Homma and H. Takahashi: "White-light continuum generation for measurement of carrier-envelope phase changes of femtosecond laser pulses," *Rev. Laser Eng.*, **30** (2002) 462-467.
  - 34) F. Lindner, G. G. Paulus, H. Walther, A. Baltuška, E. Goulielmakis, M. Lezius and F. Krausz: "Gouy phase shift for few-cycle laser pulses," *Phys. Rev. Lett.*, **92** (2004) 113001.
  - 35) P. Dietrich, F. Krausz and P. B. Corkum: "Determining the absolute carrier phase of a few-cycle laser pulse," *Opt. Lett.*, **25** (2000) 16-18.
  - 36) M. Kakehata, Y. Kobayashi, H. Takada and K. Torizuka: "Single-shot measurement of a carrier-envelope phase by use of a time-dependent polarization pulse," *Opt. Lett.*, **27** (2002) 1247-1249.
  - 37) M. G. Schatzel, F. Lindner, G. G. Paulus, H. Walther, E. Goulielmakis, A. Baltuška, M. Lezius and F. Krausz: "Long-term stabilization of the carrier-envelope phase of few-cycle laser pulses," *Appl. Phys. B*, **79** (2004) 1021-1025.
  - 38) A. Ishizawa and H. Nakano: "Measurement of the true value of the carrier-envelope phase of a few-cycle laser pulse by the interference between second and third harmonics from the surface of a solid," *Jpn. J. Appl. Phys.*, **45** (2006) 4087-4089.
  - 39) A. Apolonski, P. Dombi, G. G. Paulus, M. Kakehata, R. Holzwarth, T. Udem, C. Lemell, K. Torizuka and J. Burgdörfer, T. W. Hänsch and F. Krausz: "Observation of light-phase-sensitive photoemission from a metal," *Phys. Rev. Lett.*, **92** (2004) 073902.
  - 40) T. M. Fortier, P. A. Roos, D. J. Jones, S. T. Cundiff, R. D. R. Bhat and J. E. Sipe: "Carrier-envelope phase-controlled quantum interference of injected photocurrents in semiconductors," *Phys. Rev. Lett.*, **92** (2004) 147403.
  - 41) M. Kakehata, H. Takada, Y. Kobayashi and K. Torizuka:

- “Generation of optical-field controlled high-intensity laser pulses,” *Proceeding of 7th AIST International Symposium on Photoreaction Control and Photofunctional Materials*, Tsukuba (2006), *J. Photochem. Photobiol. A*, **182** (2006) 220-224.
- 42) K. Nishijima, M. Kakehata, H. Takamiya, H. Takada, Y. Kobayashi, T. Homma, H. Takahashi and K. Torizuka: “Carrier-envelope phase shifter for electric-field shaping of optical pulses,” *電気学会論文誌 C*, **125** (2005) 1686-1693.
- 43) M. Kakehata, H. Takada, Y. Kobayashi, K. Torizuka, Y. Fujihira, T. Homma and H. Takahashi: “Measurements of carrier-envelope phase changes of 100-Hz amplified laser pulses,” *Appl. Phys. B*, **74**, Suppl. (2002) S43-S50.
- 44) T. M. Fortier, J. Ye, S. T. Cundiff and R. S. Windeler: “Nonlinear phase noise generated in air-silica microstructure fiber and its effect on carrier-envelope phase,” *Opt. Lett.*, **27** (2002) 445-447.
- 45) K. Okubo, S. Nakamura, Y. Koyamada, M. Kakehata, Y. Kobayashi, H. Takada, K. Torizuka, H. Takamiya, K. Nishijima, T. Homma and H. Takahashi: “Properties of amplitude-to-phase noise conversion in self-referencing method using microstructure fibers for carrier-envelope phase control,” *Proceedings of Advanced Solid-State Photonics 2004*, Trends in Optics and Photonics Series (TOPS), 94 (Santa Fe, 2004) pp. 170-175.
- 46) E. Gagnon, I. Thomann, A. Paul, A. L. Lytle, S. Backus, M. M. Murnane, H. C. Kapteyn and A. S. Sandhu: “Long-term carrier-envelope phase stability from a grating-based, chirped pulse amplifier,” *Opt. Lett.*, **31** (2006) 1866-1868.
- 47) C. Li, E. Moon, H. Mashiko, C. M. Nakamura, P. Ranitovic, C. M. Maharjan, C. L. Cocke, Z. Chang and G. G. Paulus: “Precision control of carrier-envelope phase in grating based chirped pulse amplifiers,” *Opt. Express*, **14** (2006) 11468-11476.
- 48) Y. Kobayashi, H. Takada, M. Kakehata and K. Torizuka: “Phase-coherent multicolor femtosecond pulse generation,” *Appl. Phys. Lett.*, **83** (2003) 839-841.
- 49) Y. Kobayashi, H. Takada, M. Kakehata and K. Torizuka: “Optical phase locking among femtosecond subharmonic pulses,” *Opt. Lett.*, **28** (2003) 2377-2379.
- 50) G. Sansone, E. Benedetti, F. Calegari, C. Vozzi, L. Avaldi, R. Flammini, L. Poletto, P. Villoresi, C. Altucci, R. Velotta, S. Stagira, S. De Silvestri and M. Nisoli: “Isolated single-cycle attosecond pulses,” *Science*, **314** (2006) 443-446.

(2006年10月11日受理)