

超短光パルスの測定法 —基礎から最先端の研究まで—

藤貴夫

自然科学研究機構 分子科学研究所

2017年6月2日

概要

チタンサファイアレーザーにおけるカーレンズモード同期現象が発見されてから、フェムト秒パルスの発生が容易となり、レーザーの専門家でなくても、フェムト秒パルスを使用できるようになった。現在では、科学の広い分野だけでなく、産業界においても、微細加工などにフェムト秒パルスレーザーが応用されるようになってきた。

物性科学研究においても、フェムト秒パルスを使用することが多い。特に、光物性の分野において、超高速現象を調べるときに、必須のレーザーとなっている。

一方、使用するフェムト秒パルス进行评估するためには、パルス幅の計測が必要であるが、電気回路の速度では、フェムト秒に追従できないため、測定に工夫が必要である。もっともよく用いられている手法は、パルス強度の自己相関測定であるが、そのような測定では、フェムト秒パルスの姿を十分に把握できるとは言えない。フェムト秒パルスの評価を十分行っていないことが、超高速現象の測定において、深刻な問題を引き起こすことも考えられる。

これまで、超短光パルスの姿をできるだけ正確に評価することを目的として、様々な測定法が開発されてきた。フェムト秒パルスが広い分野で普及している現在においても、超短光パルスを計測する新しい手法の開発は進められている。

本講義では、超短光パルスを計測する手法について、基本的なところから最先端の研究まで、詳細に解説する。超短光パルス計測法の最先端の研究の紹介としては、講演者自らが開発した、超短光パルスの電場波形を計測する手法について、詳しく解説する。

1 はじめに

ピコ秒 (10^{-12} s) 以下の幅を持ったパルスを発生する超短光パルスレーザーは、科学の広い分野だけでなく、産業界においても利用されることが多くなってきた。物性科学研究においても、超高速現象を調べるときには、必須のレーザーとなっている。

一方、使用するフェムト秒パルス进行评估するためには、パルス幅の計測が必要であるが、電気回路の速度では、フェムト秒に追従できないため、測定に工夫が必要である。もっともよく用いられている手法は、パルス強度の自己相関測定であるが、そのような測定では、フェムト秒パルスの姿を十分に把握できるとは言えない。

これまで、超短光パルスの形をできるだけ正確に評価することを目的として、様々な測定法が開

1987 年:	6fs	Opt. Lett. 12 483
1997 年:	4.5fs	Opt. Lett. 22 102
	4.5fs	Opt. Lett. 22 522
2002 年:	3.9fs	Opt. Lett. 27 306
	3.8fs	Phys. Rev. Lett. 88 203901
2004 年:	250as	Nature 427 817
2006 年:	130as	Science 314 443
2008 年:	80as	Science 320 1614
2013 年:	67as	Opt. Lett. 37 3891

表 1 世界最短パルスの歴史。1987 年から 2002 年までは、可視光のパルスであり、2004 年以降は、極端紫外光のパルスである。

発されてきた。フェムト秒パルスレーザーが広い分野で普及している現在においても、超短光パルスを計測する新しい手法の開発は進められている。

本講義では、超短光パルスを計測する手法について、基本的な理論から最先端の研究まで、詳細に解説する。超短光パルス計測法の最先端の研究の紹介としては、講演者自らが開発した、超短光パルスの電場波形を計測する手法について、詳しく解説する。

1.1 超短光パルスの歴史: 世界最短光パルス発生競争

超短光パルスの数学的な記述の前に、現在、人類が制御できる最も短いパルスについて、述べておきたい。

世界最短の光パルスを発生させる競争がもっとも激しかったのは 1997 年ごろ、チタンサファイアレーザーの自己モード同期が発見された後である。それまでは、色素レーザーによって 6fs のシステムがあった [1] が、それから 10 年間、その記録は更新されなかった。1997 年に、チタンサファイアレーザーを使うことによって、2つのグループで 4.5fs のパルスの発生が報告された [2,3]。最近では 7fs を発生する発振器が商品 (2 千万円ほどだが) として売り出されている時代となっている。

波長の短い光ほど短いパルスを作りやすい。しかし、短い波長は、レーザー発振が困難であり、しかも空気中を通過することができないため、大掛かりな真空装置が必要となる。チタンサファイアレーザーの 800nm から、15nm 程度の極端紫外光への波長変換によって、1fs 以下のパルス発生も行われた [4]。その手法をさらに発展させることによって、現在最も短い光パルスとして、67アト秒が認められている。その波長は 20nm 程度である [5]。この一連の歴史については、表 1 にまとめている。

このような超短光パルス発生競争のさなか、そのパルス幅の測定について、様々な議論が起こりはじめた。究極的に短い光パルスの測定では、やはり究極的な方法によってしか、信頼できるパ

ルス幅の測定ができないことがわかってきた。つまり、超短光パルスレーザーの発展から、超短光パルスの評価法という新しい分野が生まれたということである。

2 超短光パルスの基礎

この節では、超短光パルスの基本的な性質について、数学的な記述を使って、説明する。

2.1 フーリエ変換

光は波の性質をもっており、様々な周波数の波の重ねあわせとして考えることができる。光の時間波形と、それを構成している波の各周波数成分の振幅(スペクトル)は、フーリエ変換の関係にある。このことを使って、超短光パルスのスペクトルについて、考えてみる。

まず、フーリエ変換の定義を次のようにしておく。

$$\tilde{E}(\omega) = \int_{-\infty}^{\infty} dt E(t) \exp(-i\omega t) \quad (1)$$

$$E(t) = \frac{1}{2\pi} \int_{-\infty}^{\infty} d\omega \tilde{E}(\omega) \exp(i\omega t) \quad (2)$$

$E(t)$ は時間領域での光の電場である。 $\tilde{E}(\omega)$ はそのフーリエ変換であり、 t 、 ω はそれぞれ時間、角周波数である。 $E(t)$ は実際には実数であるが、計算を簡便にするために、ここでは、複素数の表記をとることにする。つまり、 $\omega < 0$ のとき、 $\tilde{E}(\omega) = 0$ である。物理的な意味がわかりやすい式は式(2)であり、複素振幅 $\tilde{E}(\omega)$ で波長 $\lambda = 2\pi c/\omega$ の単色光が重なることにより、 $E(t)$ が構成されると考える。 $\tilde{E}(\omega)$ の絶対値が、単色光の振幅であり、その位相成分が、その単色光の位相を表す。

ここで、光強度が、電場の複素数表記によってどのように表されるか、示しておく。中心波長 $\lambda_0 = 2\pi c/\omega_0$ で包絡線が $A(t)$ であるパルス $E_r(t)$ (実数表記) を考える。

$$E_r(t) = A(t) \cos(\omega_0 t) \quad (3)$$

強度は、ポインティングベクトルの理論から、

$$I(t) = \epsilon_0 c n \frac{1}{T} \int_{t-T/2}^{t+T/2} dt' E_r^2(t') \quad (4)$$

積分は電場の一周期で行う。また、パルス幅が電場の一周期より充分長ければ、包絡線の部分は積分の外にでて、

$$(4) = |A(t)|^2 \epsilon_0 c n \frac{1}{T} \int_{t-T/2}^{t+T/2} dt' \cos^2(\omega_0 t') \quad (5)$$

$$= \frac{1}{2} \epsilon_0 c n |A(t)|^2 \quad (6)$$

一方、 $E_r(t)$ の複素数表記は

$$E(t) = A(t) \exp(i\omega_0 t) \quad (7)$$

であり、

$$I(t) \propto |A(t)|^2 = |E(t)|^2 \quad (8)$$

であるから、複素数表記の電場 $E(t)$ の絶対値の二乗が、電場強度を表すことがわかる。また、このことから、パルスを構成している各周波数成分の電場の強度、つまりパワースペクトル $P(\omega)$ は、

$$P(\omega) = |\tilde{E}(\omega)|^2 \quad (9)$$

となることが自然にわかる。

2.2 パルス幅とスペクトル幅

パルス幅 Δt とスペクトル幅 $\Delta\omega$ を次のように定義する。

$$\Delta t^2 = \int_{-\infty}^{\infty} dt t^2 |E(t)|^2 \quad (10)$$

$$\Delta\omega^2 = \frac{1}{2\pi} \int_{-\infty}^{\infty} d\omega \omega^2 |\tilde{E}(\omega)|^2 \quad (11)$$

$E(t)$ ($\tilde{E}(\omega)$) は、パルスエネルギーで規格化されており、 $\int_{-\infty}^{\infty} dt |E(t)|^2 = \frac{1}{2\pi} \int_{-\infty}^{\infty} d\omega |\tilde{E}(\omega)|^2 = 1$ とする。ここで、 $\Delta t \cdot \Delta\omega$ の下限について、考えてみる。

$$\Delta t^2 \cdot \Delta\omega^2 = \int_{-\infty}^{\infty} dt t^2 |E(t)|^2 \cdot \frac{1}{2\pi} \int_{-\infty}^{\infty} d\omega \omega^2 |\tilde{E}(\omega)|^2 \quad (12)$$

$$= \int_{-\infty}^{\infty} dt |tE(t)|^2 \cdot \int_{-\infty}^{\infty} dt |\dot{E}(t)|^2 \quad (13)$$

$i\omega\tilde{E}(\omega)$ は $\dot{E}(t)$ のフーリエ変換であることと、任意のフーリエ変換可能な関数 $F(t)$ について、 $\int_{-\infty}^{\infty} dt |F(t)|^2 = \frac{1}{2\pi} \int_{-\infty}^{\infty} d\omega |\tilde{F}(\omega)|^2$ であることを使った。ここで、 $tE(t)$ と $\dot{E}(t)$ にシュワルツの不等式を適用して、

$$(13) \geq \left| \int_{-\infty}^{\infty} dt tE^*(t)\dot{E}(t) \right|^2 \quad (14)$$

である。右辺の積分について、 $2 \int_{-\infty}^{\infty} dt E^*(t)\dot{E}(t) = E^*(t)E(t)$ であることを利用し、部分積分を行うと、

$$\int_{-\infty}^{\infty} dt tE^*(t)\dot{E}(t) = \left[t \frac{1}{2} |E(t)|^2 \right]_{-\infty}^{\infty} - \int_{-\infty}^{\infty} dt \frac{1}{2} |E(t)|^2 \quad (15)$$

となる。 $|E(\infty)|^2 = |E(-\infty)|^2 = 0$ であり、規格化の条件を使うと、

$$\Delta t \Delta\omega \geq \frac{1}{2} \quad (16)$$

となる。これから、任意の光パルスのスペクトル幅 $\Delta\omega$ は必ず $1/(2\Delta t)$ よりも大きくなり、パルス幅が短いほど、スペクトル幅が大きくなることがわかる。^{*1}つまり、フェムト秒パルスはある程度幅のあるスペクトルをもっており、単色のフェムト秒パルスというのは存在しない。

^{*1} この不等式は、量子力学の不確定性原理と似ており、たびたび、パルス幅とスペクトル幅の不確定性原理、と言われている。しかし、ここで取り扱っている $E(t)$ は、実際は実数の光電場であるので、確率波の波動関数における不確定性原理とは異なっていることを認識するべきである。

3 超短光パルスの評価

フェムト秒パルスのパルス幅はどうやって測定すればいいのだろうか。フェムト秒パルスを検出器に入射すれば、基本的には、前述した (4) の信号が測定されるが、検出器の応答時間によって、積分されてしまう。一般的な光検出システムは、光半導体光検出器とオシロスコープの組み合わせであるが、この応答時間はせいぜい 1ns 程度であり、フェムト秒パルスのパルス幅を測定することができない。

前述のように、世界最短パルス発生競争から、パルス幅の測定法について議論が起こり、超短光パルスの評価法という新しい分野が生まれることとなった。ここでは、十年ほど前から新しく開拓された超短光パルスの評価法について解説する。

3.1 強度相関

前述のように、検出器で直接フェムト秒パルスのパルス幅を測定することはできない。だが、パルスをついに二つに分け、その二つのパルス間の遅延を掃引できるようにしてから重ね合わせ、二つのパルスが同時に来たときにだけ信号が観測されるような装置があると、パルス幅についての情報が得られるはずである。

二光子励起蛍光をつかった強度相関の測定について説明する。パルスをついに二つに分け、その二つのパルス間の遅延を掃引できるようにしてから重ね合わせ、試料に照射する状況を考える。このとき、二つのパルス間の遅延時間に依存する二光子励起蛍光強度 $I_{\text{flu}}(\tau)$ は次のように表される。

$$I_{\text{flu}}(\tau) \propto \int_{-\infty}^{\infty} dt |E(t)E(t+\tau)|^2 \quad (17)$$

蛍光寿命は、典型的にはナノ秒程度であり、時間平均するとしている。この式は、次のように書き換えられる。

$$I_{\text{flu}}(\tau) \propto \langle I(t)I(t+\tau) \rangle \quad (18)$$

$\langle \rangle$ は時間平均を表す。例えば、パルス強度が、

$$I(t) = \exp\left(-2\frac{t^2}{\Delta t^2}\right) \quad (19)$$

のようだとすると、

$$(18) = \int_{-\infty}^{\infty} dt \exp\left(-2\frac{t^2}{\Delta t^2}\right) \exp\left(-2\frac{(t+\tau)^2}{\Delta t^2}\right) \quad (20)$$

$$= \int_{-\infty}^{\infty} dt \exp\left(-4\frac{\left(t+\frac{\tau}{2}\right)^2}{\Delta t^2} - \frac{\tau^2}{\Delta t^2}\right) \propto \exp\left(-\frac{\tau^2}{\Delta t^2}\right) \quad (21)$$

となる。このように、蛍光強度の遅延時間依存性は、パルス強度波形を反映したものとなり、強度相関から、パルス幅を見積もることができる。遅延時間は、典型的には、ステッパーマータと移動

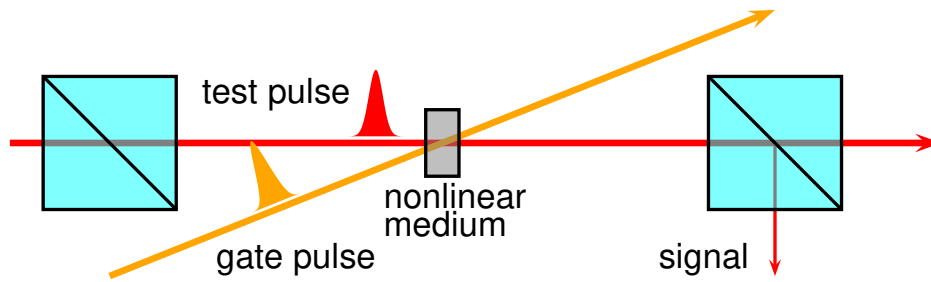


図1 典型的な光ゲート法の概念図。

ステージを組み合わせた装置で掃引するが、100nm程度の精度は、比較的簡単に達成できる。つまり遅延時間では、0.3fs程度の精度であり、フェムト秒パルス測定するには、十分な精度である。

3.2 周波数分解光ゲート法 (FROG)

上述の方法では、パルスの強度が測定されても、パルスの位相の情報を得ることができない。また、式(19)のように、パルス強度波形をガウス型と仮定することが適当であるとは限らない。特に、数フェムト秒のパルスでは、パルス波形が複雑になる場合がある。その場合でも、強度相関測定では、形がなまってしまう、ガウス型のような形が測定されがちである。結果として、強度相関から求めたパルス幅は、現実とは大幅に異なることが大いにあり得る。

フェムト秒パルスにおいて $E(t)$ を時間領域だけで測定することには無理がある。そこで、パルスを時間領域と周波数領域の両方で測定することを考える。

ここで、偏光ゲート法によるパルスの評価について考える。概念図を図1に示す。測定したいパルス $E(t)$ と参照光パルス $E_{\text{ref}}(t)$ を非線形媒質で重ね合わせる。参照光パルスの強度に比例して、測定したいパルスの偏光が回転し、その信号は、偏光子によって取り出される。信号 $S(\tau)$ は次のような式で表させる。

$$S(\tau) = \int_{-\infty}^{\infty} dt |E(t) |E_{\text{ref}}(t - \tau)|^2|^2 \quad (22)$$

τ は参照光パルスと測定したいパルスとの遅延時間である。参照光パルスが測定したいパルスよりも十分短ければ、遅延時間を掃引しながら、この信号をそのまま検出器で測定することで、 $|E(t)|^2$ が得られるが、フェムト秒パルスを測定したい場合は、さらに短い参照光パルスを用意することは、一般的に難しい。

そこで、この信号を分光器などで波長分解して、スペクトルを測定することを考える。測定される信号 $S(\tau, \omega)$ は、次のようになる。

$$S(\tau, \omega) = \left| \int_{-\infty}^{\infty} dt E(t) |E_{\text{ref}}(t - \tau)|^2 \exp(-i\omega t) \right|^2 \quad (23)$$

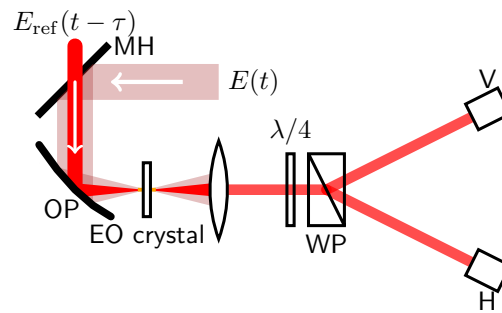


図2 典型的なEOSの計測装置模式図。MH: 穴の開いたミラー、OP:非軸放物面鏡、EO crystal: 電気光学素子、 $\lambda/4$:四分の一波長板、WP: ウォラストンプリズム、V、H: それぞれ縦偏光、横偏光の光強度を測定する検出器

この信号は、時刻 τ における瞬間的なスペクトルを測定していると考えることができ、そのスペクトルの重心を τ でプロットすることで、おおむね瞬時周波数の時間変化を求めることができる。瞬時周波数は位相を時間で微分したものであるから、これを積分することで、基本的には、位相を計算できることがわかる。ただし、積分定数を決めることができないため、絶対値を求めることはできない。ちなみに、参照光パルスは、測定したいパルスと同じパルスを使うこともできる。

偏光ゲート法以外でも、第二、三次高調波発生、過渡回折格子など、様々な非線形信号のスペクトルを遅延時間を掃引しながら測定することで、同じような情報が得られる。このような手法を周波数分解光ゲート法 (Frequency Resolved Optical Gating、FROG) と呼んでいる。強度相関の手法と比べて、位相の情報が得られるため、パルス波形についてより正確な情報を得ることができる。パルス幅の測定だけでなく、パルスの位相変化に関する研究でも重要な手法である。

3.3 電気光学サンプリング法

前節で紹介した偏光ゲート法によって、パルス幅よりも十分短い参照光パルスを用意することができれば、周波数分解せずに、強度波形を直接測定することができる。ここで紹介する電気光学サンプリング法 (Electro-optic sampling、EOS) は、測定対象の電場の周期よりも十分に短い参照光パルスを使って、光電場そのものの時間変化を計測する手法である [6]。時間領域だけの測定であるが、強度相関と違って電場の振動をそのまま計測することができるため、光パルス電場について、位相の絶対値も含めたすべての情報が得られる。

参照光パルス電場 $E_{\text{ref}}(t)$ と測定対象のパルス電場 $E(t)$ を非線形媒質 (電気光学素子) で重ね合わせる。偏光ゲート法と異なり、測定対象のパルス電場によって、参照光パルスの偏光が回転し、その信号 $S(\tau)$ を偏光子によって取り出す。

$$S(\tau) = \int_{-\infty}^{\infty} dt \Re \left\{ |E_{\text{ref}}(t - \tau)|^2 E(t) \right\} \quad (24)$$

式 (24) は参照光パルスの幅が計測対象の周波数の周期よりも十分短ければ、 $|E_{\text{ref}}(t - \tau)|^2 \equiv I_{\text{ref}}(t - \tau)$ をデルタ関数とできて、 $S(\tau) = \Re \{ E_{\text{test}}(\tau) \}$ となる。この手法では、電場そのものの情

報が得られることが大きな特徴である。典型的な EOS の実験装置を図 2 に示す。

この手法は、現在では、おもにテラヘルツ波の測定に用いられる。テラヘルツ波の振動周期は 1ps 程度であるので、100fs 程度のパルス幅をもった参照光を用意できればよい。しかし、赤外やそれよりも波長の短いパルスについて、この手法を適用するのは難しい。2017 年の時点では、この手法をつかって測定できた最も短い波長は $2\mu\text{m}$ 程度であり、参照光パルスの幅は 5fs 程度であった [7]。

4 超短光パルス評価法の最先端

この節では、講演者が自ら開発した新しい超短光パルス評価法について、解説する。

4.1 キャリア・エンベロープ位相

以前は、光パルスにおいて、その包絡線の時間変化と振動電場の周期は、時間スケールが全く異なり、包絡線と振動電場は、完全に切り離して考えられていた。2 節においても、包絡線の時間変化は振動電場の周期よりも十分遅いとしていた。例えば、800nm の光振動電場の周期は 2.7fs に対して、パルス幅が 50fs 程度までなら、包絡線の時間変化は、振動電場に比べて十分遅いとしてよい。しかし、パルス幅が 20fs 以下になってくると、振動電場と包絡線との時間スケールが同程度となってくるので、それらの関係について考えることに価値がでてくる。

包絡線と振動電場が同じ時間スケールであれば、それぞれの関係から、図 3 のような位相の定義が可能となる。包絡線に対する振動電場の位相であり、これはキャリア・エンベロープ位相 (carrier-envelope phase, CEP) と呼ばれている。絶対位相 (absolute phase) と呼ばれていたこともあったが、異分野から誤解を招く表現であることから、現在では CEP と統一されている。

数式では、超短光パルスの複素電場を $E(t)$ 、包絡線 (複素数) を $\mathcal{E}(t)$ 、中心角周波数を ω_0 として、

$$E(t) = \mathcal{E}(t) \exp(i\omega_0 t + i\phi) \quad (25)$$

の ϕ である。この式をフーリエ変換して、周波数領域で表現すれば、

$$\tilde{E}(\omega) = \tilde{\mathcal{E}}(\omega - \omega_0) \exp(i\phi) \quad (26)$$

となる。

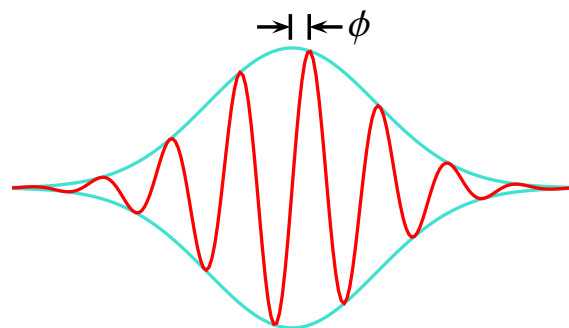


図 3 キャリア・エンベロープ位相の定義

4.2 キャリア・エンベロープ位相も測定できる周波数分解光ゲート法

前節で解説した FROG は、任意の形をした超短光パルスを実測する手法として、現在では非常に有名な手法である。しかし、FROG では、測定対象パルスの CEP を測定することはできないとされていた [8]。

CEP も含めた超短光パルスの計測は、光電場の周期よりも短いアト秒パルスと、計測対象の光電場との相互相関を測定するような方法で可能である。しかし、このような実験は、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。アト秒パルス発生のために、CEP の安定した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、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。

2013 年に、分子科学研究所の藤グループにおいて、CEP も含めた超短光パルスの評価ができる新しい FROG 法 (FROG capable of CEP determination, FROG-CEP) [9] が開発された。この手法の概念は、FROG と EOS の信号を同時に計測することによって、FROG と EOS のそれぞれの信号から、パルス強度と CEP に関する情報を得る、ということである。この手法は、計測対象の電場の周期よりも長い参照光パルスを用いても、CEP の情報を含んだパルス評価ができるところが非常に大きな特徴である。この手法を使って、30fs の参照光パルスを用いながら、振動周期が 11fs の赤外光パルスの評価を、CEP の情報も含めて行うことができた。

ここでは、まず、EOS の計測原理の拡張から、FROG-CEP の概念を説明する。その後、実験結果を示し、最後に自己参照についての議論を示す。

4.2.1 FROG-CEP の原理

前節で述べたように、EOS の信号は、テラヘルツ波と参照光パルスとの非線形相互作用から発生していると一般的に理解されているが、テラヘルツ波と参照光パルスとの和周波信号と、参照光パルスとの干渉と考えることもできる。それを表した式は次のとおりである。

$$\begin{aligned} & \left\langle |E_{\text{ref}}(t - \tau) + \alpha E_{\text{ref}}(t - \tau) E_{\text{test}}(t)|^2 \right\rangle \\ &= \left\langle |E_{\text{ref}}(t - \tau)|^2 \right\rangle + \left\langle |\alpha|^2 |E_{\text{ref}}(t - \tau) E_{\text{test}}(t)|^2 \right\rangle \\ & \quad + \langle 2\Re \{ \alpha E_{\text{ref}}^*(t - \tau) E_{\text{ref}}(t - \tau) E_{\text{test}}(t) \} \rangle, \quad (27) \end{aligned}$$

α は非線形感受率に比例する係数であり、非線形媒質に吸収がなく、応答が十分高速であると仮定すれば、時間や周波数に依存しない定数とみなせる。 τ は、信号光パルスと参照光パルス間の遅延時間である。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、信号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(XFROG) [10] の信号となる。第三項は、EOS の信号であり、局所電場 (ここでは参照光電場) と非線形信号との干渉である。通常の EOS においては、この第三項のみが計測される。前節で述べたように、 $|E_{\text{ref}}(t)|^2$ をデルタ関数とみなせれば、第三項は、 $\Re\{E_{\text{test}}(\tau)\}$ に比例し、電場そのものの信号が測定されることがわかる。テラヘルツ波の計測では、計測対象の電磁波の周期はピコ

NI	LO	FROG	EOS
SFG	$E_{\text{ref}}(t - \tau)$	$ E_{\text{ref}}(t - \tau)E_{\text{test}}(t) ^2$	$I_{\text{ref}}(t - \tau)E_{\text{test}}(t)$
DFG	$E_{\text{ref}}(t - \tau)$	$ E_{\text{ref}}(t - \tau)E_{\text{test}}^*(t) ^2$	$I_{\text{ref}}(t - \tau)E_{\text{test}}^*(t)$
FWSFG	$E_{\text{ref}}^2(t - \tau)$	$ E_{\text{ref}}^2(t - \tau)E_{\text{test}}(t) ^2$	$I_{\text{ref}}^2(t - \tau)E_{\text{test}}(t)$
FWDFG	$E_{\text{ref}}^2(t - \tau)$	$ E_{\text{ref}}^2(t - \tau)E_{\text{test}}^*(t) ^2$	$I_{\text{ref}}^2(t - \tau)E_{\text{test}}^*(t)$

表 2 FROG-CEP において測定される項。NI: 非線形相互作用の種類、LO: それぞれの非線形相互作用における必要な局所電場、FROG: 式 (28) の第二項、EOS: 式 (28) の第三項、SFG: 和周波発生、DFG: 差周波発生、FWSFG: 四光波和周波発生、FWDFG: 四光波差周波発生。

秒から数百フェムト秒であり、数十フェムト秒の参照光パルスを用いることで、 $|E_{\text{ref}}(t)|^2$ をデルタ関数をみなすことができ、CEP も含めた電場の情報を得ることができる。しかし、テラヘルツ波よりも短波長の赤外光、可視光などを計測対象とした場合は、短い参照光パルスを用意することが難しくなってくる。計測対象の電場の周期に比べて無視できないほどのパルス幅の参照光を用いた場合は、得られる信号は、参照光の強度と信号光電場の畳み込み積分で表される。周波数領域で考えれば、測定される信号光のスペクトルは、参照光パルス強度 $|E_{\text{ref}}(t)|^2$ のフーリエ変換 (注: $E_{\text{ref}}(t)$ のパワースペクトルではない) で表される関数によってフィルタされ、低い周波数成分しか観測されないことになる。

FROG-CEP の基本的な概念は、次の通りである。式 (27) 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、つまり、CEP の情報を含めたパルス評価が可能となる、ということである。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 CEP の情報をもっている。その位相に、XFROG 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を得ることができるということである。XFROG 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であり、測定される位相も同じであることを利用した計測法である。この手法が有効な条件としては、低い周波数成分だけとはいえ、EOS の信号が得られることである。これは、前述の EOS だけで電場波形を計測する条件よりも、はるかに緩い条件と言える。

他の FROG-CEP の特徴としては、FROG と同様に、様々な非線形相互作用を使うことができるということである。上記の例は、和周波発生だったが、差周波発生や四光波混合などを適用させることができる。式 (27) をより一般的にして書くと、次のようになる。

$$\begin{aligned}
 & \left\langle |E_{\text{ref}}^n(t - \tau) + \alpha E_{\text{ref}}^n(t - \tau)E_{\text{test}}(t)|^2 \right\rangle \\
 &= \left\langle |E_{\text{ref}}^n(t - \tau)|^2 \right\rangle + \left\langle |\alpha|^2 |E_{\text{ref}}^n(t - \tau)E_{\text{test}}(t)|^2 \right\rangle \\
 & \quad + \left\langle 2\Re \{ \alpha E_{\text{ref}}^{*n}(t - \tau)E_{\text{ref}}^n(t - \tau)E_{\text{test}}(t) \} \right\rangle \quad (28)
 \end{aligned}$$

n は正の整数である。表 2 は、様々な非線形相互作用における式 (28) の第二項、第三項をまとめたものである。FROG との違いとしては、偏光ゲート FROG(PG-FROG) は適用できないということ

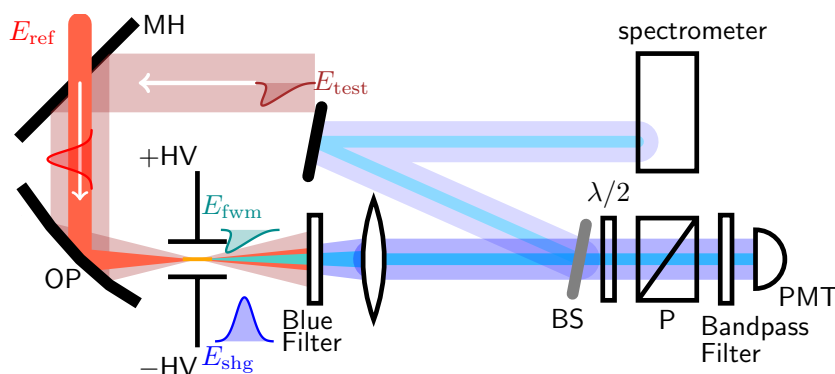


図4 実験装置図。MH: 穴あきミラー ($\phi=7\text{mm}$)、OP: 放物面鏡 ($f=150\text{mm}$)、HV: 高電圧電極 (4kV)、BS: 7% ビームスプリッタ、P: 方解石偏光子、PMT: 光電子増倍管。

ろである。

上述の式の展開においては、信号光の波長についてなにも仮定をしなかった。このことから、FROG-CEP が、FROG とほぼ同等に、様々な波長領域で使用できることがわかる。

4.2.2 実験装置

FROG-CEP の実験装置図の一例を図4に示す。この装置自身は、気体を使った EOS (air-biased coherent detection [11]) の装置とほぼ同じである。違いは、XFROG 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。詳しい実験装置の説明を次に述べる。

信号光 ($E_{\text{test}}(t)$) は、CEP の安定した単一サイクル赤外光パルス ($0.5\mu\text{J}$, ω_0) であり、マルチパスチタンサファイア増幅器 (Femtopower compactPro, FEMTOLASERS) の基本波 ($700\mu\text{J}$, 800nm , ω_1) と2倍波 ($15\mu\text{J}$, 400nm , ω_2) を窒素ガス中に集光し、四光波混合過程 ($\omega_1 + \omega_1 - \omega_2 \rightarrow \omega_0$) によって発生させたものである。このサブサイクル赤外光パルス発生については、参考文献 [12–14] を参照されたい。赤外光パルスの中心波長は $3.3\mu\text{m}$ (3000cm^{-1}) である。

サブサイクル赤外光パルスは、穴あきミラーにおいて、参照光パルス ($E_{\text{ref}}(t-\tau)$, 30fs , $2\mu\text{J}$) と結合される。 τ は参照光パルスと赤外光パルスの遅延時間である。参照光パルスは、光源のチタンサファイア増幅器からの出力の一部をビームスプリッタによって取り出したものである。結合されたビームは放物面鏡 ($f=150\text{mm}$) によって窒素ガス中に集光される。参照光と赤外光との偏光はお互いに直交しており、発生する四光波差周波発生 (FWDFG) の信号 ($E_{\text{fwm}}(t, \tau) \propto E_{\text{ref}}^2(t-\tau)E_{\text{test}}^*(t)$) は、赤外光と平行であり、参照光とは直交している。FWDFG の信号を XFROG の信号として利用する場合は、局所電場としては、参照光の二倍波を用意する必要がある (表2のFWDFGを参照)。参照光の二倍波 ($E_{\text{ref}}^2(t-\tau)$) は、高電圧電場をかけることによって発生させる。電極間の電圧は約 27kV/mm であり、 500Hz の周波数で変調されている。この 500Hz の信号は、レーザーの繰り返し周波数の 1kHz の信号を半分にしたもの (2分周) を用いている。高電圧電場の方向は、参照光パルスの偏光と平行であり、発生した二倍波の偏光も参照光パルスと平行となる。

このような非線形相互作用によって得られた信号は、入射角約 0 度でビームスプリッタ (サファイア基板) によって分けられる。反射されたビーム (約 7%) は、標準的な分光器に導入され、XFROG の信号を測定するために使われる。透過したビームは、EOS の信号を測定するために使われる。このビームは、方解石の偏光子によって、横方向の偏光成分だけ取り出されるが、EOS の信号がもっとも大きくなるように、半波長板によって偏光が調整される。400nm を中心波長としたバンドパスフィルターを通過した後、光電子増倍管 (H10721-210、浜松ホトニクス) によって、検出される。干渉信号は、ロックイン増幅器 (SR830、Stanford Research) によって、高電圧の変調周波数である 500Hz の信号だけ取り出される。ロックイン増幅器の積分時間は 0.1 秒であった。

こうして計測される信号は、式 (28) で $n = 2$ とした式で表され、次のようになる。

$$\begin{aligned} & \left\langle \left| E_{\text{ref}}^2(t - \tau) + \alpha E_{\text{ref}}^2(t - \tau) E_{\text{test}}^*(t) \right|^2 \right\rangle \\ &= \left\langle \left| E_{\text{ref}}^2(t - \tau) \right|^2 \right\rangle + \left\langle \left| \alpha \right|^2 \left| E_{\text{ref}}^2(t - \tau) E_{\text{test}}^*(t) \right|^2 \right\rangle \\ & \quad + \left\langle 2\Re \left\{ \alpha E_{\text{ref}}^{*2}(t - \tau) E_{\text{ref}}^2(t - \tau) E_{\text{test}}^*(t) \right\} \right\rangle \quad (29) \end{aligned}$$

4.2.3 実験結果

図 5a-c に実験結果の一例を示す。図 5a は、分光器で計測した XFROG の信号であり、式 (29) の第二項に対応している。図 5b 中破線は、光電子増倍管で計測した EOS の信号であり、式 (29) の第三項に対応している。これらの情報を使った CEP も含めたパルス波形の再現方法は、次の通りである。

(i) 信号光のパワースペクトルと (相対) 位相スペクトルを XFROG トレース (図 5a) から XFROG 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。位相スペクトルのオフセットは、CEP の値を反映している。(ii) EOS の信号 (図 5b 中破線) をフーリエ変換することによって、パワースペクトルと位相スペクトルを計算する。(iii) XFROG 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。(iv) オフセットが修正された位相スペクトルと、XFROG 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 5b 中の実線で示してある。パルス幅は、6.9fs であり、中心波長は $3.3\mu\text{m}$ である。 $3.3\mu\text{m}$ における位相は -0.51π と求められた。 $5\mu\text{m}$ (2000cm^{-1} 付近) の位相シフトは、赤外光パルス発生において、2つの異なったパラメトリック過程で発生した信号が干渉していることが原因であると考えられる [14]。

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 5c 中破線) によって、フィルタされた結果である。このフィルタ関数が位相の絶対値に影響を与えないことが重要であるが、これは、参照光パルスを第二高調波 FROG で求め、その強度のフーリエ変換を計算することで確認することができる。計測された参照光パルスは、時間軸でほぼ左右対称のパルスであり、実験結果に影響を与えないことを確認した。XFROG の信号と、EOS の信号との整合性は、信号が重なっている波長領域において、その位相の傾き (群遅延) が同じであ

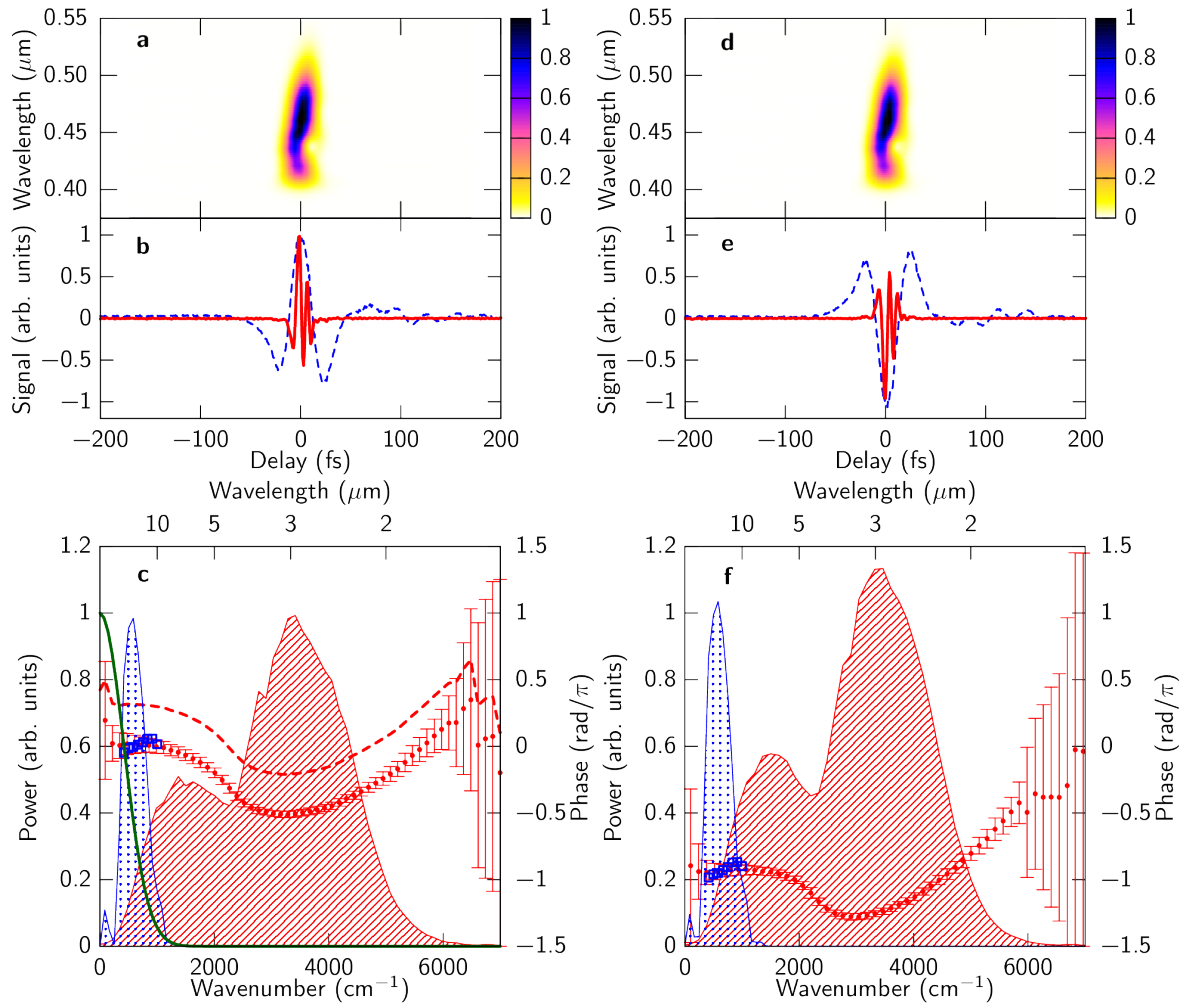


図5 実験で測定された (a)XFROG トレースと (b)EOS 信号 (破線)。実線はこの結果から得られた電場波形。(c) 斜線と破線はそれぞれ XFROG から得られたパワースペクトルと位相スペクトル。実丸は、位相スペクトルのオフセットを、EOS の信号からもとめて、補正したもの。エラーバーは、標準偏差であり、ブートストラップ法によって見積もった。点と四角はそれぞれ EOS の信号からもとめたパワースペクトルと位相スペクトルである。実線は、 $|E_{\text{ref}}^2(t)|^2$ のフーリエ変換で表される EOS 信号のフィルタ関数である。FROG error は 512×512 のサイズで 0.3% であった。

ることで確認することができる。今回の実験結果において、EOS の信号から求められた位相スペクトルの傾きは、エラーバーの範囲内で、FROG の信号から求められた位相スペクトルの傾きと一致していると言える。

また、XFROG と EOS の信号が重なっている波長領域における位相の精度についても、よく検討する必要がある。まず、EOS の信号については、遅延時間の制御に使用しているステッパーモータの精度 (5nm) から考えて、位相の値は非常に高い精度で決まっていると言える。10 回計測を繰り返して、位相の絶対値の統計を求めたところ、標準偏差が 0.01π 程度であった。一方、XFROG

NI	LO	FROG	EOS
SHG	$E(t - \tau)$	$ E(t - \tau)E(t) ^2$	$I(t - \tau)E(t)$
THG	$E^2(t - \tau)$	$ E^2(t - \tau)E(t) ^2$	$I^2(t - \tau)E(t)$
SD	$E^2(t - \tau)$	$ E^2(t - \tau)E^*(t) ^2$	$I^2(t - \tau)E^*(t)$

表3 自己参照の FROG-CEP において測定される項。NI: 非線形相互作用の種類、LO: それぞれの非線形相互作用における必要な参照電場、FROG: 式 (28) の第二項、EOS: 式 (28) の第三項、SHG: 第二高調波発生、THG: 第三高調波発生、SD: 自己回折。

の位相であるが、これは、ブートストラップ法 [15, 16] を使ったパルス波形の再現によって求めることができる。詳細は参考文献 [17] を参照されたい。求められた位相の標準偏差は 0.06π となり、この実験で得られた CEP の精度は $\pm 0.07\pi$ であったと言える。

もし、30fs 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 $6.7\mu\text{m}(1500\text{cm}^{-1})$ までとなる。XFROG の信号も同時に測定することによって、この実験では、 $1.7\mu\text{m}(6000\text{cm}^{-1})$ 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、XFROG 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 CEP を変えることによって、計測されるパルスの CEP が変化する様子を確認した。気体を非線形媒質とした四光波混合によって発生する赤外光の強度は、基本波と二倍波との位相関係を変えることによって、CEP が変わることを以前の実験で確かめている [14]。具体的には、基本波と二倍波の相対的な遅延距離を 200nm ずらすことによって、発生する赤外光の CEP は π ずれる。この現象は、同様の方法でのテラヘルツ波発生においても、観測されている現象である [18, 19]。この実験において、基本波と二倍波の相対的な遅延距離を 200nm ずらしたときに計測された FROG-CEP のデータセットを図 5d-f に示す。計測結果から、パルス幅は変わらないが、CEP だけが π ずれた様子が確認された。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。

4.2.4 自己参照の FROG-CEP

このように、FROG-CEP では、参照光パルスが信号光パルスの中心波長の周期よりも長い場合でも、信号光パルスの波形を完全に計測できることが示された。このことから、FROG-CEP は、自己参照でも使用できるということが推測される。そのための条件について、ここで議論したい。

式 (28) の $E_{\text{test}}(t)$ と $E_{\text{ref}}(t)$ を同じ電場である $E(t)$ に置き換えると、次のようになる。

$$\begin{aligned} & \left\langle |E^n(t - \tau) + \alpha E^n(t - \tau)E(t)|^2 \right\rangle \\ &= \left\langle |E^n(t - \tau)|^2 \right\rangle + \left\langle |\alpha|^2 |E^n(t - \tau)E(t)|^2 \right\rangle \\ & \quad + \langle 2\Re \{ \alpha E^{*n}(t - \tau)E^n(t - \tau)E(t) \} \rangle \quad (30) \end{aligned}$$

表3 は、様々な非線形相互作用における式 (30) の第二項、第三項をまとめたものである。第二高調波発生 (SHG) は、基本波と二倍波のスペクトルに重なりがある場合に適用できる。第三高調波発

生 (THG) は、二倍波と三倍波のスペクトルに、自己回折 (SD) は、二倍波と自己回折光のスペクトルに重なりがある場合に適用できることがわかる。やはり、相互相関 FROG-CEP の場合と同様に、偏光ゲートや過渡回折格子の非線形相互作用は適用できない。上記のような条件は、一見、計測できるパルスを大きく制限してしまっているように見える。しかし、CEP の情報が必要なパルスは、単一サイクルパルスのような、スペクトル幅が 1 オクターブ以上あるものがほとんどである。そのようなパルスは、おおむね上記のような条件を満たしているため、自己参照の適用範囲に深刻な影響をおよぼしていないと言える。上記のような条件は、一般的な CEP の計測の条件に非常によく似ている。このことは、EOS による波形測定と CEP の計測に共通した部分があるということを示唆している。

ここで気になるのは、フィルタ関数による位相のずれである。相互相関 FROG-CEP の場合は、時間軸で左右対称の参照光パルスを用意することはそれほど難しくない。しかし、自己参照の場合は、計測対象が時間軸で左右対称とは限らない。例えば、3 次の分散があった場合、パルス波形は左右非対称となり、フィルタ関数は複素数となり、EOS 信号の CEP にずれが生じることとなる。ここで考えられる方法は、フィルタ関数を FROG で求められるパルス波形から求めてしまい、その位相スペクトルを使って、結果を補正するという方法である。この手法を使って、自己参照の場合でも、正確に CEP を求めることができることを、数値計算によって確認した。数値計算の詳細については、参考文献 [9] を参照されたい。

さらに、つい最近、自己参照によって、20fs 程度の赤外光パルスの電場波形を測定することができた。その詳細については、講義において報告する。

参考文献

- [1] R. L. Fork, C. H. B. Cruz, P. C. Becker, and C. V. Shank, "Compression of optical pulses to six femtoseconds by using cubic phase compensation," *Opt. Lett.* **12**, 483–485 (1987).
- [2] A. Baltuška, Z. Wei, M. S. Pshenichnikov, and D. A. Wiersma, "Optical pulse compression to 5 fs at 1-MHz repetition rate," *Opt. Lett.* **22**, 102–104 (1997).
- [3] M. Nisoli, S. D. Silvestri, O. Svelto, R. Szipöcs, K. Ferencz, C. Spielmann, S. Sartania, and F. Krausz, "Compression of high-energy laser pulses below 5 fs," *Opt. Lett.* **22**, 522–524 (1997).
- [4] 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**, 509–513 (2001).
- [5] K. Zhao, Q. Zhang, M. Chini, Y. Wu, X. Wang, and Z. Chang, "Tailoring a 67 attosecond pulse through advantageous phase-mismatch," *Opt. Lett.* **37**, 3891–3893 (2012).
- [6] Q. Wu and X.-C. Zhang, "Free-space electrooptic sampling of terahertz beams," *Appl. Phys. Lett.* **67**, 3523–3525 (1995).
- [7] S. Keiber, S. Sederberg, A. Schwarz, M. Trubetskov, V. Pervak, F. Krausz, and N. Karpowicz, "Electro-optic sampling of near-infrared waveforms," *Nat. Photon.* **10**, 159–162 (2016).

- [8] R. Trebino, *Frequency-Resolved Optical Gating: The measurement of Ultrashort Laser Pulses* (Kluwer Academic Publishers, 2000).
- [9] Y. Nomura, H. Shirai, and T. Fuji, “Frequency-resolved optical gating capable of carrier-envelope phase determination,” *Nat. Commun.* **4**, 2820 (2013).
- [10] S. Linden, H. Giessen, and J. Kuhl, “XFROG - a new method for amplitude and phase characterization of weak ultrashort pulses,” *Phys. Status Solidi B* **206**, 119–124 (1998).
- [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] 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).
- [13] 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).
- [14] T. Fuji and Y. Nomura, “Generation of phase-stable sub-cycle mid-infrared pulses from filamentation in nitrogen,” *Appl. Sci.* **3**, 122–138 (2013).
- [15] Z. Wang, E. Zeek, R. Trebino, and P. Kvam, “Beyond error bars: Understanding uncertainty in ultrashort-pulse frequency-resolved-optical-gating measurements in the presence of ambiguity,” *Opt. Express* **11**, 3518–3527 (2003).
- [16] Z. Wang, E. Zeek, R. Trebino, and P. Kvam, “Determining error bars in measurements of ultrashort laser pulses,” *J. Opt. Soc. Am. B* **20**, 2400–2405 (2003).
- [17] H. Shirai, Y. Nomura, and T. Fuji, “Real-time waveform characterization by using frequency-resolved optical gating capable of carrier-envelope phase determination,” *Photonics Journal, IEEE* **6**, 1–12 (2014).
- [18] J. Dai and X. C. Zhang, “Terahertz wave generation from gas plasma using a phase compensator with attosecond phase-control accuracy,” *Appl. Phys. Lett.* **94**, 021117 (2009).
- [19] J. Dai, N. Karpowicz, and X. C. Zhang, “Coherent polarization control of terahertz waves generated from two-color laser-induced gas plasma,” *Phys. Rev. Lett.* **103**, 023001 (2009).