

結合波方程式の導出 と数値計算法

A.1 結合波方程式の導出

非線形かつ分散性媒質中での光パルス伝搬を記述する結合波方程式を導出する。導出過程は文献[1-5]を参考にした。媒質中の電荷および電流を無視し、 z 方向に伝搬する無限平面波を仮定すると、Maxwell 方程式から次の非線形波動方程式が導かれる。

$$\left(\frac{\partial^2}{\partial z^2} - \frac{1}{c^2} \frac{\partial^2}{\partial t^2} \right) E(z, t) = \mu_0 \frac{\partial^2}{\partial t^2} [P_L(z, t) + P_{NL}(z, t)] \quad (\text{A.1})$$

ここで $E(z, t)$, $P_L(z, t)$, $P_{NL}(z, t)$ は実数の光電場、実数の線形および非線形分極である。つまり、これらそれぞれについて、

$$F(z, t) = \text{Re}[\hat{F}(z, t)] = \frac{1}{2} [\hat{F}(z, t) + \hat{F}^*(z, t)] \quad (\text{A.2})$$

のように複素振幅を用いて記述することができる。

また、次のようなフーリエ変換の関係が成り立つ。

$$F(z, t) = \frac{1}{2\pi} \int_{-\infty}^{\infty} F(z, \omega) e^{+i\omega t} d\omega$$
$$F(z, \omega) = \int_{-\infty}^{\infty} F(z, t) e^{-i\omega t} dt \quad (\text{A.3})$$

ここで注意すべきことは、

$$\left(\frac{\partial^2}{\partial z^2} - \frac{1}{c^2} \frac{\partial^2}{\partial t^2} \right) \hat{E}(z, t) = \mu_0 \frac{\partial^2}{\partial t^2} [\hat{P}_L(z, t) + \hat{P}_{NL}(z, t)] \quad (\text{A.4})$$

が成り立つならば

$$\begin{aligned} \left(\frac{\partial^2}{\partial z^2} - \frac{1}{c^2} \frac{\partial^2}{\partial t^2} \right) \text{Re}[\hat{E}(z, t)] &= \mu_0 \frac{\partial^2}{\partial t^2} \{ \text{Re}[\hat{P}_L(z, t)] + \text{Re}[\hat{P}_{NL}(z, t)] \} \\ \left(\frac{\partial^2}{\partial z^2} - \frac{1}{c^2} \frac{\partial^2}{\partial t^2} \right) \text{Im}[\hat{E}(z, t)] &= \mu_0 \frac{\partial^2}{\partial t^2} \{ \text{Im}[\hat{P}_L(z, t)] + \text{Im}[\hat{P}_{NL}(z, t)] \} \end{aligned} \quad (\text{A.5})$$

が成り立つ、ということである。すなわち、波動方程式(A.1)を満たすという条件を課するためには、その複素表示に対する波動方程式(A.4)を満たすという条件を課せば十分である。以下に示す、波動方程式の簡略化のプロセスは電場や分極の複素表示を用いた方が便利であるため、基本的には複素表示を用いる。ただし、線形分極の周波数分散や非線形分極を計算するためには実表示を用いる必要があるため、そのプロセスは実表示を用い、最終的には複素表示の式(A.4)に当てはめることにする。

基本波および第2高調波の電場を次のように包絡線関数を導入して記述する。

$$\begin{aligned} E(z, t) &= E_1(z, t) + E_2(z, t) \\ &= \frac{1}{2} [A_1(z, t) e^{i(\omega_1 t - k_1 z)} + A_2(z, t) e^{i(\omega_2 t - k_2 z)} + c.c.] \quad (\text{A.6}) \\ &= \frac{1}{2} [A_1(z, t) e^{i\psi_1} + A_2(z, t) e^{i\psi_2} + c.c.] \end{aligned}$$

線形分極の周波数分散の計算

基本周波数、および2倍周波数の分極を次のように分ける。

$$P_L(z, t) = P_{L1}(z, t) + P_{L2}(z, t) \quad (\text{A.7})$$

基本周波数成分はフーリエ変換を用いて

$$P_{L1}(z, \omega) = \epsilon_0 \chi(\omega) E_1(z, \omega) = \epsilon_0 \chi(\omega) \int_{-\infty}^{+\infty} E_1(z, t) e^{-i\omega t} dt \quad (\text{A.8})$$

となる。ここで $\chi(\omega)$ は線形感受率である。これをフーリエ変換すると次のようになる。

$$\begin{aligned} P_{L1}(z, t) &= \frac{1}{2\pi} \int_{-\infty}^{+\infty} P_{L1}(z, \omega) e^{i\omega t} d\omega \\ &= \frac{1}{2\pi} \int_{-\infty}^{+\infty} \left[\epsilon_0 \chi(\omega) \int_{-\infty}^{+\infty} E_1(z, t') e^{-i\omega t'} dt' \right] e^{i\omega t} d\omega \quad (\text{A.9}) \\ &= \frac{1}{2\pi} \int_{-\infty}^{+\infty} \left[\epsilon_0 \chi(\omega) \int_{-\infty}^{+\infty} \left\{ \frac{1}{2} A_1(z, t') e^{i\psi_1} + \frac{1}{2} A_1^*(z, t') e^{-i\psi_1} \right\} e^{-i\omega t'} dt' \right] e^{i\omega t} d\omega \end{aligned}$$

これより、時間に関する 2 階微分は

$$\frac{\partial^2 \hat{P}_{L1}(z, t)}{\partial t^2} = -\frac{1}{2} e^{i\psi_1} \frac{1}{2\pi} \int_{-\infty}^{+\infty} dt' A(z, t') \int_{-\infty}^{+\infty} d\omega [\varepsilon_0 \omega^2 \chi(\omega)] e^{i(\omega - \omega_1)(t - t')} \quad (\text{A.10})$$

となる。ここで $\omega^2 \chi(\omega)$ を ω_1 のまわりでテイラー展開する。

$$\begin{aligned} \omega^2 \chi(\omega) &\equiv \omega_1^2 \chi(\omega_1) + (\omega - \omega_1) \frac{d}{d\omega} [\omega^2 \chi(\omega)]_{\omega_1} + \frac{1}{2} (\omega - \omega_1)^2 \frac{d^2}{d\omega^2} [\omega^2 \chi(\omega)]_{\omega_1} + \dots \\ &\equiv \kappa_0 + \kappa_1 (\omega - \omega_1) + \kappa_2 (\omega - \omega_1)^2 + \dots \end{aligned} \quad (\text{A.11})$$

となる。ただし、

$$\begin{aligned} \kappa_0(\omega_1) &= \omega_1^2 \chi(\omega_1) \\ \kappa_1(\omega_1) &= \frac{d}{d\omega} [\omega^2 \chi(\omega)]_{\omega_1} \\ \kappa_2(\omega_1) &= \frac{1}{2} \frac{d^2}{d\omega^2} [\omega^2 \chi(\omega)]_{\omega_1} \end{aligned} \quad (\text{A.12})$$

である。2 次の項まで残し、公式

$$\begin{aligned} \delta^{(n)}(t - t') &= \frac{1}{2\pi} \int_{-\infty}^{+\infty} (i)^n (\omega - \omega_1)^n e^{i(\omega - \omega_1)(t - t')} d\omega \\ f^{(n)}(t_1) &= (-1)^n \int_{-\infty}^{+\infty} f(t) \delta^{(n)}(t - t_1) dt \end{aligned} \quad (\text{A.13})$$

を用いる。ここで $\delta(x)$ は Dirac のデルタ関数である。すると次のように書き直せる。

$$\frac{\partial^2 \hat{P}_{L1}(z, t)}{\partial t^2} = -\frac{1}{2} \varepsilon_0 e^{i\psi_1} \left[\kappa_0(\omega_1) - i\kappa_1(\omega_1) \frac{d}{dt} - \kappa_2(\omega_1) \frac{d^2}{dt^2} \right] A_1(z, t) \quad (\text{A.14})$$

これが、線形分極の時間応答を周波数分散の 2 次まで考慮して表した式である。

それぞれ、複素電場の空間および時間 2 階微分の項は以下のように計算できる。

$$\frac{\partial^2 \hat{E}_1}{\partial z^2} = \frac{1}{2} \left(\frac{\partial^2 A_1}{\partial z^2} - 2ik_1 \frac{\partial A_1}{\partial z} - k_1^2 A_1 \right) e^{i(\omega_1 t - k_1 z)} \quad (\text{A.15})$$

$$\frac{\partial^2 \hat{E}_1}{\partial t^2} = \frac{1}{2} \left(\frac{\partial^2 A_1}{\partial t^2} + 2i\omega_1 \frac{\partial A_1}{\partial t} - \omega_1^2 A_1 \right) e^{i(\omega_1 t - k_1 z)} \quad (\text{A.16})$$

(A.14-16)を用いて(A.4)の非線形分極以外の項を計算すると、

$$\begin{aligned} &\frac{\partial^2 \hat{E}_1}{\partial z^2} - \frac{1}{c^2} \frac{\partial^2 \hat{E}_1}{\partial t^2} - \mu_0 \frac{\partial^2 \hat{P}_{L1}}{\partial t^2} \\ &= -\frac{1}{2} e^{i\psi_1} \left[-\frac{\partial^2 A_1}{\partial z^2} + 2ik_1 \frac{\partial A_1}{\partial z} + 2ik_1 \dot{k}_1 \frac{\partial A_1}{\partial t} + (\dot{k}_1^2 + k_1 \ddot{k}_1) \frac{\partial^2 A_1}{\partial t^2} \right] \end{aligned} \quad (\text{A.17})$$

が得られる。ここで黒点は周波数 ω に関する微分を表す。

同様の手順で第2高調波に関する式も次のように計算できる。

$$\begin{aligned} \frac{\partial^2 \hat{E}_2}{\partial z^2} - \frac{1}{c^2} \frac{\partial^2 \hat{E}_2}{\partial t^2} - \mu_0 \frac{\partial^2 \hat{P}_{L2}}{\partial t^2} \\ = -\frac{1}{2} e^{i\psi_2} \left[-\frac{\partial^2 A_2}{\partial z^2} + 2ik_2 \frac{\partial A_2}{\partial z} + 2ik_2 \dot{k}_2 \frac{\partial A_2}{\partial t} + (\dot{k}_2^2 + k_2 \ddot{k}_2) \frac{\partial^2 A_2}{\partial t^2} \right] \end{aligned} \quad (\text{A.18})$$

非線形分極の計算

2次の非線形分極は次のように展開される。

$$\begin{aligned} P^{(2)}(z, t) &= \varepsilon_0 \chi^{(2)} E(z, t) E(z, t) \\ &= \frac{1}{4} \varepsilon_0 \chi^{(2)} \left[A_1^2 e^{2i(\omega_1 t - k_1 z)} + A_2^2 e^{2i(\omega_2 t - k_2 z)} + 2A_1^* A_2 e^{i(\omega_1 t - k_2 z + k_1 z)} + 2A_1^* A_1 + 2A_2^* A_2 + c.c. \right] \\ &\equiv \hat{P}_{NL0}^{(2)} + \hat{P}_{NL1}^{(2)} + \hat{P}_{NL2}^{(2)} + c.c. \end{aligned} \quad (\text{A.19})$$

これらのうち、基本および2倍周波数の成分はそれぞれ、

$$\begin{aligned} \hat{P}_{NL1}^{(2)}(z, t) &= \frac{1}{4} \varepsilon_0 \chi^{(2)} \left[2A_1^* A_2 e^{i(\omega_1 t - k_2 z + k_1 z)} \right] \\ \hat{P}_{NL2}^{(2)}(z, t) &= \frac{1}{4} \varepsilon_0 \chi^{(2)} \left[A_1^2 e^{2i(\omega_1 t - k_1 z)} \right] \end{aligned}$$

である。3次の非線形分極についても丹念に計算すると、

$$\begin{aligned} P^{(3)}(z, t) &= \varepsilon_0 \chi^{(3)} E(z, t) E(z, t) \\ &= \frac{1}{8} \varepsilon_0 \chi^{(3)} \left[A_1 e^{i(\omega_1 t - k_1 z)} + A_2 e^{i(\omega_2 t - k_2 z)} + c.c. \right]^3 \\ &\equiv \hat{P}_{NL0}^{(3)} + \hat{P}_{NL1}^{(3)} + \hat{P}_{NL2}^{(3)} + \hat{P}_{NL3}^{(3)} + \hat{P}_{NL4}^{(3)} + \hat{P}_{NL5}^{(3)} + \hat{P}_{NL6}^{(3)} + c.c. \end{aligned} \quad (\text{A.20})$$

となる。同様にして基本および2倍周波数の成分はそれぞれ、

$$\begin{aligned} \hat{P}_{NL1}^{(3)}(z, t) &= \frac{1}{8} \varepsilon_0 \chi^{(3)} \left[3(|A_1|^2 A_1 + 2|A_2|^2 A_1) e^{i(\omega_1 t - k_1 z)} \right] \\ \hat{P}_{NL2}^{(3)}(z, t) &= \frac{1}{8} \varepsilon_0 \chi^{(3)} \left[3(|A_2|^2 A_2 + 2|A_1|^2 A_2) e^{i(\omega_2 t - k_2 z)} \right] \end{aligned}$$

である。

厳密には非線形分極の周波数分散も存在するが、非線形分極を波動方程式における小さな摂動として扱う立場をとるのでここでは無視する。すなわち、

$$\frac{\partial^2 \hat{P}_{NL1}^{(2,3)}}{\partial t^2} = -\omega_1^2 \hat{P}_{NL1}^{(2,3)}, \quad \frac{\partial^2 \hat{P}_{NL2}^{(2,3)}}{\partial t^2} = -\omega_2^2 \hat{P}_{NL2}^{(2,3)}. \quad (\text{A.21})$$

以上の式(A.18-21)を波動方程式(A.4)に代入し、基本波・第2高調波の各成分に分けると、

$$\left\{ \begin{aligned} & \left[\frac{i}{2k_1} \frac{\partial^2}{\partial z^2} + \frac{\partial}{\partial z} + \dot{k}_1 \frac{\partial}{\partial t} - i \frac{\dot{k}_1^2 + k_1 \ddot{k}_1}{2k_1} \frac{\partial^2}{\partial t^2} \right] A_1 \\ & \quad = -i \frac{\omega_1}{2cn_1} \chi^{(2)} A_1^* A_2 \exp(-i\Delta kz) - i \frac{3\omega_1}{8cn_1} \chi^{(3)} (|A_1|^2 A_1 + 2|A_2|^2 A_1), \\ & \left[\frac{i}{2k_2} \frac{\partial^2}{\partial z^2} + \frac{\partial}{\partial z} + \dot{k}_2 \frac{\partial}{\partial t} - i \frac{\dot{k}_2^2 + k_2 \ddot{k}_2}{2k_2} \frac{\partial^2}{\partial t^2} \right] A_2 \\ & \quad = -i \frac{\omega_2}{2cn_2} \chi^{(2)} A_1^2 \exp(+i\Delta kz) - i \frac{3\omega_2}{8cn_2} \chi^{(3)} (|A_2|^2 A_2 + 2|A_1|^2 A_2), \end{aligned} \right. \quad (\text{A.22})$$

となる。基本波の群速度で動く新しい座標系(z', η)

$$\left\{ \begin{aligned} \eta &= t - \frac{z}{v_1} = t - \dot{k}_1 z \\ z' &= z \end{aligned} \right. \quad (\text{A.23})$$

を導入し、SVE 近似を適用すると次のように書き換えられる。

$$\left\{ \begin{aligned} \frac{\partial A_1}{\partial z} &= i\xi_1 \frac{\partial^2 A_1}{\partial \eta^2} - i\rho_1 A_1^* A_2 \exp(-i\Delta kz) - i\sigma_1 (|A_1|^2 A_1 + 2|A_2|^2 A_1), \\ \frac{\partial A_2}{\partial z} &= -\zeta \frac{\partial A_2}{\partial \eta} + i\xi_2 \frac{\partial^2 A_2}{\partial \eta^2} - \frac{1}{2} i\rho_2 A_1^2 \exp(+i\Delta kz) - i\sigma_2 (|A_2|^2 A_2 + 2|A_1|^2 A_2), \\ \Delta k &= k_2 - 2k_1, \quad \eta = t - \frac{z}{v_1} = t - \dot{k}_1 z, \\ \xi_1 &= \frac{1}{2} \ddot{k}_1, \quad \xi_2 = \frac{\dot{k}_2^2 - \dot{k}_1^2 + k_2 \ddot{k}_2}{2k_2}, \quad \zeta = \dot{k}_2 - \dot{k}_1, \quad \rho_i = \frac{\omega_i d_{\text{eff}}}{cn_i}, \quad \sigma_i = \frac{3\omega_i \chi^{(3)}}{8cn_i}. \end{aligned} \right. \quad (\text{A.24})$$

これが2次および3次の非線形光学効果と線形感受率の2次分散まで含んだ方程式である。

ここで注意すべきことは、SVE 近似を施す前までは±z方向に伝搬する波が解として許されていたが、近似の過程で自動的に-z方向へ伝搬する波は無視されている。つまり、反射波などは導かれた方程式(A.24)に従わないのである。

A. 2 数値計算アルゴリズム

上記の結合波方程式を対称スプリットステップビーム伝搬法 (Symmetric split-step beam propagation method: Symmetric split-step BPM) [6]を用いて数値計算した。この方法では非線形項は時間領域で、線形な分散性伝搬は周波数領域で計算する。そこで、新たに $B_1 = A_1$, $B_2 = A_2 \exp(-i\Delta k z)$ において結合波方程式を次のように分散性伝搬と非線形部分に分ける。

線形分散：

$$\begin{cases} \frac{\partial B_1}{\partial z} = i\xi_1 \frac{\partial^2 B_1}{\partial \eta^2}, \\ \frac{\partial B_2}{\partial z} = -i\Delta k B_2 - \zeta \frac{\partial B_2}{\partial \eta} + i\xi_2 \frac{\partial^2 B_2}{\partial \eta^2}, \end{cases} \quad (\text{A.25})$$

非線形項：

$$\begin{cases} \frac{\partial B_1}{\partial z} = -i\rho_1 B_1^* B_2 - i\sigma_1 (|B_1|^2 B_1 + 2|B_2|^2 B_1), \\ \frac{\partial B_2}{\partial z} = -\frac{1}{2}i\rho_2 B_1^2 - i\sigma_2 (|B_2|^2 B_2 + 2|B_1|^2 B_2), \end{cases} \quad (\text{A.26})$$

対称スプリットステップビーム伝搬法では、伝搬長を微小長 h で分割して各領域での計算を逐次実行する。位置 $z = z_0$ での電場振幅 $B_1(z_0, \eta)$, $B_2(z_0, \eta)$ から $B_1(z_0+h, \eta)$, $B_2(z_0+h, \eta)$ を計算するのに3つのステップを必要とする。まず、 z_0 から $z_0+h/2$ までの分散性伝搬を高速フーリエ変換によって計算し、次に $z_0+h/2$ において厚み h の伝搬に際して起こる非線形項からの寄与を4次の Runge-Kutta 法により計算する。そして最終ステップとして再び $z_0+h/2$ から z_0+h までの分散性伝搬を高速フーリエ変換により計算する。これが1ユニットの計算である。

線形分散の計算は、そのフーリエ領域での空間微分を考える。すなわち

$$B_1(z, \eta) = \frac{1}{2\pi} \int_{-\infty}^{+\infty} b_1(z, \omega) \exp(i\omega \eta) d\omega \quad (\text{A.27})$$

より、

$$\frac{\partial b_1}{\partial z} = (-i\xi_1 \omega^2) b_1 \quad (\text{A.28})$$

となり、

$$b_1(z, \omega) = b_1(z_0, \omega) \exp[(-i\xi_1 \omega^2)(z - z_0)] \quad (\text{A.29})$$

である。 B_2 に関しても同様に次式が導かれる。

$$b_2(z, \omega) = b_2(z_0, \omega) \exp[(-i\zeta \omega - i\xi_2 \omega^2 - i\Delta k)(z - z_0)] \quad (\text{A.30})$$

以上の要領で数値計算アルゴリズムを構築した。計算言語は Matlab を用いた。

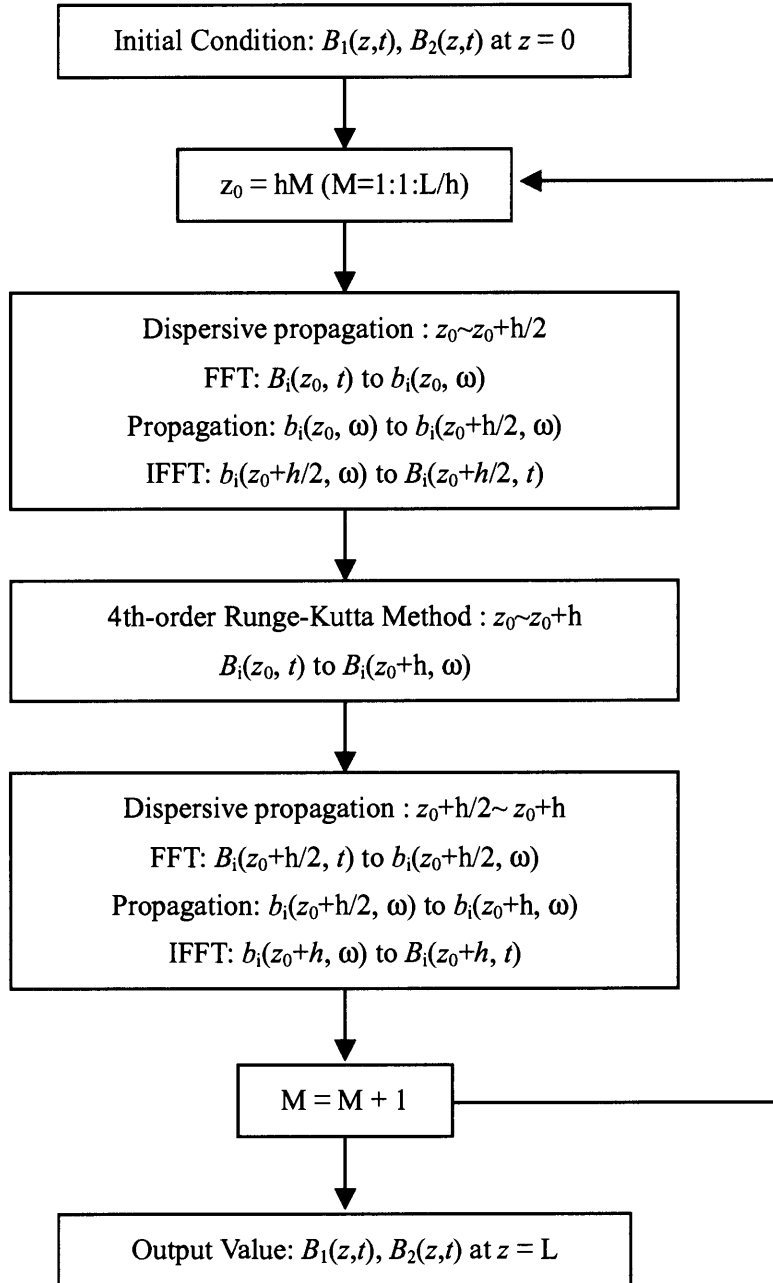


図 A.1 対称スプリットステップビーム伝搬法による数値計算アルゴリズム

参考文献

- [1] Y. R. Shen, *The Principles of Nonlinear Optics*, John Wiley & Sons (1976).
- [2] Jean-Claude Diels and Wolfgang Rudolph, *Ultrashort laser pulse phenomena*, Academic Press (1996).
- [3] S. A. Akhmanov, V. A. Vysloukh, and A. S. Chirkin, *Optics of Femtosecond Laser Pulses*, American Institute of Physics, (1992).
- [4] E. Sidick, A. Knoesen, and A. Dienes, "Ultrashort-pulse second-harmonic generation. I. Transform-limited fundamental pulses," *J. Opt. Soc. Am. B* **12**, pp. 1704-1712 (1995).
- [5] E. Sidick, A. Knoesen, and A. Dienes, "Ultrashort-pulse second-harmonic generation. II. Non-transform-limited fundamental pulses," *J. Opt. Soc. Am. B* **12**, pp. 1713-1722 (1995).
- [6] R. A. Fisher and W. K. Bischel, "Numerical studies of the interplay between self-phase modulation and dispersion for intense plane-wave laser pulses," *J. Appl. Phys.* **46**, 4921-4934 (1975).
- [7] D. Kim, G. Xiao, and G. Ma, "Temporal properties of the second-harmonic generation of a short pulse," *Appl. Opt.* **36**, pp. 6788-6793 (1997).

周波数分解光ゲート法

B.1 パルス特性評価法

フェムト秒領域のパルス波形を直接観測できるほどの高速な光検出器が、未だ存在しない事情の下でのパルス測定は、光パルスを用いて光パルスを測定する全光学的な相関法に依ることとなる。最も一般的に使われるパルス幅計測法は、第2高調波発生や2光子蛍光を用いた強度相関によるものである。しかしこの場合には位相情報が失われてしまう。これに対し、干渉を利用して位相情報の欠如を防いだのがフリンジ分解第2高調波発生強度相関法である。この方法では、2倍波の電場自己相関と強度自己相関に加え、基本波の電場自己相関から強度と位相の再構築が可能となる。さらに近年では、1993年に Kane と Trebino によって考案された周波数分解光ゲート法 (Frequency-resolved optical gating: FROG) [1]や、1998年に Iaconis と Walmsley によって考案された、SPIDER法 (Spectral phase interferometry for direct electric-field reconstruction) [2]などがパルス波形評価法として普及し始めている。

本研究では、第2高調波発生 FROG 法を採用し、その測定系およびパルス波形再構築アルゴリズムの作成を行った。極短パルスの SHG-FROG 法における詳細な解析は Baltuska ら[3]によってなされている。

B.2 FROG 法

FROG 法はパルスの時間的な一部分にゲートをかけて切り出し、そのスペクトルを測定することで強度と位相の測定を行うパルス計測法である[1]。測定データ $I_{\text{FROG}}(\tau, \omega)$ はパルスの強度と位相を直接、周波数－遅延時間に関する 2 次元関数

$$I_{\text{FROG}}(\tau, \omega) = \left| \int_{-\infty}^{+\infty} E(t) G(t - \tau) \exp(i\omega t) dt \right|^2 \quad (\text{B.1})$$

である。ここで、 $E(t)$ は測定する光パルスの電場、 $G(t)$ はゲート関数である。SHG-FROG 法では、 $G(t)$ はゲートパルスの光電場に相当する。また、

$$E_{\text{signal}}(t, \tau) = E(t) G(t - \tau) \quad (\text{B.2})$$

とし、この τ に関するフーリエ変換 $E(t, \Omega)$ を用いると、

$$I_{\text{FROG}}(\tau, \omega) = \left| \int_{-\infty}^{+\infty} \int_{-\infty}^{+\infty} E_{\text{signal}}(t, \Omega) \exp(i\omega t + i\Omega \tau) dt d\Omega \right|^2 \quad (\text{B.3})$$

となる。これは、 $E_{\text{signal}}(t, \Omega)$ の 2 次元フーリエ変換の強度を表している。これは 2 次元位相再構築問題として知られ、 I_{FROG} から E_{signal} が位相を含む形でただひとつ定まることは数学的に証明されている。一方、1 次元位相再構築問題はスペクトルの場合に対応する。つまり、

$$I(\omega) = \left| \int_{-\infty}^{+\infty} E(t) \exp(i\omega t) dt \right|^2 \quad (\text{B.4})$$

から、 $E(t)$ を復元することは解が無数に存在するため不可能である。

SHG-FROG 法は変換効率が高いが、位相整合許容バンド幅制限を考慮する必要がある。また、遅延時間に対して対称な計測であるため、再構築パルス波形に関しても 2 意性が残る。

FROG 法の最大の特徴は、その自己無撞着性である。これは、時間軸のデータ数を n とすると、振幅と位相合わせて自由度 $2n$ を有する電場の再構築に自由度 n^2 のデータを用いること、つまり物理的に妥当な FROG トレースより、すべての取りうる FROG トレースの数が圧倒的に多いことに起因する。したがって、アルゴリズムの収束性が実験データの精度に大きく依存し、それが再構築パルスの精度を補償することになる。

実験で得られる FROG トレースの物理的妥当性を確かめるため、Marginal という特性関数を用いる[4]。それぞれ、遅延時間および周波数 Marginal は次のように表される。

$$M_{\text{delay}}(\tau) = \int I_{\text{FROG}}(\omega, \tau) d\omega \quad (\text{B.5})$$

$$M_{\text{freq}}(\omega) = \int I_{\text{FROG}}(\omega, \tau) d\tau \quad (\text{B.6})$$

次節で示す再構築過程ではこれらを用いたいわゆる Marginal 補正を導入し、例えば SHG 過程における許容バンド幅制限や検出器の波長感度特性に起因する測定誤差を取り除いている。

B.3 再構築アルゴリズム

本研究では再構築アルゴリズムとして Generalized Projections (GP) [5]を用いた。具体的には下図のように、繰り返し計算により複素電場を収束させるアルゴリズムである。プログラミングには Matlab 言語を用いた。

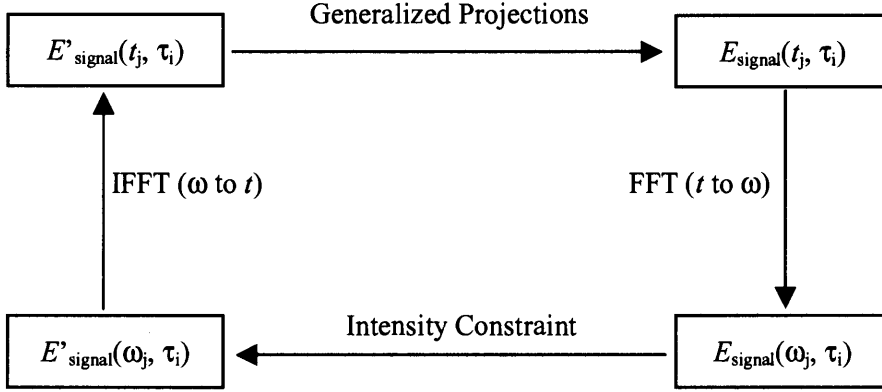


図 B.1 FROG 再構築アルゴリズムのフローチャート

まず初期値 $E_{\text{probe}}(t_j)$ ($j=1\sim n$)を与える。これには適当な初期パルスを仮定するか、または適当な範囲の乱数を用いた。この初期値から時間－遅延時間領域でのシグナルを作成する。

$$E_{\text{signal}}(t_j, \tau_i) = E_{\text{probe}}(t_j) E_{\text{gate}}(t_j - \tau_i) \quad (\text{B.7})$$

次にそれぞれの遅延時間 τ_i において t に関する高速フーリエ変換を行い、周波数－遅延時間領域でのシグナル $E_{\text{signal}}(\omega_j, \tau_i)$ に変換する。

ここで、Intensity Constraint と呼ばれる条件を課す。すなわち、

$$|E_{\text{signal}}(\omega_j, \tau_i)| = \sqrt{I_{\text{FROG}}(\omega_j, \tau_i)} \quad (\text{B.8})$$

である。これは、 E_{signal} の各点において、その絶対値を実験で得られた FROG トレースの平方根で置き換えるだけである。そして再びそれぞれの遅延時間において、 ω に対する高速逆フーリエ変換を行い、時間－遅延時間領域のシグナル $E'_{\text{signal}}(t_j, \tau_i)$ を得る。ここで式(B.7)を満たすことを2つめの条件として課す。この過程を GP を用いて行う。結局、式(B.7)および(B.8)を同時に満たす $E_{\text{probe}}(t)$ をこれらの過程の繰り返しにより得るのである。

複素数 $E_{\text{signal}}(t_j, \tau_i)$ の $2n^2$ 次元空間では2つの条件はそれぞれ集合で表され、求める解がその2つの集合のただひとつの交点として表せる (図 B.2)。GP では、式(B.7)を満たす集合上の点 A から次の式(B.8)を満たす集合上の点 B を選ぶ際に、A からの投影となるよう、すなわち A-B 2点間の距離が最小になるように選んで次の繰り返し計算に用いる E_{signal} を決定する。

Intensity Constraint として課す条件も逆に B からの投影となる。これらを繰り返して集合同士の交点へと収束していくのである。具体的には AB 間の距離は

$$Z = \sum_{i,j=1}^n |E'_{\text{signal}}(t_j, \tau_i) - E_{\text{probe}}(t_j) E_{\text{gate}}(t_j - \tau_i)|^2 \quad (\text{B.9})$$

と表され、これを最小化する $E_{\text{probe}}(t_j)$ を求め、これから $E_{\text{signal}}(t_j, \tau_i)$ を作成する。ただし、 $E_{\text{gate}}(t_j)$ は $E_{\text{probe}}(t_j)$ の関数である必要があるため、実際には $2n$ 次元 $E_{\text{probe}}^{\tau_i}(t_j)$ に関しての最小化を行う。添え字 τ_i はそれぞれ実部、虚部を表している。

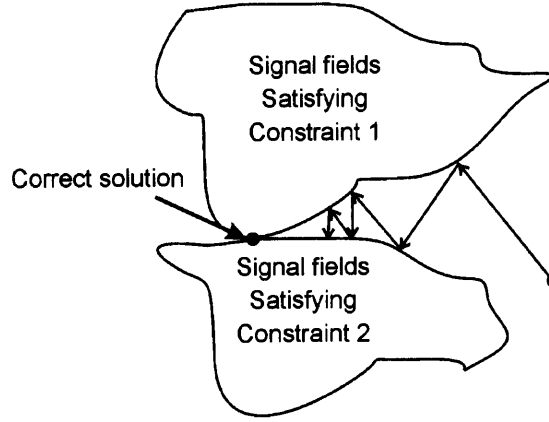


図 B.2 Generalized Projections の概念図

多次元の最小化問題では、多次元空間内のある方向での直線上の最小化問題に帰着させる。その方向として、常に Z の勾配方向を選ぶ最急降下法と、過去に最小化を行った方向と共役な方向に対して最小化を繰り返す共役勾配法がある。本研究では主に後者を用いた。SHG-FROG 法の場合、 $E_{\text{probe}} = E_{\text{gate}} = E$ として、

$$\nabla Z = \left(\frac{dZ}{dE^r(t_1)}, \frac{dZ}{dE^i(t_1)}, \dots, \frac{dZ}{dE^r(t_n)}, \frac{dZ}{dE^i(t_n)} \right) \quad (\text{B.10})$$

が計算できる。最初の点 \mathbf{p}_0 における勾配を

$$\mathbf{g}_0 = -\nabla Z(\mathbf{p}_0) \quad (\text{B.11})$$

として、直線 $\mathbf{h}_0 = \mathbf{g}_0$ 上での最小化の結果を \mathbf{p}_1 、その点での勾配を

$$\mathbf{g}_1 = -\nabla Z(\mathbf{p}_1) \quad (\text{B.12})$$

とすると、次の最小化を行う直線を前と共役な方向、すなわち

$$\mathbf{h}_1 = \mathbf{g}_1 + \frac{(\mathbf{g}_1 - \mathbf{g}_0) \cdot \mathbf{g}_1}{\mathbf{g}_0 \cdot \mathbf{g}_0} \mathbf{h}_0 \quad (\text{B.13})$$

のように選ぶ。以下同様に \mathbf{h}_i ($i=0,1,\dots$) を求めて最小化を行う。

B.4 測定系

ノンコリニアな第2高調波発生強度相関系を用いて測定を行った。非線形結晶として、厚さ 0.1 mm の BBO を用いた。片方の光学遅延を変えながら、発生した第2高調波パルススペクトルを分光器 (ORIEL, SR257) とシリコンフォトディテクターアレイ (浜松ホトニクス) を用いて測定した (図 B.3)。

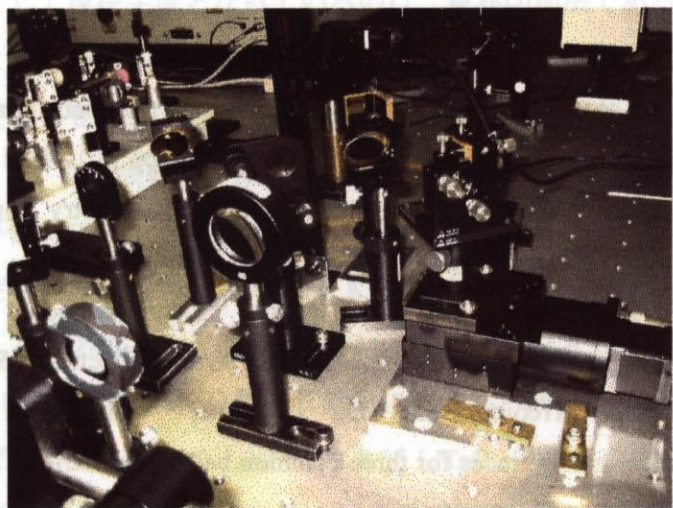
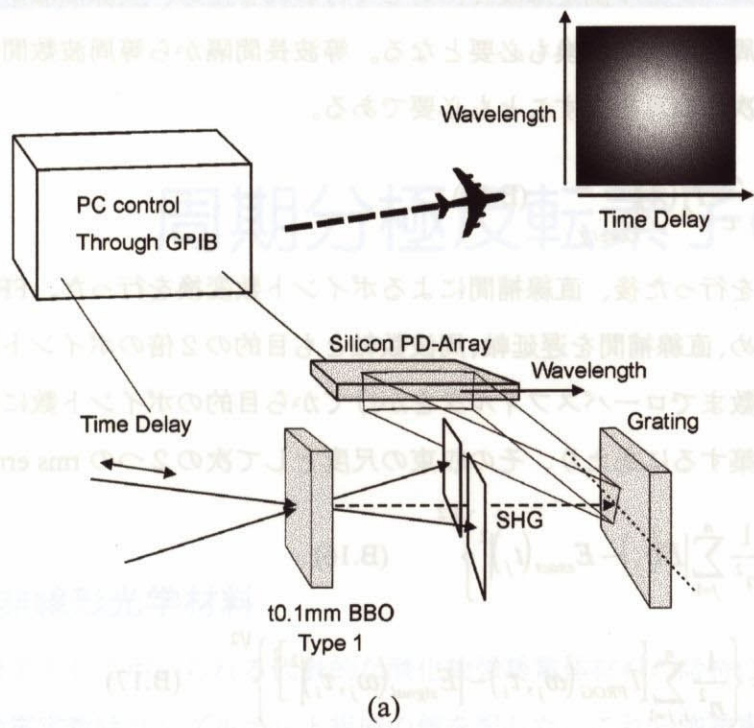


図 B.3 SHG-FROG 測定系の (a)模式図および(b)写真

得られた FROG トレースを補間して必要な 2 次元データに変換した。FFT を用いるため、FROG トレースのポイント数は $2^n \times 2^n$ である必要がある。また周波数軸および遅延時間軸は

$$f_{\max} - f_{\min} = \frac{1}{\delta\tau} \quad (\text{B.14})$$

の関係になければならない。実際には 128×128 のポイント数で解析を行った。

分光器によるスペクトル測定は波長に対して行われるため、実際にはポイント数の変換と同時に波長から周波数への変換も必要となる。等波長間隔から等周波数間隔のスペクトルに変換する際に、次の演算を施すことも必要である。

$$I_i(f) = \frac{\lambda^2}{c} I_\lambda(\lambda) \bigg|_{\lambda=c/f} \quad (\text{B.15})$$

周波数への変換を行った後、直線補間によるポイント数変換を行った。FFT でのエイリアシングを避けるため、直線補間を遅延軸、周波数軸とも目的の 2 倍のポイント数に対して行い、ナイキスト周波数までローパスフィルタをかけてから目的のポイント数に変換した。

パルスを再構築するにあたり、その収束の尺度として次の 2 つの rms error を用いた。

$$\varepsilon_E = \left\{ \frac{1}{n^2} \sum_{j=1}^n |E(t_j) - E_{\text{exact}}(t_j)|^2 \right\}^{1/2} \quad (\text{B.16})$$

$$\varepsilon_{\text{FROG}} = \left\{ \frac{1}{n^2} \sum_{i,j=1}^n \left[|I_{\text{FROG}}(\omega_j, \tau_i) - |E_{\text{signal}}(\omega_j, \tau_i)|^2| \right] \right\}^{1/2} \quad (\text{B.17})$$

参考文献

- [1] R. Trebino and D. J. Kane, "Using phase retrieval to measure the intensity and phase of ultrashort pulses: frequency-resolved optical gating," J. Opt. Soc. Am. A **10**, pp.1101-1111 (1993).
- [2] C. Iaconis and I. A. Walmsley, "Spectral phase interferometry for direct electric-field reconstruction of ultrashort optical pulses," Opt. Lett. **23**, pp.792-794 (1998).
- [3] A. Baltuska, M.S.Pshenichnikov, and D.A.Wiersma, "Second-harmonic generation frequency-resolved optical gating in the single-cycle regime," IEEE J. Quant. Electron. **35**, pp.459-478 (1999).
- [4] K. W. DeLong, R. Trebino, and D. J. Kane, "Comparison of ultrashort-pulse frequency-resolved-optical-gating traces for three common beam geometries," J. Opt. Soc. Am B **11**, pp.1595-1608 (1994).
- [5] K. W. DeLong, D. N. Fittinghoff, R. Trebino, B. Kohler, and K. Wilson, "Pulse retrieval in frequency-resolved optical gating based on the method of generalized projections," Opt. Lett. **19**, pp.2152-2154 (1994).

周期分極反転素子の作製

C.1 強誘電体非線形光学材料

周期分極反転素子として用いられる代表的な酸化物強誘電体材料の諸特性を表 C.1 にまとめた。ただし各物質定数はコングルエント組成の値を記した。これら強誘電体の分極反転素子を作製する方法として現在主流となっているのは、電界印加法である。そこではまずリソグラフィー技術により微細周期電極をパターンニングし、その後抗電界以上の電界を印加して自発分極の向きを反転させる。これまで最も盛んに研究されてきたのは LiNbO_3 の分極反転素子である[1-4]。また、紫外吸収端の深い LiTaO_3 も短波長応用へ向けて精力的に研究されてきた[5-7]。抗電界が低くフォトリフラクティブ耐性の高い KTiOPO_4 [8-10]や、やはり抗電界が低く非線形光学定数の非対角成分の大きな KNbO_3 [11,12]の分極反転素子も実現されている。また近年では、抗電界が著しく低下する $\text{MgO}:\text{LiNbO}_3$ やストイキオメトリック組成の LiNbO_3 , LiTaO_3 を用いた大口径周期分極反転素子にも関心が高まっている。

本研究ではコングルエント組成の LiNbO_3 および LiTaO_3 を用いて周期分極反転素子の作製を行った。その作製工程を以下にまとめる。

	LiNbO ₃	LiTaO ₃	KTiOPO ₄	KNbO ₃
点群	3m	3m	mm2	mm2
透明領域 (μm)	0.33 ~ 4.5	0.28 ~ 4.5	0.35 ~ 4.5	0.4 ~ 4.0
非線形定数 d ₃₃ @1064 nm (pm/V)	d ₂₂ = 2.10 d ₃₁ = -4.6 d ₃₃ = -25.2	d ₃₁ = -0.85 d ₃₃ = -13.8	d ₃₁ = 3.7 d ₃₂ = 2.2 d ₃₃ = 14.6	d ₃₁ = -10.8 d ₃₂ = -12.5 d ₃₃ = -19.6
屈折率@1064nm	n _o = 2.23216 n _e = 2.1563	n _o = 2.1360 n _e = 2.1399	n _x = 1.7400 n _y = 1.7469 n _z = 1.8304	n _x = 2.2594 n _y = 2.2195 n _z = 2.1194
抗電界 (kV/mm)	~ 21 kV/mm	~ 21 kV/mm	~ 2.2 kV/mm	~ 0.25 kV/mm

表 C.1 周期分極反転素子に用いられる酸化物強誘電体材料 [13,14]

C.2 分極反転素子の作製

素子作製の大まかな流れを図 C.1 に示す。工程は大きくわけて微細電極のパターニングと電圧印加による分極反転よりなる。電極パターニングはフォトリソグラフィを用いる場合、電子線リソグラフィを用いる場合があるが、東京大学 VDEC の共同利用設備である電子線リソグラフィを用いて直接描画で行った。

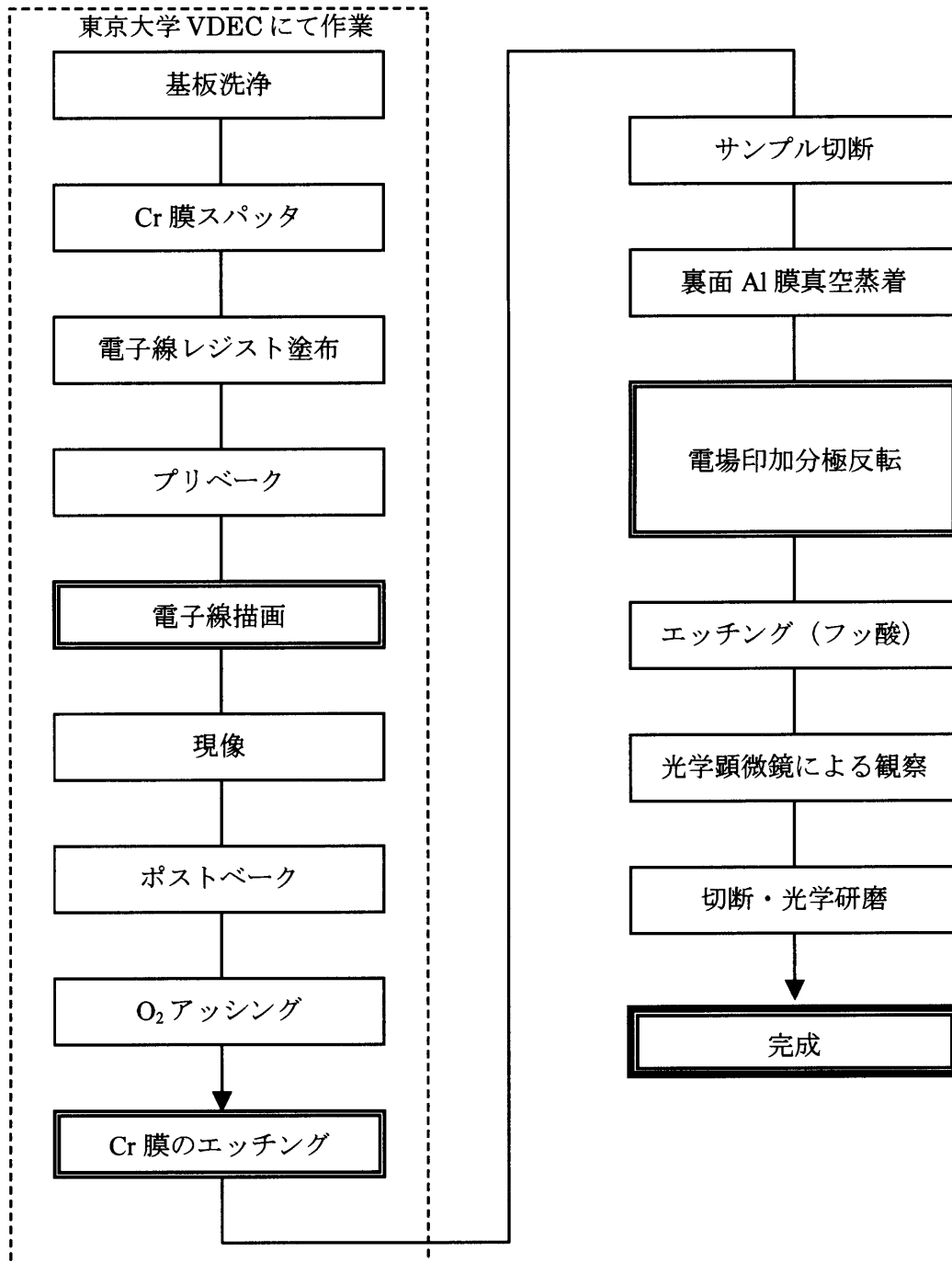


図 C.1 周期分極反転素子の作製工程

微細周期電極（周期：3-20 μm ）作製には、均一な Cr 膜の堆積と均一なレジストの塗布が絶対必要条件である。その上に、均一な現像・エッチング工程が必要である。あとに続くポーリングの条件出しの効率化を図るためにも、電極作製工程でのばらつきを最小限に抑える必要がある。また、ニオブ酸リチウムもタンタル酸リチウムも大きな焦電効果をもつため、工程中、温度の急激な変化に対して電荷が蓄積しそれが放電して割れることが多々ある。温度変化はゆるやかになるよう、十分注意する必要がある。

周期 5 μm 以上の比較的粗いパターンを作製する場合には、電子線レジスト EBR-9 を用いたウェットプロセスを採用した。5 μm より短い周期の場合、電子線レジスト ZEP520 を用いたドライエッチングを採用した。VDEC ではシリコンウェハー上のプロセスに関する条件はある程度確立されているが、 LiNbO_3 や LiTaO_3 上のパターニングに関しては前例がなく、電極のスパッタリング条件、プリベーク・ポストベーク条件、現像条件、エッチング条件などを 1 段階ずつ最適化した。こうして最適化した条件を以下にまとめる。

最終的にはウェットプロセスでは 5 μm 程度、ドライプロセスでは 3 μm 程度の周期をもつライン／スペースパターンを良好に作製できるようになった。

基板の購入

光学グレードのコングルエント LiNbO_3 および LiTaO_3 を山寿セラミックスより購入した。Z-cut、両面光学研磨であり、オリフラは下図のとおりである。反転ドメインの形状は結晶構造を反映して、 LiNbO_3 は正六角形、 LiTaO_3 は正三角形となる。それらの頂点が櫛状電極と平行な方向を向くようにパターンを設計する。すなわち、波長変換時のビーム伝搬方向は x 方向、櫛状電極は y 軸に平行方向とする。

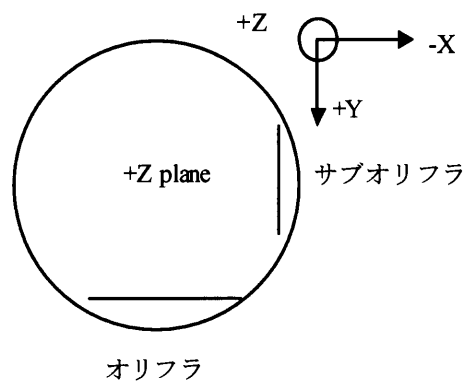


図 C.2 基板の方位

電極パターン設計

電子線描画用のデータはLSIの業界で標準とされるGDSフォーマットで準備する必要がある。Tanner Research Inc.開発のL-Edit Pro ver.8.3というPC用CADソフトを用いて電極パターンを設計し、GDSIIフォーマットにストリームアウトした。

基板の洗浄

1. 弗酸 (HF) + 硝酸 (HNO_3) の 1:2 混合液に浸す (10 秒)
2. セミコクリーン (フルウチ化学) で超音波洗浄 10 分
3. 超純水で超音波洗浄 5 分
4. アセトンで超音波洗浄 10 分
5. エタノールで超音波洗浄 5 分
6. 超純水で超音波洗浄 5 分
7. 窒素ガスエアガンで素早く吹き飛ばす
8. 乾燥 (温風オーブン 130°C 、30 分)

電極膜スパッタ (JEOL JEC-SP360M)

[EBR9 にて Wet Etching の場合 : Cr 膜堆積]

RF Power: 300W、プレススパッタ/本スパッタ : 10 分/2 分 (約 160nm 堆積)

[ZEP520 にて Dry Etching の場合 : Cr 膜 + SiO_2 堆積]

RF Power: 300W、プレススパッタ/本スパッタ : (Cr) 10 分/2 分 + (SiO_2) 10 分/2 分

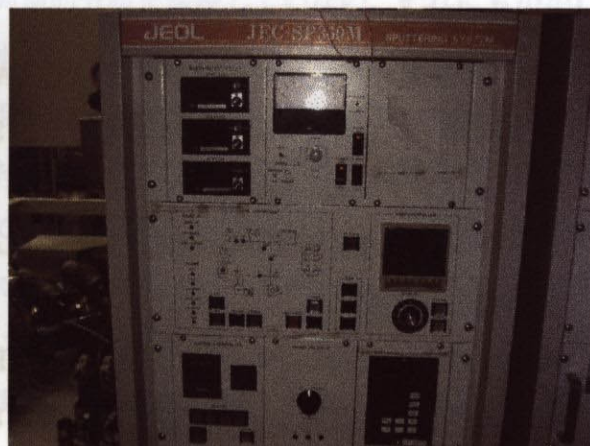


図 C.3 RF スパッタ装置 (JEOL JEC-SP360M)

レジスト塗布、プリベーク（レジスト厚み約 160 nm）

界面活性剤であるプライマーをスピコートした後、レジストをスピコートする。

プライマー：東京応化 HMDS-OAP

レジスト：EBR9（東レ）または ZEP520（日本 ZEON）

スピコーター回転数：500→2000 rpm (EBR9)、500→4000 rpm (ZEP520)

プリベーク（温風オープン）：190 度 30 分 (EBR9)、180 度 30 分 (ZEP520)

電子線描画（JEOL JBX-7000SB）

サンプルのセット、真空引き、電子線のアライメントを行い、描画する（詳細は省略）。

Dose Density：3.7uC/cm² (EBR9), 18-25 uC/cm² (ZEP520)

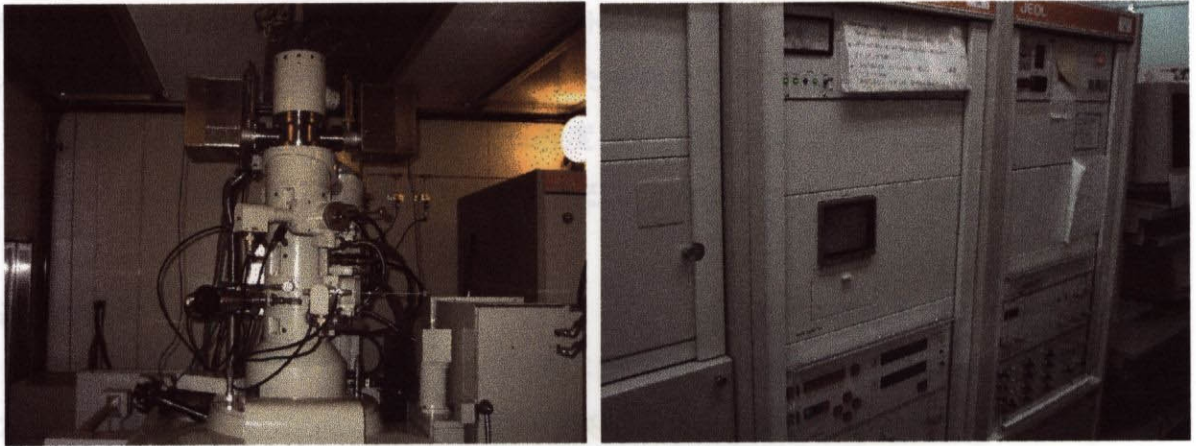


図 C.4 電子線描画装置（JEOL JBX-7000SB）

リソグラフィー工程

[EBR9 の場合]

現像：MIBK 中で約 1 分、リンスとして IPA

ポストベーク：温風オープン中で 130 度、30 分

O₂ アッシング工程：VAC (CCV) 15°, GAS1: 100 SCCM, Temp: 0°C, Limit T: 15s, RF 200W

エッチング：硝酸第二セリウムアンモニウムで約 1 分、リンスとして純水

[ZEP520 の場合]

現像：ZEP-RD (100s-150s)、リンスとして IPA

ポストベーク：温風オープン中で 130 度、30 分

RIE1 (SiO₂ エッチング工程)：CF₄:O₂ = 90 : 10, 4 分 20 秒, 圧力 = 3.7% (5Pa), 10.1(56W).

RIE2 (Cr エッチング工程)：Cl₂:O₂ = 55 : 11, 10 分, 圧力 = 3.7% (5Pa), 17.5 (100W).

サンプルの切断と裏面電極の真空蒸着

リソグラフィー工程を終わらせたウェハは、ワイヤーソーで切断し、もう一度洗浄してから裏面全面に Al 膜を真空蒸着した。その後、Ar ガス雰囲気中で約 230℃、30 分アニールして電極の密着性をよくした。

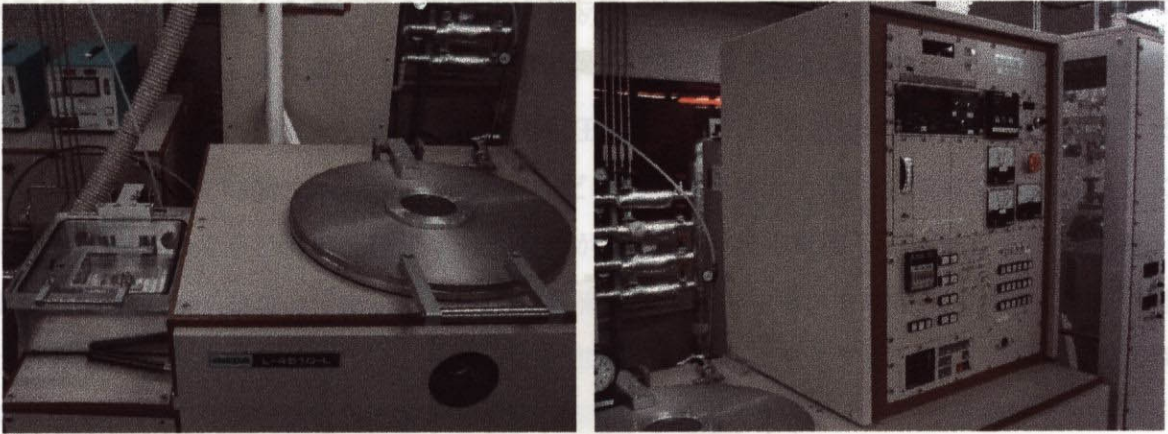


図 C.5 RIE 装置（日電 ANELVA 製 L-4510-L）

C.3 電場印加法による分極反転

分極反転のメカニズム

外部電場を印加することで図 C.6 に模式的に示すように、非常に高いアスペクト比の分極反転領域を形成できる。櫛状電極と裏面の全面電極との間に形成される電場は、通常のウェハ厚 300~500 μm の裏面付近では到底その周期的分布を保持していない。それにもかかわらず、ドメイン壁は深くまで z 軸方向にまっすぐに伸びる。

このような高いアスペクト比が実現できる理由は、「強誘電性の相関が単一双極子のサイズに比べて非常に長距離に及んでいること」および「その相互作用が極性 c 軸方向には非常に長距離に及び、 c 軸に垂直な方向には弱くて短距離にしか及ばない」という事実から説明できる。 $+z$ 面のみに電極パターンを作製してバルク材料全域に周期分極反転構造を実現しようというアプローチはこのような考えの上に成り立っている。

ニオブ酸リチウムの結晶構造は、キュリー温度（ $\sim 1140^\circ\text{C}$ ）以上ではペロブスカイト構造で、それ以下では三方晶の大きく歪んだペロブスカイト構造をしている。その結晶構造を図 C.7 に示す。単位セルは、3 個の酸素が平面に並んだレイヤーを 6 個含んでおり、その酸素で形成された八面体が z 軸方向に沿って捩れながら並んだ構造をしている。それぞれの八面

体の中には、何も無いか、Li カチオンまたは Nb カチオンがひとつずつあり、分極の方向に従って Li – Nb – vacancy – Li – Nb – vacancy – の順番に並んでいる。これらのカチオンは強誘電相では、八面体の中心から大きくずれており、構造もペロブスカイト構造からは大きくずれている。常誘電相では Nb のカチオンは八面体の中心に位置し、Li カチオンは酸素の三角形のレイヤーに位置するようになり、ペロブスカイト構造になる。分極が反転するには、Li カチオンが酸素のレイヤーを突き抜け Nb カチオンも大きく変位する必要がある、外部電場で分極反転を起こさせるには大きな電場が必要である。

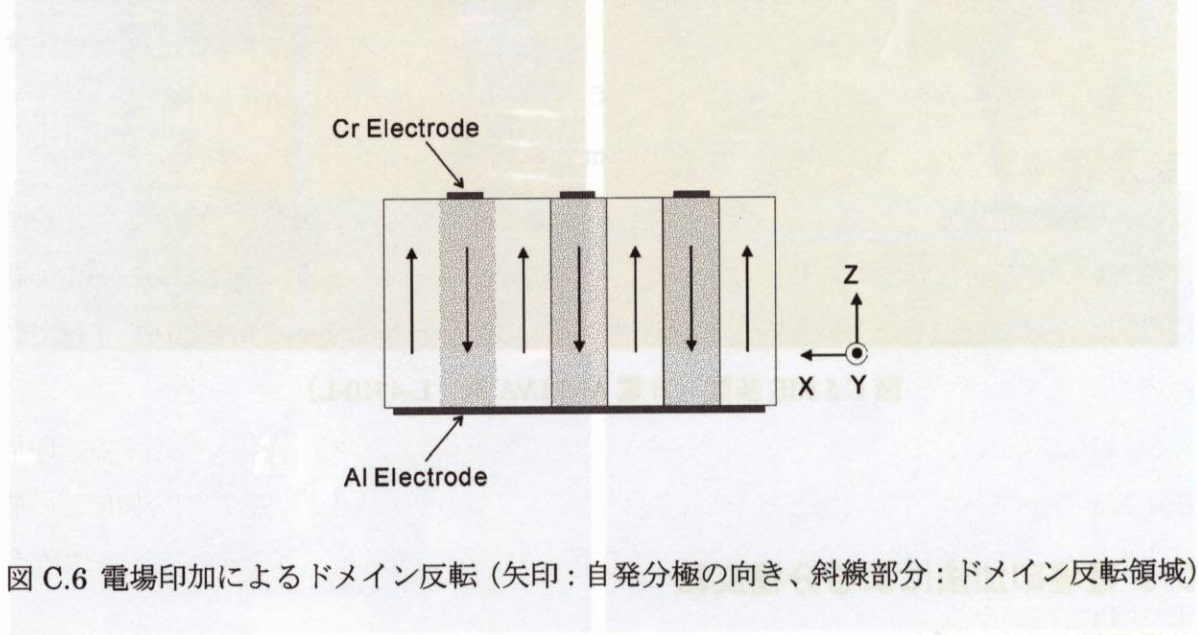


図 C.6 電場印加によるドメイン反転 (矢印：自発分極の向き、斜線部分：ドメイン反転領域)

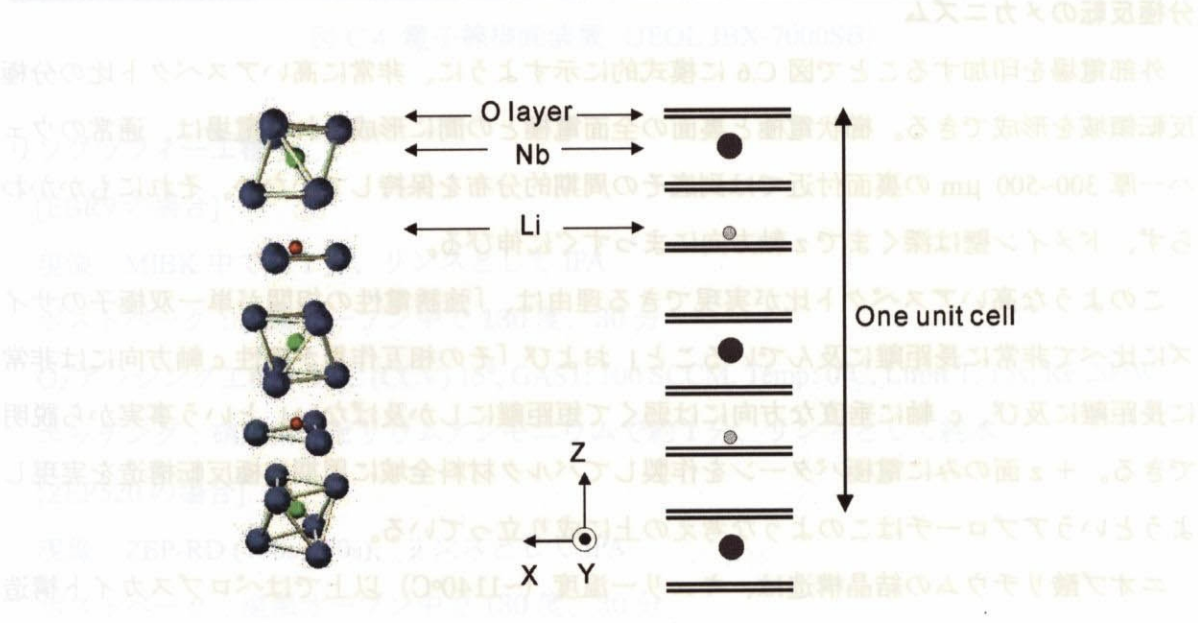


図 C.7 ニオブ酸リチウムの結晶構造とその模式図

電場印加ポーリング

サンプルのそれぞれ $+z$ および $-z$ 面上の電極に、銀ペーストにより銅線をつけ、そこに高圧電源（図 C.8）を用いて抗電界を少し上回る電圧を印加する。主に電流は電源の電流リミット機能を用いて LT の場合は約 20mA、LN の場合には約 0.1-2mA 程度流して制御した。電場印加は絶縁オイル（3M 社、フロリナート）中で行った。

印加する電圧波形を図 C.9 に示した。このような電圧波形を任意波形ジェネレーター（SONY テクトロニクス型式 AWG310）を用いて発生する。まず、常にバイアス電圧 E_B を印加しておき、一度ある程度抗電界付近まで電圧を上げ（ E_T ）て過渡電流を落ち着かせる。そしてある限られた時間（msec のオーダー）だけ抗電界を越える電圧を印加する（ E_P ）。ここで分極反転が起こるとその面積に応じた電流が流れる。電源の電流リミットでこれを制御し、また、電圧を下げることである一定時間で電流をストップする。この時点ですぐに電圧を下げるといわゆる再反転が起こり、今反転した領域が元に戻ってしまう。そこである一定の時間電圧をかけて反転した分極を安定させる必要がある。そうしてゆっくりと電圧を下げていくのである。

作製した素子は、 $\pm z$ 面あるいは断面をフッ酸でエッチングして顕微鏡で観察する。印加電圧波形や電圧パルス本数などの条件を様々に振ってポーリングを行い、周期分極反転の最適化を図った。作製した PPLN および PPLT 素子の典型的な顕微鏡写真をそれぞれ図 C.10 および図 C.11 に示す。



図 C.8 高圧電源（トレック社 Trec 20/20B）

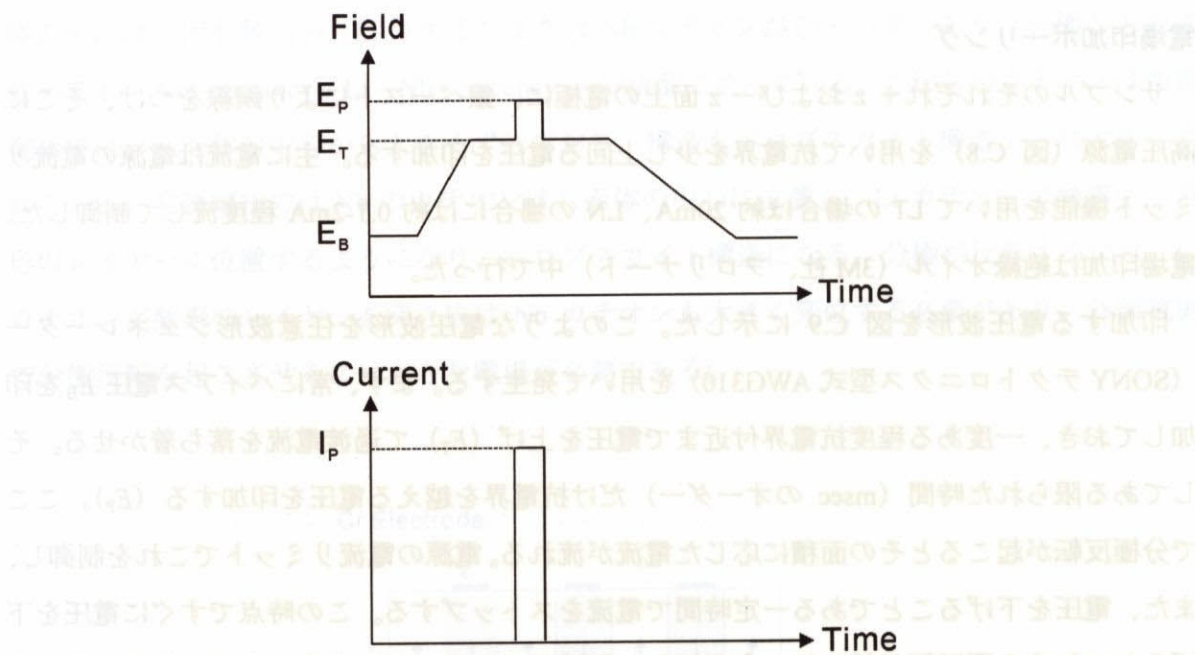


図 C.9 電圧印加波形と実際に流れる電流波形の模式図

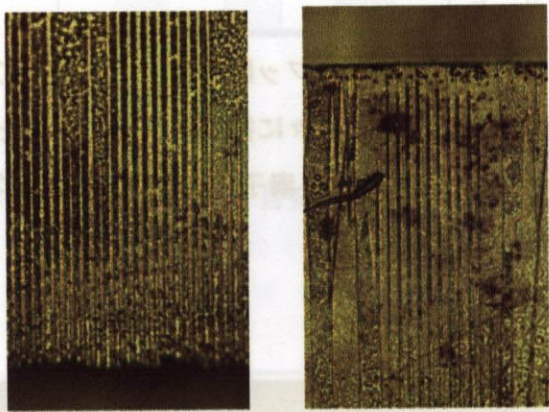


図 C.10 PPLT 素子の断面写真（周期 $3.1\mu\text{m}$ 、厚さ $300\mu\text{m}$ 、左： $+z$ 面付近、右： $-z$ 面付近）

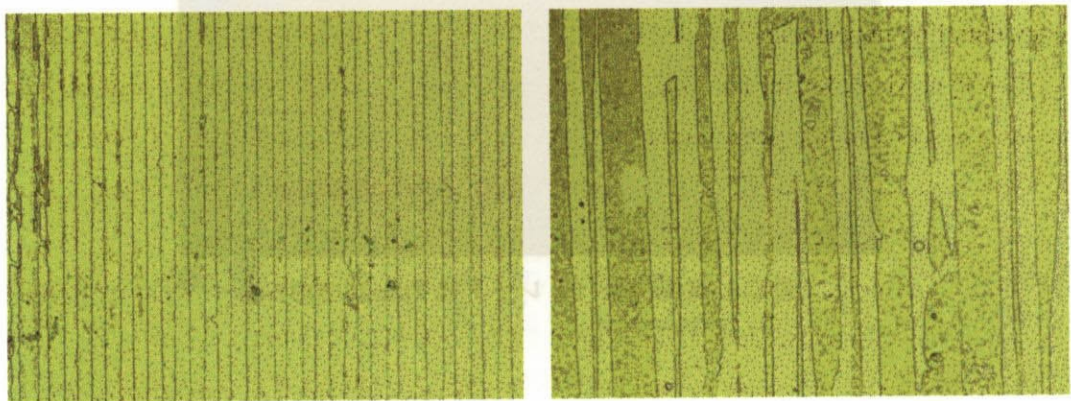


図 C.9 PPLN 素子の表面写真（周期 $8.9\mu\text{m}$ 、厚さ $500\mu\text{m}$ 、左： $+z$ 表面、右： $-z$ 表面）

参考文献

- [1] M. Yamada, N. Nada, M. Saitoh, and K. Watanabe, "First-order quasi-phase-matched LiNbO₃ waveguide periodically poled by applying an external field for efficient blue second harmonic generation," *Appl. Phys. Lett.* **62**, pp. 435-436 (1993).
- [2] W. K. Burns, W. McElhanon, and L. Goldberg, "Second harmonic generation in field poled, quasi-phase-matched, bulk LiNbO₃," *IEEE Photon. Technol. Lett.* **6**, pp. 252-254 (1994).
- [3] J. Webjoern, V. Pruneri, P. St. J. Russell, J. R. M. Barr, and D. C. Hanna, "Quasi-phase-matched blue light generation in bulk lithium niobate, electrically poled via periodic liquid electrodes," *Electron. Lett.* **30**, pp. 894-895 (1994).
- [4] L. E. Myers, R. C. Eckardt, M. M. Fejer, R. L. Byer, W. R. Bosenberg, and J. W. Pierce, "Quasi-phase-matched optical parametric oscillators in bulk periodically poled LiNbO₃," *J. Opt. Soc. Am B* **12**, pp. 2102-2116 (1995).
- [5] S. N. Zhu, Y. Y. Zhu, Z. Y. Zhang, H. Shu, H. F. Wang, J. F. Hong, C. Z. Ge, and N. B. Ming, "LiTaO₃ crystal periodically poled by applying an external pulsed field," *J. Appl. Phys.* **77**, pp. 5481-5483 (1995).
- [6] K. Mizuuchi and K. Yamamoto, "Generation of 340-nm light by frequency doubling of a laser diode in bulk periodically poled LiTaO₃," *Opt. Lett.* **21**, pp. 107-109 (1996).
- [7] J. -P. Meyn and M. M. Fejer, "Tunable ultraviolet radiation by second-harmonic generation in periodically poled lithium tantalate," *Opt. Lett.* **22**, pp. 1214-1216 (1997).
- [8] Q. Chen and W. P. Risk, "Periodic poling of KTiOPO₄ using an applied electric field," *Electron Lett.* **30**, pp. 1516-1517 (1994).
- [9] A. Engländer, R. Lavi, M. Katz, M. Oron, D. Eger, E. Lebiush, G. Rosenman, and A. Skliar, "Highly efficient doubling of a high-repetition-rate diode-pumped laser with bulk periodically poled KTP," *Opt. Lett.* **22**, pp. 1598-1599 (1997).
- [10] S. Wang, V. Pasiskevicius, F. Laurell, and H. Karlsson, "Ultraviolet generation by first-order frequency doubling in periodically poled KTiOPO₄," *Opt. Lett.* **23**, pp. 1883-1885 (1998).
- [11] J. -P. Meyn, M. E. Klein, D. Woll, R. Wallenstein, and D. Rytz, "Periodically poled potassium niobate for second-harmonic generation at 463 nm," *Opt. Lett.* **24**, pp. 1154-1158 (1999).
- [12] J. Hirohashi, K. Yamada, H. Kamio, and S. Shichijyo, "Fabrication of 90° domain structures in KNbO₃ single crystals," *Ferroelectrics* **282**, pp. 39-46 (2003).
- [13] I. Shoji, T. Kondo, A. Kitamoto, M. Shirane, and R. Ito, "Absolute scale of second-order nonlinear-optical coefficients," *J. Opt. Soc. Am B* **14**, pp. 2268-2294 (1997).
- [14] V. G. Dmitriev, G. G. Gurzadyan, and D. N. Nikogosyan, *Handbook of nonlinear optical crystals 3rd edition*, Springer (1999).

謝辞

本研究は東京大学生産技術研究所、黒田和男・志村努研究室において平成 11~15 年の間に行われたものであり、数多くの方々のご指導およびご協力のもとここにまとめることができました。

黒田和男教授には、本研究を始めるきっかけを与えていただき終始ご指導賜りました。常におおらかな姿勢と広い視野をもって数々の有益なご助言を与えていただいた上、論文の添削に至るまで丁寧にご指導賜りました。心より御礼申し上げます。

志村努助教授には、常に激励いただき日々のディスカッションを通じてご指導賜りました。光学全般にわたる幅広い知識を惜しみなく与えてくださり、また研究の方向性に関しても幾度となく有益なご助言をいただきました。心より御礼申し上げます。

貴重な時間を割いて本論文の審査をして下さり、また有益なご助言を与えて下さいました渡部俊太郎教授、五神真教授、近藤高志助教授に厚く御礼申し上げます。

千原正男技官にはあらゆる実験装置の製作に関してご指導いただいた上、常に細やかな心配りをもって日々の研究生活を支えていただきました。ここに深く感謝申し上げます。小野英信技官には実験や数値計算を行う上での研究環境を整えていただき、またあらゆる仕事に関して快く手助けしていただきました。ここに深く感謝申し上げます。藤村隆史助手とは、身近な同僚として気兼ねなく意見交換し互いに切磋琢磨することができました。ここに深く感謝申し上げます。

2002 年 8 月まで当研究室の助手として在籍された神戸大学工学部の的場修助教授には最も身近な先輩として公私にわたり大変お世話になりました。ここに深く感謝申し上げます。

学部生当時、指導教官としてご指導賜った明治大学工学部の伊藤良一教授には、学会などで会う折に激励を与えて下さいました。ここに厚く御礼申し上げます。同じく学部生当時、助手としてご指導賜った工学系研究科マテリアル工学専攻の近藤高志助教授ならびに国立分子科学研究所助手の庄司一郎博士にも、2次非線形光学に関する研究の先輩としてご助言いただく一方、テニス仲間としても激励を与え続けて下さいました。ここに深く感謝申し上げます。

千葉大学工学部情報画像工学科の尾松孝茂助教授にはレーザー開発の現場を幾度となく見せていただき、有益なご助言を多数いただきました。ここに深く感謝申し上げます。

理化学研究所の加藤純一前任研究員には、大学院修士課程で終始ご指導いただき、その後も激励を与えて下さいました。ここに深く感謝申し上げます。

北海道大学工学部の森田隆二助教授には、超短光パルスの制御法あるいは計測法に関してご助言を

いただきました。ここに深く感謝申し上げます。

米国コーネル大学の Frank Wise 助教授には、2000 年 11 月の研究室訪問以来、私の質問に対し親身に相談に乗っていただきました。ここに深く感謝申し上げます。

松下電器株式会社メディア制御システム開発センターの山本和久博士、水内公典博士、杉田知也氏には強誘電体周期分極反転素子の作製に関してご指導いただきました。ここに深く感謝申し上げます。

物質・材料研究機構の栗村直博士、Yu Nan Ei 博士、北村健二博士、韓国プサン国立大学の Cha Myoungsik 助教授、Jung Hoon Ro 助教授、国立分子科学研究所の平等拓範助教授には、周期分極反転 $\text{MgO}:\text{LiNbO}_3$ 素子に関する研究の共同研究者としてご指導・ご協力いただきました。ここに深く感謝申し上げます。

東京大学工学系研究科電気電子情報工学専攻の三田吉郎講師、田辺亮氏、杉浦邦晃氏には電子線描画およびリソグラフィプロセスの指導を賜りました。ここに深く感謝申し上げます。

東京大学生産技術研究所の枝川圭一助教授、上村祥史助手、片倉智技官、および斎藤岳行氏には結晶の切断・加工においてご協力いただきました。ここに深く感謝申し上げます。

東京ドイツワイン協会会長の中田一郎先生には、輪講会場を通じて有益なご助言をいただきました。また、幾度となくおいしいワインをご馳走になりました。ここに深く感謝申し上げます。

黒田・志村研究室に大学院生・研究生として在籍された方々に感謝の意を表します。特に、周期分極反転素子の作製および超短パルスの2次非線形光学過程に関する研究の立ち上げに多大な貢献をしてくださった仁科潤氏、池田学氏、藤岡伸秀氏のご協力に対し、感謝の意を表します。

常に明るく支えてくれた妻、暖かく見守り続けてくれた両親と兄妹、そして多くの友人達に深く感謝いたします。

研究業績リスト

原著論文（本研究に関する論文は 5-9）

1. S. Ashihara, O. Matoba, T. Shimura, K. Kuroda, J. Kato, and I. Yamaguchi, "Mutually pumped phase conjugators in picosecond pulses," J. Opt. Soc. Am B **15**, pp.1971-1976 (1998).
2. S. Ashihara, K. Kuroda, Y. Okada-Shudo, and K. Jarasiunas, "Autocorrelation of picosecond pulses in bacteriorhodopsin film," Opt. Commun. **165**, pp.83-89 (1999).
3. A. A. Kamshilin, K. Paivasaari, N. I. Nazhestkina, V. V. Prokofiev, S. Ashihara, Y. Iida, T. Shimura, and K. Kuroda, "Adaptive correlation filters for speckle patterns in photorefractive crystals," Appl. Phys. B **68**, pp.1031-1038 (1999).
4. A. A. Kamshilin, Y. Iida, S. Ashihara, T. Shimura, and K. Kuroda, "Linear sensing of speckle pattern displacements using a photorefractive GaP crystal," Appl. Phys. Lett. **74**, pp.2575-2577 (1999).
5. S. Ashihara, J. Nishina, T. Shimura, and K. Kuroda, "Soliton compression of femtosecond pulses in quadratic media," J. Opt. Soc. Am B **19**, pp.2505-2510 (2002). Virtual Journal of Ultrafast Science 1, Issue 5 (2002).
6. S. Ashihara, T. Shimura and K. Kuroda, "Group-velocity matched second harmonic generation in tilted quasi phase matching gratings," J. Opt. Soc. Am B **20**, pp.853-856 (2003). Virtual Journal of Ultrafast Science 2, Issue 5 (2003).
7. S. Ashihara, J. Nishina, T. Shimura, K. Kuroda, T. Sugita, K. Mizuuchi, and K. Yamamoto, "Nonlinear refraction of femtosecond pulses due to quadratic and cubic nonlinearities in periodically-poled lithium tantalate," Opt. Commun. **222**, pp.421-427 (2003).
8. S. Ashihara, T. Shimura, K. Kuroda, N. E. Yu, S. Kurimura, K. Kitamura, J. H. Ro, M. Cha, and T. Taira, "Group-velocity-matched cascaded quadratic nonlinearities of femtosecond pulses in periodically-poled MgO: LiNbO₃," Opt. Lett. **28**, No.16 (2003).
9. S. Ashihara, T. Shimura, K. Kuroda, N. E. Yu, S. Kurimura, K. Kitamura, M. Cha, and T. Taira, "Optical pulse compression using cascaded quadratic nonlinearities in periodically-poled lithium niobate," Appl. Phys. Lett. submitted.
10. G. B. Jung, K. Honda, T. Mutai, O. Matoba, S. Ashihara, T. Shimura, K. Araki and K. Kuroda, "Structural design of nonlinear optical chromophores for high-performance photorefractive polymers," Jpn. J. Appl. Phys. **42**, pp.2699-2704 (2003).
11. N. E. Yu, S. Kurimura, K. Kitamura, J. H. Ro, M. Cha, S. Ashihara, T. Shimura, K. Kuroda, and T. Taira, "Efficient frequency doubling of a femtosecond pulse with simultaneous group-velocity matching and quasi

phase matching in periodically poled, MgO-doped lithium niobate,” Appl. Phys. Lett. **82**, pp.3388-3390 (2003).

その他の原稿

1. 芦原聡, 原田慈久, “反射第二高調波を用いた半導体の非線形光学定数の測定,” 東京大学工学部物理工学科 卒業論文 (1996).
2. 芦原聡, “ピコ秒光パルスを用いた相互励起型位相共役鏡の研究,” 東京大学大学院工学系研究科物理工学専攻 修士論文 (1998).
3. 芦原聡, “六本木にて光学の応用を考える,” レーザ協会誌, **23-3**, p.62 (1998).
4. 芦原聡, “第32回サマーセミナー参加報告,” 日本光学会誌「光学」, **27-12**, p.729 (1998).
5. 芦原聡, K. Jarasunas, 岡田佳子, 志村努, 黒田和男, “バクテリオロドプシンを用いたピコ秒光パルスの電場自己相関測定,” 生産研究, **51**, pp.575-578 (1999).

招待講演

1. 芦原聡, “超短光パルスにおけるカスケード非線形効果とそのパルス圧縮応用,” 日本光学会名古屋講演会, (岡崎, 2002).

学会発表(国際会議)

1. S. Ashihara, J. Kato, O. Matoba, T. Shimura, K. Kuroda, and I. Yamaguchi, “Mutually pumped phase conjugation using picosecond pulses,” Proceedings of 1997 Topical Meeting on Photorefractive Materials, Effects and Devices (PR97), pp.657-660 (Chiba, 1997).
2. Y. Iida, S. Ashihara, T. Shimura, K. Kuroda, A. A. Kamshilin, “Adaptive vibration measurement of the speckle-pattern using polarization self-modulation effects in GaP,” Trends in Optics and Photonics **27**, Advances in Photorefractive Materials, Effects, and Devices, pp.595-601 (Copenhagen, 1999).
3. T. Asano, T. Omatsu, S. Ashihara, T. Shimura, and K. Kuroda, “All solid state laser image amplifier system with polymer dye,” Technical Digest of Pacific Rim Conference on Lasers and Electro-Optics, pp.387-388 (Korea, 1999).
4. R. Fujimura, O. Matoba, T. Yamada, S. Ashihara, T. Shimura, and K. Kuroda, “Investigation of non-volatile holographic recording in doubly doped lithium niobate,” The 1st Asian Conference on Crystal Growth and Crystal Technology, p.100 (Sendai, 2000).
5. S. Ashihara, T. Shimura, and K. Kuroda, “Observation of nonlinear phase modulation in femtosecond pulses by cascaded second-order nonlinearities and the influence of temporal walk-off,” Proceedings of the 7th international Workshop on Femtosecond Technology, p. 130 (2000).

6. S. Ashihara, J. Nishina, T. Shimura, and K. Kuroda, "Spectrum broadening in femtosecond pulses by cascaded second-order nonlinearity," IEEE LEOS Annual Meeting Conference Proceedings, Vol.2, pp.517-518 (2000).
7. R. Fujimura, S. Ashihara, O. Matoba, T. Shimura, and K. Kuroda, "Enhancement of non-volatile recording by an external field in doubly doped Lithium Niobate," Trends in Optics and Photonics **62**, Photorefractive effects, materials, and devices, pp.212-216 (Wisconsin, 2001).
8. S. Ashihara, J. Nishina, T. Shimura, and K. Kuroda, "Femtosecond pulse compression using cascaded second-order nonlinearities in lithium iodate," Technical Digest of Pacific Rim Conference on Lasers and Electro-Optics, Vol.2 pp.510-511 (2001).
9. S. Ashihara, J. Nishina, T. Shimura, K. Kuroda, "Temporal soliton compression in beta-barium borate," OSA Topical Meeting on Nonlinear Guided Waves and Their Applications, NLMA4-1 (Stresa, 2002).
10. S. Ashihara, J. Nishina, T. Shimura, K. Kuroda, "Femtosecond measurement of nonlinear refraction in periodically-poled lithium tantalate," OSA Topical Meeting on Nonlinear Guided Waves and Their Applications, NLMD41-1 (Stresa, 2002).
11. S. Ashihara, T. Shimura, K. Kuroda, N. E. Yu, S. Kurimura, K. Kitamura, J. H. Ro, M. Cha, and T. Taira, "Femtosecond pulse compression using cascaded quadratic nonlinearities in periodically-poled lithium niobate," Technical Digest of The 1st NIMS International Conference, pp.45-46 (Tsukuba, 2003).
12. S. Ashihara, T. Shimura, K. Kuroda, N. E. Yu, S. Kurimura, K. Kitamura, J. H. Ro, M. Cha, and T. Taira, "Femtosecond cascaded quadratic nonlinearities under simultaneous quasi-phase-matching and group-velocity-matching," Technical Digest of Conference on Lasers and Electro-Optics, CThU2, (Baltimore, 2003).
13. M. Ikeda, S. Ashihara, T. Shimura, and K. Kuroda, "Generation of broadband mid-infrared femtosecond pulses with periodically-poled lithium niobate," Technical Digest of Conference on Lasers and Electro-Optics, CMO2 (Baltimore, 2003).
14. N. E. Yu, S. Kurimura, K. Kitamura, J. H. Ro, M. Cha, S. Ashihara, T. Shimura, K. Kuroda, and T. Taira, "Frequency doubling of fs-pulses with simultaneous group velocity and phase velocity matching in MgO-doped periodically poled lithium niobate," Technical Digest of Conference on Lasers and Electro-Optics, CMO4 (Baltimore, 2003).
15. S. Ashihara, T. Shimura, K. Kuroda, N. E. Yu, S. Kurimura, K. Kitamura, J. H. Ro, M. Cha, and T. Taira, "Simultaneous compression of fundamental and second harmonic pulses in periodically-poled lithium niobate," The 10th International Workshop on Femtosecond Technology, TP-35 (Chiba, 2003).
16. S. Ashihara, M. Ikeda, T. Shimura, and K. Kuroda, "Femtosecond mid-IR pulse generation by PPLN-based optical parametric amplifier," The 10th International Workshop on Femtosecond Technology,

TC-2, (Chiba, 2003).

17. M. -S. Nomura, M. Arita, S. Ashihara, S. Kako, M. Nishioka, Y. Arakawa, T. Shimura, and K. Kuroda, "Thickness dependence of transient absorption spectrum for InGaN thin films," Proc. 5th International Conference on Nitride Semiconductors, LN-P13 (Nara, 2003).

18. M. -S. Nomura, M. Arita, S. Ashihara, S. Kako, M. Nishioka, Y. Arakawa, T. Shimura, and K. Kuroda, "Thickness dependence of transient absorption spectrum for InGaN thin films," 22nd Electronic Materials Symposium, (Moriyama, 2003).

学会発表(国内)

1. 芦原聡, 加藤純一, 的場修, 志村努, 黒田和男, "ピコ秒パルスを用いた相互励起型位相共役," 第44回応用物理学関係連合講演会予稿集, p.946 (1997).

2. 芦原聡, 加藤純一, 的場修, 志村努, 黒田和男, 山口一郎, "屈折率格子共有による多色二重位相共役鏡," 第45回応用物理学関係連合講演会予稿集, p.1020 (1998).

3. 芦原聡, Kestutis Jarasiunas, 岡田佳子, 的場修, 志村努, 黒田和男, "バクテリオロドプシンを用いたピコ秒光パルスの電場自己相関測定," 第59回応用物理学会学術講演会予稿集, p.946 (1998).

4. 飯田恭弘, 芦原聡, 志村努, 黒田和男, A. A. Kamshilin, "フォトリフラクティブ GaP 結晶による適応型スペックル相関フィルター," 第22回光波センシング技術研究会講演論文集, pp.121-127 (1998).

5. 飯田恭弘, 芦原聡, 志村努, 黒田和男, A. A. Kamshilin, "フォトリフラクティブ GaP 結晶による適応型スペックル相関フィルター," 第46回応用物理学関連連合講演会予稿集, p.1078 (1999).

6. 飯田恭弘, 芦原聡, 志村努, 黒田和男, A. A. Kamshilin, "フォトリフラクティブ GaP 結晶による適応型スペックル相関フィルター(2)," 第60回応用物理学会学術講演予稿集, p.882 (1999).

7. 山田朋宏, 藤村隆史, 芦原聡, 的場修, 八木生剛, 志村努, 黒田和男, "Doubly doped 結晶におけるホログラフィック不揮発記録の数値解析," 第47回応用物理学関係連合講演会予稿集, p.986 (2000).

8. 藤村隆史, 丁景福, 芦原聡, 的場修, 久保田英志, 今井欽之, 八木生剛, 志村努, 黒田和男, "Ru:SBN のフォトリフラクティブ特性," 日本光学会年次学術講演会予稿集, pp.119-120 (2000).

9. 藤島丈泰, 芦原聡, 的場修, 山下洋八, 志村努, 黒田和男, "リラクサー系材料強誘電体 PZN の光学特性(3)," 日本光学会年次学術講演会予稿集, pp.311-312 (2000).

10. 芦原聡, 志村努, 黒田和男, "フェムト秒光パルスにおけるカスケード非線形効果の測定," 第47回応用物理学関連連合講演会予稿集, p.1104 (2000).

11. 芦原聡, 仁科潤, 志村努, 黒田和男, "カスケード非線形効果によるフェムト秒光パルスのスペクトル広帯域化," 第61回応用物理学会学術講演会, p.945 (2000).

12. 藤村隆史, 芦原聡, 的場修, 八木生剛, 志村努, 黒田和男, "第48回応用物理学関連連合講演会予稿集, p.990 (2001).

13. 芦原聡, 仁科潤, 志村努, 黒田和男, “カスケード2次非線形光学効果を用いたフェムト秒光パルス圧縮,” 第48回応用物理学関連連合講演会予稿集, p.1096 (2001).
14. 仁科潤, 芦原聡, 志村努, 黒田和男, “カスケード2次非線形光学効果を用いたフェムト秒光スイッチング,” 第48回応用物理学関連連合講演会予稿集, p.1176 (2001).
15. 仁科潤, 芦原聡, 志村努, 黒田和男, “疑似位相整合素子を用いたフェムト秒光パルスの第2高調波発生,” 日本光学会年次学術講演会予稿集, pp.61-62 (2001).
16. 芦原聡, 仁科潤, 志村努, 黒田和男, “カスケード非線形圧縮パルスの振幅・位相測定,” 第62回応用物理学会学術講演会予稿集, p.814 (2001).
17. 仁科潤, 芦原聡, 志村努, 黒田和男, 杉田知也, 水内公典, 山本和久, “周期分極反転タンタル酸リチウム素子を用いたカスケード非線形効果の測定,” 第49回応用物理学関連連合講演会予稿集, p.1089 (2002).
18. 芦原聡, 志村努, 黒田和男, Nan Ei Yu, 栗村直, 北村健二, Myoungsik Cha, 平等拓範, “周期分極反転 $\text{MgO}:\text{LiNbO}_3$ 素子における群速度整合型フェムト秒カスケード非線形効果,” 第63回応用物理学会学術講演会予稿集, p.1044 (2002).
19. 芦原聡, 藤岡伸秀, 志村努, 黒田和男, “非平行型疑似位相整合法によるフェムト秒光パルスの群速度整合第二高調波発生,” 第63回応用物理学会学術講演会予稿集, p.1044 (2002).
20. 池田学, 芦原聡, 志村努, 黒田和男, “周期分極反転 LiNbO_3 を用いた広帯域中赤外フェムト秒パルスの発生,” 第63回応用物理学会学術講演会予稿集, p.954 (2002).
21. 丁景福, 本多加代子, 的場修, 芦原聡, 務台俊樹, 志村努, 荒木孝二, 黒田和男, “PVK 系ポリマーのフォトリフレクティブ効果の温度依存性,” 第63回応用物理学会学術講演会予稿集, p.1122 (2002).
22. 芦原聡, 志村努, 黒田和男, Nan Ei Yu, 栗村直, 北村健二, Myoungsik Cha, 平等拓範, “周期分極反転 $\text{MgO}:\text{LiNbO}_3$ 素子を用いた2次非線形光ソリトン圧縮,” 第50回応用物理学関連連合講演会予稿集, p.1176 (2003).
23. 池田学, 芦原聡, 志村努, 黒田和男, “周期分極反転 LiNbO_3 を用いた広帯域中赤外フェムト秒パルスの発生(II),” 第50回応用物理学関連連合講演会予稿集, p.1191 (2003).
24. 藤岡伸秀, 芦原聡, 志村努, 黒田和男, “周期分極反転 LiNbO_3 の非平行配置を用いたフェムト秒第2高調波発生,” 第64回応用物理学会学術講演会 (2003).
25. 丁景福, 小澤舞, 赤坂哲郎, 芦原聡, 志村努, 荒木孝二, 黒田和男, “PVK 系ポリマーのフォトリフレクティブ効果の温度依存性(2),” 第64回応用物理学会学術講演会 (2003).
26. 野村政宏, 有田宗貴, 芦原聡, 加古敏, 西岡政雄, 荒川泰彦, 志村努, 黒田和男, “過渡吸収分光法による InGaN 薄膜におけるキャリアダイナミクスの研究,” 第64回応用物理学会学術講演会 (2003).

関連する研究補助金

1. 科学研究費補助金奨励研究 (A), “2次非線形光学効果のカスケードイングによる超高速光スイッチング素子の研究,” 研究期間: 平成12年度～平成13年度.
2. 科学研究費補助金若手研究 (B), “2次非線形フォトニック結晶を用いたフェムト秒光パルスの波長変換,” 研究期間: 平成14年度～平成15年度.