

科学研究費助成事業 研究成果報告書

平成 30 年 5 月 31 日現在

機関番号：32612

研究種目：基盤研究(C) (一般)

研究期間：2015～2017

課題番号：15K05547

研究課題名(和文) 新しい広帯域かつ狭線幅な赤外分光法

研究課題名(英文) Novel infrared broadband and high-resolution spectroscopy

研究代表者

長谷川 太郎 (Hasegawa, Taro)

慶應義塾大学・理工学部(矢上)・講師

研究者番号：80289305

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 3,800,000円

研究成果の概要(和文)：近赤外波長域の光を吸収する分子の、高分解能で広帯域のスペクトル線を短時間に記録する分光方法を開発した。この方法は、「光周波数コム」を直接分光用光源とする今までにない分光法である。この分光法では、高分解能な分光を高速かつ高感度に行うことができる。また、光周波数コムモード密度を向上させるため、位相変調を用いた通倍法を開発した。この2つの成果を組み合わせることで、従来よりも高い分解能での光周波数コム直接分光を実施できた。

研究成果の概要(英文)：We developed a fast spectroscopic scheme for high-resolution and broadband spectroscopy of molecules absorbing in the near infrared light. This scheme is a new spectroscopy using "optical frequency comb" as a light source for spectroscopy. With this spectroscopy, high-resolution, fast, and sensitive spectroscopy can be performed. In addition, in order to improve the mode density of the optical frequency comb, a multiplication scheme using phase modulation was developed. By combining these two schemes, direct spectroscopy of optical frequency comb with higher resolution than before can be performed.

研究分野：高分解能レーザー分光

キーワード：光周波数コム 高分解能分光 ヘテロダイン分光 位相変調

1. 研究開始当初の背景

近赤外波長域は多数の気体分子の振動回転遷移が存在し、その分光情報は環境測定・基礎物理定数の測定・絶対周波数測定の基準など重要な応用が含まれる。特に、エナンチオマー分子(光学異性体)の赤外線遷移周波数を精密に測定することにより、パリティ対称性の破れによるエネルギー準位の分裂が観測できる可能性がある。このような観測のためには、広帯域かつ高分解能な分光法が必要とされている。

従来の広帯域分光法の代表として、フーリエ変換赤外分光法(FT-IR)があるが、この手法を上記のような応用に使用するには分解能が不足しており、不可能である。近年開発が著しい広帯域分光法であるデュアルコム分光法でも、現状ではFT-IRと同程度の分解能しか得られていない。高い分解能を持つ新しい広帯域分光法の開発が求められている。

2. 研究の目的

上記の背景を踏まえ、近赤外波長域に振動回転遷移を持つ分子の、狭線幅かつ広帯域のスペクトル線を短時間に記録する分光方法を開発することが目的である。そのために、「光周波数コム」を直接分光用光源とする高分解能分光法を開発する。光周波数コムは繰り返し周波数(f_{rep})が正確に制御された超短パルス発振モードロックレーザーであり、広帯域にわたって等間隔に離れた多数の周波数で同時に発振するレーザーである。その広帯域性から分光用光源として利用され、デュアルコム分光法はそのような分光法の1つである。

デュアルコム分光法をさらに高分解能にすることは、データ量の増加・検出感度の問題から現実的ではないので、本研究では連続発振レーザー(CW レーザー)を使用する異なったアプローチをとる。

3. 研究の方法

(1) 光周波数コムによる高分解能分光に適した分光法を開発する。デュアルコム分光法での分解能は現状では約60 MHz程度である。本研究では、1 MHz以下の分解能を持つ分光法を開発したい。デュアルコム分光の分解能をそのまま向上させるのは技術的困難が伴うので、本研究では新しい分光法を試みる。この方法では、分光情報を持つ光周波数コムの各発振モード強度を、CW レーザーとのうなりを測定する(ヘテロダイン分光)ことで検出する。この方法では、分光帯域幅を制限することと引き換えにデータ点数を減らすことができ、かつ、高速な測定が可能になるので、本研究の目的のための高分解能分光には適した分光法である。

(2) 上記のCW レーザーとのヘテロダイン分光でも、分解能は根本的に光周波数コムのモード間隔(すなわちパルスレーザーの繰り

返し周波数)で決定される。高分解能分光にするためには、繰り返し周波数が遅い光周波数コムを準備する必要がある。しかし、そのような光周波数コムの製作は技術的に困難である。そこで、本研究では変調技術の応用によって実質的に繰り返し周波数が遅い(モード密度が高い)光周波数コムを作ることを試みる。変調方法には、強度変調と位相変調を使う方法があるが、本研究ではその双方を試みる。

(3) モード密度を高くした光周波数コムを使って、(1)で開発したCW レーザーとのヘテロダイン分光を行い、高分解能分光が実現できることを示す。

4. 研究成果

(1) 光周波数コムによる高分解能分光に適した分光法として、CW-光周波数コムヘテロダイン分光法を開発した。この方法の原理を図1に示す。

図1(上)に示すように、光周波数コムのモードが赤外線の領域に等間隔で広がっている。この光には分光情報が含まれており、一部の周波数ではモードの強度が減少している。この周波数は非常に高い(10^{14} Hz以上)なので、電気的に検出できない。この光周波数コムにCW レーザーを重ね、光検出器で検出する。すると、両方のレーザーの差の周波数(うなり周波数)で光強度が変化する。CW レーザーの周波数は1つしかないので、うなり周波数には、最も小さい差周波数(図1(下)の f_b)のほか、 $f_{rep} \pm n f_b$ (n は整数)の成分も含まれる。したがって、この電気信号をフーリエ変換すると、元の光周波数コムのスペクトルが、0から順番に正負交互に現れる。この結果から、光周波数コムのスペクトルを再現することができ(図1(下))、気体分子による吸収スペクトル

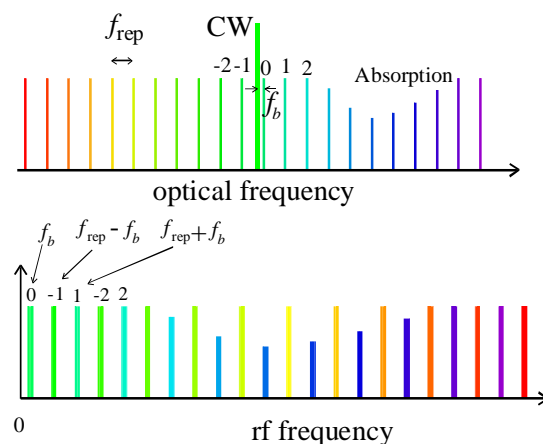


図1(上) 光周波数コムの発振モード(虹色に分布している)とCW レーザーの発振モード(中央の長い1つだけのモード)。光周波数コムのモードは気体分子の吸収のために一部のモード強度が減少している。(下) うなり信号をフーリエ変換したスペクトル。

線を観測できる。この時、測定できる周波数範囲(分光帯域)は、うなり信号を検出する光検出器の応答速度で決まる。したがって、なるべく高速な光検出器を使用する必要がある。

この分光法を使って、メタン分子の波長1650 nm 付近にある振動回転遷移のスペクトルを観測した。この実験装置を図2に示す。

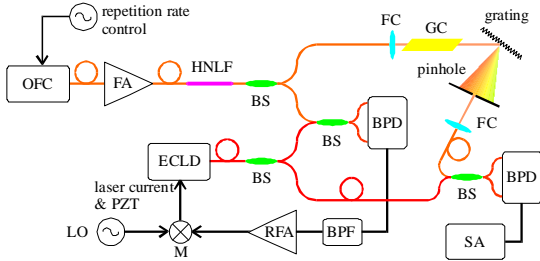


図2: CW-光周波数コムヘテロダイン分光法のセットアップ。

光周波数コム(OFC)からの光はメタン分子が封入されたガラスセル(GC)を通り、CWレーザー(ECLD)からの光と混合し、さらに光検出器(BPD)でうなり信号を測定する。うなり信号を検出する系が2つあるが、1つはCWレーザーの発振周波数安定化のために使用し、もう一方はメタンの吸収スペクトルデータ取得のために使用する。CWレーザーの発振周波数安定化の結果、それは1 Hz以下の精度で安定に制御できるようになった。また、メタンの吸収スペクトルデータはスペクトラムアナライザーで解析された。その結果を図3に示す。このスペクトル強度は、CWレーザーに最も近い光周波数コムのモードから順番に、その強度を表している。

このそれぞれのスペクトルのモード強度を周波数ごとに並べ替えると、元の光周波数コムのモード強度の分布を再構成できる。これを図4に示す。再構成されたスペクトルには、メタンの吸収スペクトルも含まれている。

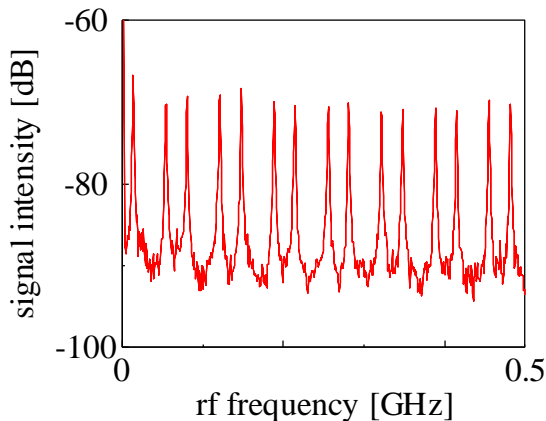


図3: CWレーザー-光周波数コムヘテロダイン分光法によるうなり信号のスペクトル。

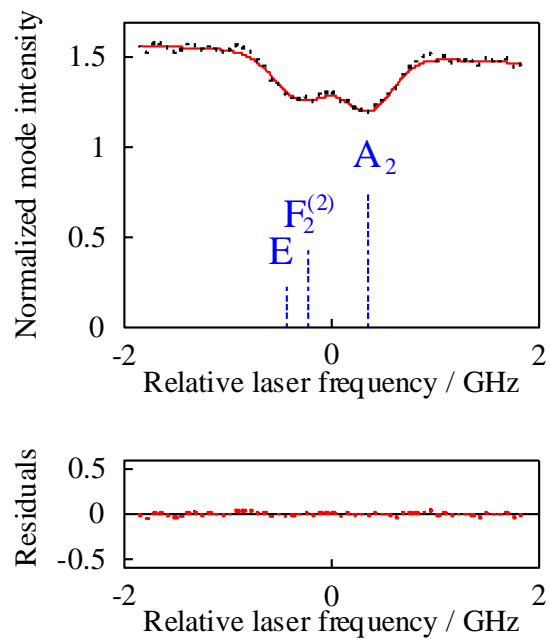


図4: 図3の結果をもとに再構成されたメタンの吸収スペクトル。青の線はメタンの吸収スペクトルの中心周波数の位置と強度を表す。赤い線はドップラー広がりをしているとして計算されたスペクトル線を表す。下の図は測定結果と計算結果の差を表す。

図4では実質的に0.3 ms程度でスペクトル線を取得することが可能である。現状では、スペクトラムアナライザーを使用した原始的な方法でスペクトル解析をしているため、約30秒ほどのデータ取得時間を要しているが、時間領域測定を実施すれば、実際に0.3 msでのデータ取得も可能である。

この成果は引用文献①にまとめて公表済みである。

(2)上記(1)の結果では、スペクトル分解能が66.8 MHzである。これは、使用している光周波数コムの繰り返し周波数で決まっている。これを小さくするために、強度変調と位相変調を用いた。本研究では双方の変調方法を試みたが、位相変調のほうが優れた方法であったので、ここでは位相変調の方法だけについて説明する。強度変調では、光強度が大きく減少してしまう一方で、位相変調ではトータルの光強度が全く変わらないため、光強度の面からは位相変調のほうが優れた方法である。

位相変調の方法では、光周波数コムの繰り返し周波数に同期した位相変調を加えると、変調前の光周波数コムのモード(図5上)が、位相変調によりサイドバンドを生じ、それが図5上のモード間を満たすように分布する。その結果、光周波数コムのモード密度が整数倍になる。このようにしてモード密度をn倍化した光周波数コムを使って(1)の分光を行えば、高分解能分光が可能となる。

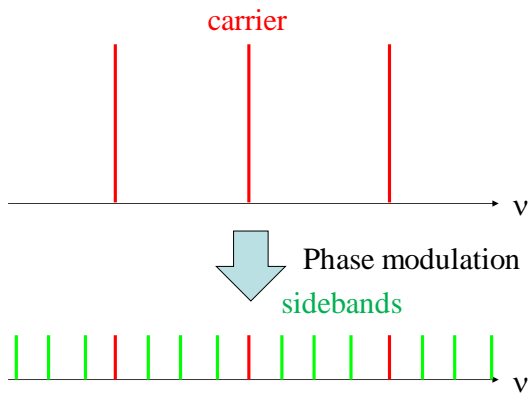


図 5: 位相変調による光周波数コムのモード密度通倍化の原理。

このモード密度通倍化のためには、図 5 に示すようにサイドバンドによって作られるモード強度ともともと存在するキャリアモードの強度がすべて等しいことが望ましい。そのような変調信号で位相変調を加える必要がある。そのような変調信号の一例を図 6 に示す。図 6 の変調信号は、モード密度を 16 倍にする信号である。このほかにも、いろいろな通倍化を行うことができるが、特に N^2 通倍が精度よく行える (N は整数)。

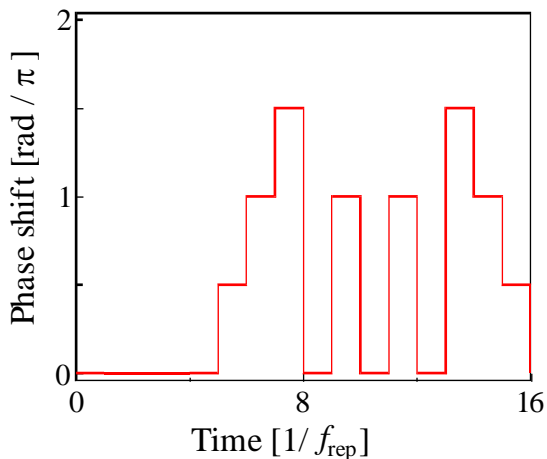


図 6: 光周波数コムのモード密度を 16 倍にするための位相変調信号。

この 16 倍モード密度通倍化を行った。位相変調を印加するために、光導波路を用いた電気光学変調器を使用した。これは、比較的小さい電圧でも十分に大きな変調を印加できる。変調信号は、任意波形発生器に図 6 の信号をプログラムして発生させた。この時、任意波形発生器のタイミングと光周波数コムのパルス発生タイミングを一致させておく必要がある。そのため、光周波数コムの繰り返し周波数と任意波形発生器を同期させるためのフィードバック回路を作製した。このフィードバックメカニズムにより、数日にわたっての同期をとれるようになった。

次に、モード密度通倍化について確認した。これは、図 2 と同じセットアップで確認できる。すなわち、CW レーザーとのうなり周波

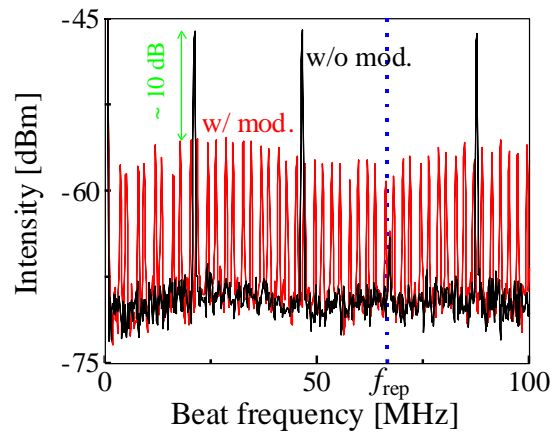


図 7: 16 倍に光周波数コムのモード密度を通倍化した時のうなり信号スペクトル。黒は変調前、赤は変調後のスペクトルを表す。

数を測定すれば、図 3 よりも 16 倍多くのスペクトルが観測されるはずである。実際に、図 7 に示すように、変調前のうなり信号のスペクトル(黒)が、変調により 16 倍の密度のスペクトル(赤)となって観測された。これにより、16 倍通倍が実施できた。この時、モード強度は $1/16$ になる。これと同様に、48 倍通倍、64 倍通倍にも成功した。

(3) (2)で達成できた高分解能光周波数コムを使って、メタンの吸収スペクトルを図 4 と同様に記録した。この結果を図 8 に示す。モード密度が 16 倍になったため、測定点が 16 倍になり、より詳細なスペクトルを記録するこ

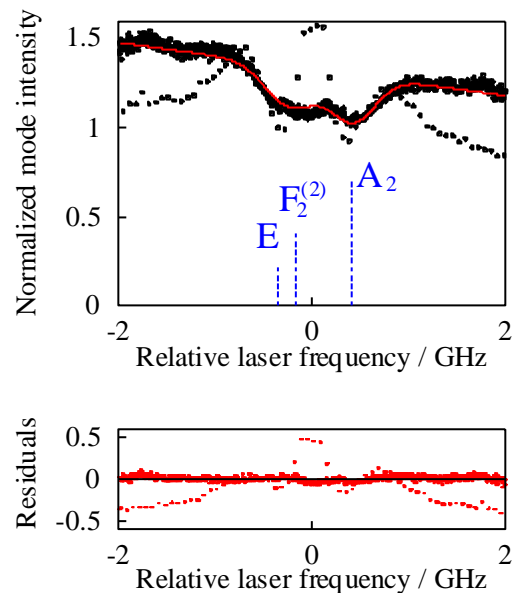


図 8: 図 4 と同様に再構成されたメタンの吸収スペクトル。図 7 のようにモード密度が 16 倍に通倍化された光周波数コムを使用した。青の線はメタンの吸収スペクトルの中心周波数の位置と強度を表す。赤い線はドップラー広がりをしていて計算されたスペクトル線を表す。下の図は測定結果と計算結果の差を表す。

とができる。しかし、モード強度が減少してしまうため、残念ながら信号強度が減少し、相対的にノイズが増加する結果になる。これは測定点が増えるために避けることができない対価である。CW-光周波数コムヘテロダイン分光は高速な分光法なので、多数回の測定が可能である。そのため、多数回の平均をとれば、測定時間を少し犠牲にしてノイズを減少させることができる。

(2)ではモード密度の64倍も達成している。この光周波数コムを使用すれば、分解能が $66.8 \text{ MHz} / 64 = 1.04 \text{ MHz}$ での高分解能分光が達成できたことになる。現状では、これには測定時間がかかりすぎて現実的ではない。しかし、測定時間がかかるのはスペクトラムアナライザをスペクトル解析に使用しているためであり、高速デジタイザを使用した時間領域データ取得を行えば、容易に高分解能分光に適用することができる。

(4)以上の研究成果により、従来の光周波数コムによる直接分光法を飛躍的に高分解能化する方法の開発に成功した。この成果は、今後高分解能非線形分光にも光周波数コム直接分光を適用できることのみならず、リモートセンシングにより大気中の気体の温度を光学的に高速に測定する手段を提供する。

<引用文献>

① Taro Hasegawa and Hiroyuki Sasada, "Direct-comb molecular spectroscopy by heterodyne detection with continuous-wave laser for high sensitivity", *Opt. Express*, **25**, A680-A688 (2017).

5. 主な発表論文等

(研究代表者、研究分担者及び連携研究者には下線)

[雑誌論文] (計 5 件)

① Daisuke Kanai and Taro Hasegawa, "A radio-frequency ion trap with string electrodes", *Rev. Sci. Instrum.*, **89**, 023106 (2018). DOI: 10.1063/1.5011709 査読あり

② Taro Hasegawa and Hiroyuki Sasada, "Direct-comb molecular spectroscopy by heterodyne detection with continuous-wave laser for high sensitivity", *Opt. Express*, **25**, A680-A688 (2017). DOI: 10.1364/oe.25.00a68010 査読あり

③ Taro Hasegawa, "Optical bistability induced by Gouy phase shift", *J. Opt. Soc. Am. B*, **34**, 1319-1326 (2017). DOI: 10.1364/JOSAB.34.001319 査読あり

④ Taro Hasegawa, "Broadened optical spectrum of repetition-rate-multiplied erbium-doped fiber comb", *J. Opt. Soc. Am. B*, **33**, 2057-2061 (2016). DOI: 10.1364/JOSAB.33.002057 査読あり

⑤ Taro Hasegawa, "Nonlinear absorption and phase shift in coupled optical cavities", *Phys. Rev. A*, **92**, 043815 (2015). DOI: 10.1103/PhysRevA.92.043815 査読あり

[学会発表] (計 9 件)

① 長谷川太郎 「ガラス板を使用した外部共振器型半導体レーザー」日本物理学会第 73 回年次大会、2018 年 3 月 22-25 日、東京理科大学

② 長谷川太郎 「光周波数コムの低繰り返し化による高いモード密度」日本物理学会 2017 年秋季大会、2017 年 9 月 21-24 日、岩手大学

③ Taro Hasegawa and Hiroyuki Sasada, "Repetition-rate-divided optical frequency comb by amplitude and phase modulations", UEC-ERATO Symposium and Expanded IOS Project Meeting, 2017 年 8 月 26 日、電気通信大学

④ 長谷川太郎 「Gouy 位相シフトによる光不安定性」日本物理学会第 72 回年次大会、2017 年 3 月 17-20 日、大阪大学

⑤ Taro Hasegawa and Hiroyuki Sasada, "Direct comb spectroscopy by heterodyne detection with a continuous-wave laser for high spectral resolution", *Light, Energy and the Environment Congress*, 14-17, Nov., 2016, Leipzig, Germany.

⑥ 長谷川太郎、佐々田博之 「光周波数コムを分光用光源として使用する高分解能分光」日本物理学会 2016 年秋季大会、2016 年 9 月 13-16 日、金沢大学

⑦ 金井大輔、長谷川太郎 「蛍光観測できる立体角が大きいイオントラップ」日本物理学会 2016 年秋季大会、2016 年 9 月 13-16 日、金沢大学

⑧ 長谷川太郎、佐々田博之 「周波数フィルタリングされた光周波数コムの広帯域化 II」日本物理学会 第 71 回年次大会、2016 年 3 月 19-22 日、東北学院大学

⑨ 長谷川太郎 「第 2 次高調波発生用結合共振器系における非線形吸収」日本物理学会 2015 年秋季大会、2015 年 9 月 16-19 日、関西大学

6. 研究組織

(1) 研究代表者

長谷川 太郎 (HASEGAWA, Taro)

慶應義塾大学・理工学部・講師
研究者番号：80289305

(2)研究分担者

佐々田 博之 (SASADA, Hiroyuki)
慶應義塾大学・理工学部・教授
研究者番号：30146576