

## 科学研究費助成事業 研究成果報告書

令和 2 年 6 月 9 日現在

機関番号：11301

研究種目：若手研究(B)

研究期間：2017～2019

課題番号：17K14120

研究課題名(和文) 自立安定性を備えた光共振器による微量水分計の開発

研究課題名(英文) Development of of trace moisture meter using an optical resonant cavity with self-resonating mechanism

研究代表者

上杉 祐貴 (Yuuki, Uesugi)

東北大学・多元物質科学研究所・助教

研究者番号：60780682

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 3,400,000円

研究成果の概要(和文)：本研究において自立安定性を備えたフィードバックフリー共振器(FFC)を共振器増幅吸収分光法に適用するための基礎的な装置開発および検討を行った。低フィネス共振器を用いたFFCにおいて、縦シングルモード発振による単一周波数レーザーの自立安定な光共振器内への蓄積動作を初めて実現することができた。同時に、モードホップの後にも発振波長が特定の2波長に限定されるといった特徴的な現象が見いだされた。この系の解析は光工学の観点からも興味深い課題である。FFCのモード同期化による光コム分光法への応用については、その実現性は今のところ技術的な課題が多く困難であることが示唆された。

研究成果の学術的意義や社会的意義

光共振器は高感度の気体中分子計測を実現可能な光学装置であり、超高真空を用いる科学研究や最先端の半導体製造プロセス、環境計測における大気二酸化炭素同位体の測定など、我々の生活に直結する先端技術に利用することができる。本研究では、FFCの手法を用いることで、計測応用に有利な単一波長のレーザーを光共振器に安定に蓄積できることを初めて実証した。この技術を発展させることで、従来では環境雑下での取り扱いが難しかった光共振器による吸収分光計測装置を、産業現場や環境計測のためのアウトフィールドでも安定に利用することが可能になると期待される。

研究成果の概要(英文)：In this study, single-longitudinal-mode and mode-locked feedback-free cavities (FFCs) were developed to investigate their applicability to cavity enhanced absorption spectroscopy. With a relatively low finesse cavity, a single-frequency laser was stored in the cavity by means of the FFC operating in single-longitudinal-mode operation for the first time. We was that the system could laser-oscillate at only two specific wavelengths, suggesting that the realized laser-oscillation mode depends on a longitudinal mode of a cavity-outer optical path, which has not concerned so far. On the other hand, it was found that the feasibility of applying the scheme of the FFC to optical combs spectroscopy may be still difficult due to technical challenges on the development of mode-locked FFCs.

研究分野：光・量子ビーム物理

キーワード：光共振器 吸収分光 ファイバーレーザー レーザー発振器

## 様式 C - 19、F - 19 - 1、Z - 19 (共通)

### 1. 研究開始当初の背景

高感度の気体中分子計測技術は、超高真空を用いる科学研究や最先端の半導体製造プロセス、環境計測における大気二酸化炭素同位体の測定など、我々の生活に直結する先端技術に欠かすことができない。そのため、より高感度かつ取り扱いの容易な計測技術の確立は重要な研究課題である。この要求に対して近年、半導体レーザーやファイバーレーザー技術の進展によって、共振器増幅吸収分光法を用いた気体中分子計測技術の開発が盛んに行われている。光コム分光法と組み合わせた広スペクトル範囲の瞬時計測技術など、画期的な成果も得られているが、極限の感度を達成するのに必要な高フィネスの光共振器の取り扱いに関しては、使用環境の外乱に敏感であるという運用上の問題を未だ克服することができていない。研究室環境下ではフィネス 100 万級の光共振器を実現することが可能であり、これを産業現場や環境計測のためのアウトフィールドでも安定に利用することができれば、当該分野に大きな革新になる。

### 2. 研究の目的

過去に申請者が独自に開発した自立安定性を備えた光共振器、Feedback-Free Cavity (FFC) [1]の手法を用いて、高フィネス共振器を外乱下でも運用可能な新しい共振器増幅吸収分光装置を開発する。その具体的な目標感度として、気体中残留水分の評価に利用される微量水分の国家標準を参考にした。これまでにフィネス 65 万の光共振器を用いた縦マルチモード発振に成功しており、本研究期間において(1)吸収分光に必要な単一周波数の縦シングルモード発振の実現を目指す。共振器のフィネスを段階的に向上しながら、その挙動を解析する。また周波数掃引など分光器としての利用に必要な機能の実現可能性についても評価する。並行して(2)FFC による共振器増強型の光コム分光法の実現可能性についても調査する。FFC にモード同期機構を組み込むことで共振器増幅された光コム装置を実現することが可能であるが、FFC におけるモード同期動作はこれまでに成功例がなく、その実現可能性について、まずは数値計算的な検討が必要である。これら光学系の開発成果を応用して、気体中分子計測のデモンストレーションを行う。

### 3. 研究の方法

FFC はリングレーザー発振器中にレーザー蓄積用の光共振器を直列に挿入して実現する。特に高フィネスの光共振器では入射レーザー光との結合効率を高めることが難しいため、光損失が大きい場合にもレーザー発振が実現するように、増幅利得の大きなファイバーレーザー増幅器を使用して開発を行った。

(1) 縦シングルモード発振の実現のためには、系の正味の増幅利得帯域中に発振可能な縦モードが一つだけ存在する条件を構築しなければならない。そのために反射帯域 15 GHz (半値全幅) の FBG (Fiber Bragg Grating) とサーキュレータを組み合わせることでバンドパスフィルタを構築した。また光共振器は共振器長さを 1 cm に設定し、縦モード間隔が約 8 GHz となるように設計した。

(2) モード同期 FFC の検証では、スプリットステップフーリエ法によるレーザー発振器中の光パルス成長の計算コードを開発した。これに典型的な  $1/4$  厚で積層された誘電体多層膜ミラーで構成された光共振器の伝達関数を適用し、モード同期の実現性について評価した。また、協力関係にある他の光共振器開発グループと共同でモード同期 FFC の実験的検証にも取り組んだ。

### 4. 研究成果

当初の予定では水分子の吸収波長帯域である  $2 \mu\text{m}$  近傍で発振が可能なツリウム添加ファイバーを使用する予定であったが、研究開始当初ではまだ高価な素子であったため、代わりに  $1 \mu\text{m}$  帯域のイッテルビウム添加ファイバーで FFC の開発に取り組むことにした。この帯域ではイッテルビウムの添加濃度の高い利得の大きな増幅器を構成でき、また励起用のレーザーダイオードや合波器、アイソレーターなどの構成光学素子を容易に調達することができる利点がある。特に高フィネス光共振器用の高反射率ミラーを過去に使用した  $1 \mu\text{m}$  帯のミラーを使用することができ、新規に作製する必要がないため本研究の予算規模で実験を進めることができた。開発における具体的な波長は、大気中二酸化炭素の同位体計測への将来的な応用を見込んで 1064 nm に設定した。

(1) 縦シングルモード FFC を実現するために図 1 に示す光学系を開発した。イッテルビウム添加ファイバー (YDF) を合波器 (WDM) を介して 976 nm の励起レーザーダイオード (Pump LD) で励起する。ファイバー空間と自由空間をコリメーションレンズで結合し、アイソレータ (Isolator)、ファブリペロー型の光共振器 (FP cavity)、半波長板 (HWP)、偏光ビームスプリッタ (PBS) の順に配置した。自由空間においては適切なレンズ系を用いてレーザーを光共振器に結合した。再びファイバー空間に入射したレーザーはサーキュレータと中心波長 1064 nm の FBG で波長帯域を制限し、再び YDF で構成する増幅器に帰還するようしてリングレーザー発振器を構成した。アイソレータとサーキュレータは光を 1 方向にしか通さない素子であり、これによりリングレーザー発振器の周回方向が決定され、光共振器のミラーで反射した成分が逆周回方向のレーザー発振を起し、系が不安定に成るのを防いでいる。FBG 帯域の半値全幅は 15 GHz であり、対して光

共振器の縦モード間隔は約 8 GHz であり、系の正味の利得のうちに発振可能なモードが一つだけになる縦シングルモード発振の条件が実現される。自由空間ではレーザーを 99:1 の部分反射ミラーで取り出し、出力とスペクトルを観察できるようにした。また HWP と PBS の組み合わせにより取り出されたレーザーはファブリペロー干渉計(Fabry-Perot Interferometer, FPI)によるスペクトル分析器へ送られ、縦モードを解析できるようにしてある。

光共振器はまずフィネス 70 および 520 の低フィネス条件から実験を始めた。光共振器のアライメントを行い励起パワーを大きくしていくと、およそ 200 mW の段階で共にレーザー発振が実現した。この発振しきい値は一定ではなく実験中に増減した。スペクトルを確認すると FBG で設定した 1064 nm の中心波長での単一波長での発振が確認された。FPI で取得したレーザー信号を図 2 に示す。FPI のスペクトルモード間隔である 10 GHz のなかに 1 つだけ鏡面信号が確認されたことから、系が縦シングルモードで発振していることが確認できた。実験中、この共鳴信号の波高(発振レーザーのパワーに対応する)は光共振器の温度変化に応答し増減した。フィネス 70 の場合はアルミで作製した光共振器の筐体でも室温で波高は安定であったのに対し、フィネス 520 では敏感に反応した。また特定の温度では発振が完全に停止するようであり、連続的に温度を変化させると繰り返しモードホップする様子が確認された。

上記の結果は事前に期待された FFC の挙動であったが、一方で予期せぬ挙動も確認された。発振可能な光共振器の縦モード間隔は共振器長の伸縮に比例して変動する。そのため FBG で決定される 15 GHz 程度の系の正味の利得帯域の中で、温度変化に応じて FPI で観測される共鳴信号が光周波数の正負に変動する様子が観測されることを期待したが、実際は特定の 2 つの光周波数でしか共鳴信号が観測されなかった。つまり、系は大きな温度変化のもとで繰り返しモードホップするが、実現するレーザー中心波長はわずか 2 つしか存在しないことが判明した。

次にフィネス 2 万 5 千の光共振器を用いて縦シングルモード発振を試みた。熱安定性向上のために低熱膨張合金であるスーパーインバーで共振器筐体を作製した。結果、1064 nm 中心波長の FBG を挿入した状態では発振に至らなかった。光共振器のフィネスが高くなるほど発振のしきい値が高くなる傾向は先の実験 [1] でも確認された現象である。光共振器へのレーザーの結合が難しくなり共振器セクションの実効的な透過率が小さくなることがひとつの要因であると考えられる。また、高反射率のミラーは透過率  $T$  と散乱や吸収による光学損失  $A$  が同程度の大きさになる。 $T$  に対して  $A$  が無視できない場合、共振器全体の実効的な透過率は  $T/(T+A)$  となる。これもまた高フィネス共振器を使用した場合に系の発振しきい値が高くなる要因になる。対策として励起パワーを大きくしたが、目標の 1064 nm 以外の波長で寄生発振が起こるようになり、やはり発振は実現しなかった。一方、1064 nm の FBG を取り除くと、系は 1035 nm 近傍で縦マルチモード発振した。発振動作中に光共振器内に蓄積されたレーザーの散乱光を赤外線カメラで観察した様子を図 3 に示す。YDF の利得は 1035 nm 近傍で最大であり、そこから長波長になるにつれて小さくなる。高フィネス共振器を使った FFC の実現には大きな利得と小さな損失を実現することが本質的に重要であることが確認された。

(2) FFC におけるモード同期発振の可能性を探るために数値計算と実験により検討を行った。

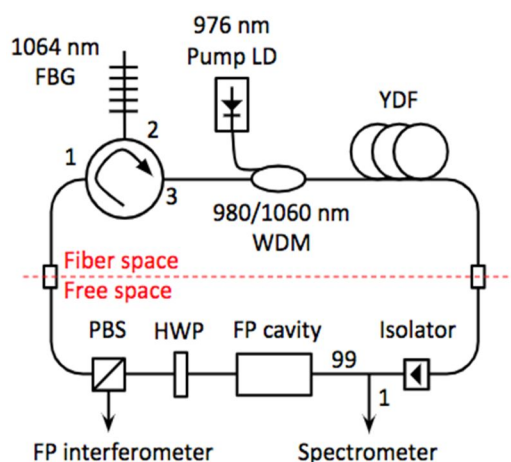


図 1. 開発した縦シングルモード発振を実現する FFC のセットアップ図。Pump LD: 励起用レーザーダイオード, YDF: イッテルビウム添加ファイバー, WDM: 合波器, FBG: ファイバーブラッググレーティング, Isolator: アイソレータ, HWP: 半波長板, PBS: 偏光ビームスプリッタ, FP cavity: 光共振器。

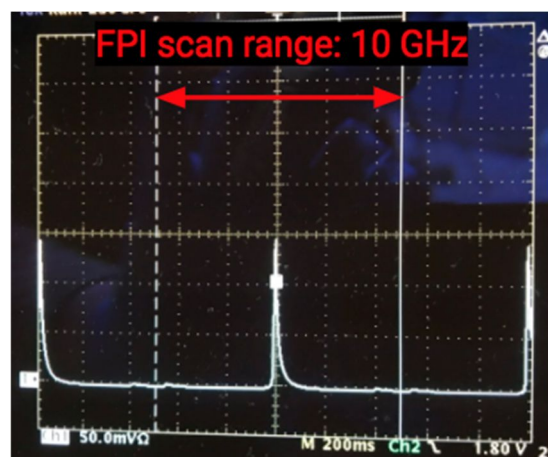


図 1. ファブリペロー干渉計(FPI)で観測した発振レーザーの共鳴信号(図中の白い波形)。FFC のモード間隔は 8 GHz である。対して FPI の掃引幅は 10 GHz であり、上図よりレーザーが縦シングルモードで発振していることがわかる。複数のモードで発振していた場合、FPI の掃引範囲内に多くの共鳴信号が観測される。

図 4 に  $1/4$  厚の誘電体を積層して得られる反射率 99.999% のミラーコートの計算結果を示す。これを用いてファブリペロー共振器の伝達関数を計算すると、群速度分散が非常に大きくなることがわかった。市販の低群遅延分散ミラーや負の分散を有するミラーの特性を使用して、同様にフィネス 100 万級の光共振器の計算を行ったが、そのような高フィネス領域ではミラーの群遅延分散の変化に敏感であり設計上の課題があることが分かった。2 次の分散まで考慮した非線形シュレディンガー方程式をスプリットフーリエ法を用いて計算し、適当な利得、過飽和吸収作用、分散補償のもとでモード同期レーザー発振の数値計算を試みたが、安定な発振を実現するパラメータを探し当てることはできなかった。石英ファイバーのゼロ分散波長から外れる 1064 nm の波長で、かつ光共振器を含む数値計算では、高次分散項を含むより精密な数値計算が要求されることが分かった。

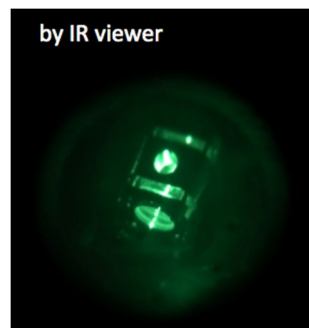


図 2. 高フィネス共振器内に蓄積されたレーザーの大気散乱光を観測したもの。波長 1035 nm であるため赤外カメラを使用して撮影した。

上記に加えて、他の光共振器開発グループとの共同研究のもと、実験的に FFC のモード同期を実現することを試みた。その結果、フィネス 300 以下の光共振器を用いて、数秒程度の断続的なパルス形成が実現することを確認した[2]。モード同期はシミュラリトン型およびソリトン型のモード同期リングレーザーを基に開発を行い、いずれの場合も同様の結果を得ることができた。これらの系では光共振器の縦モード間隔と外周部のリング光路で形成する縦モード間隔が、正確に整数倍に保たれている必要がある。縦シングルモード発振の結果より、共振器筐体の熱安定性が重要であることが判明しており、パルス形成の持続時間を長くして発振を安定化するための指針が得られている。しかし担当者の異動などによる人的資源の関係で、本研究期間内にはモード同期系の改良に取り掛かることはできなかった。

(3) 本研究結果の考察とまとめを以下に示す。

縦シングルモード発振の試験では、本研究期間においてその実現に初めて成功した。今回実証したフィネスは目標とする 100 万級のフィネスに比べると小さいものの、従来の共振器安定化の手法では実現し得ない、外乱に対する高い自己安定性を示した。ここで言う安定性とは、温度変化などの外的要因で光共振器の共鳴、つまりレーザー発振が一度停止した後に、再び自立的に発振が再始動することをいう。再始動すると前のレーザー発振の状態と位相関係がなくなり、また中心波長も変化してしまうが、本研究では系が 2 つの波長でしか発振しない想定外の現象が確認された。適切に系を設計することで、モードホップの後も常に特定の波長でしか発振しない FFC の実現が期待できる。それは例えば、長い運転期間の間に平均して光共振器に蓄積されたレーザー場が必要な特定のアプリケーションに有効であると考えられる（計測する吸収スペクトル波長が常に固定されているなど）。一方で、この現象は縦シングルモード発振する FFC では原理的にレーザー波長の掃引ができない可能性があることを示している。利得帯域を決定する FBG の中心波長を変化させて粗い波長掃引は可能であるが、その間にモードホップが繰り返され系が不安定になる。発振が特定の波長に制限される理由として、当初考慮されていなかった光共振器外周の縦モード間隔が制限を与えている可能性が考えられる。しかし外周部のモード間隔は数十 MHz であり、仮にこのモード間隔が発振可能な波長に大きな制約を与えていたとしても、図 2 の FPI の解析で十分に分解し観測できたはずである。この挙動の理解については今後の重要な課題である。

高フィネス共振器を使用した 1064 nm での縦シングルモード発振の試験は実現しなかった。しかし利得の高い 1035 nm 近傍では縦マルチモード動作が実現しており、FBG をこの波長に合わせることで 1035 nm での縦シングルモード発振できるものと考えている。素子調達の遅れから

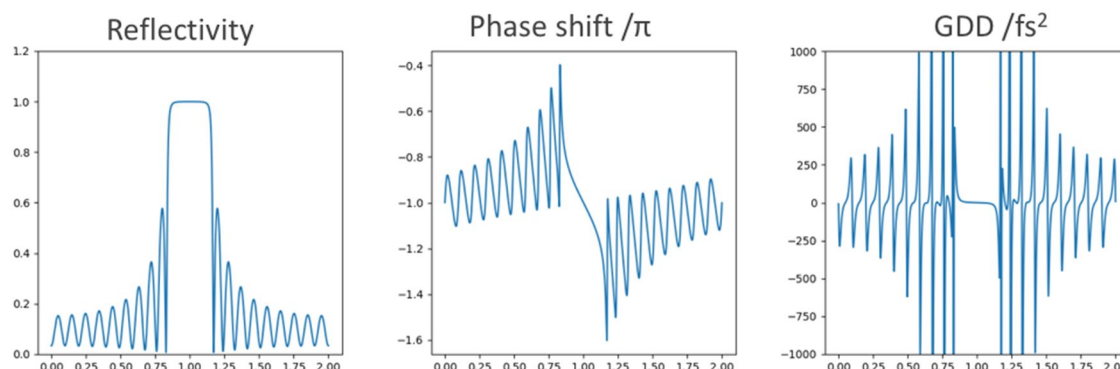


図 3.  $1/4$  厚で積層した誘電体多層膜コートの左から反射率、位相シフト量、群遅延分散の計算結果。反射率が 99.999% になるよう計算した。横軸は中心波長で規格化した波長スペクトルを示す。

本研究期間内には実証することはできなかったが、シングルモードレーザーを高フィネス共振器に自立安定に蓄積するという本研究課題の主目標は実現可能性が高いことがわかった。ただし、吸収分光法への応用という観点からは、利用可能な波長に限られる事実は大きな課題である。異なる波長帯域で高い小信号利得を有する希土類添加ファイバーの開発や、ファイバーに代わる新しい高利得レーザー増幅器の実現が望まれる。

モード同期 FFC の実現は引き続き大きな課題である。まず分散の影響の少ない高フィネス共振器の実現が重要であり、そのためには誘電体多層膜コートの適切な設計開発が必要である。また低フィネスの場合においても、光路中に光共振器を内包するリングレーザー発振器のモード同期は困難を伴うことが分かった。光コムとしての利用を見据えた場合、発振安定性だけでなくキャリアエンベロープオフセットなども精密に制御する必要がある。良く安定化された光コムを良く安定化された光共振器に入射する従来の手法と比べ、モード同期した FFC が取り扱いの容易さや耐外乱性においてどれだけ優位性があるか、よく検討する必要がある。

本研究において FFC を共振器増幅吸収分光法に適用するための基礎的な装置開発および検討を行った。系の利得/損失バランスに余裕のある低フィネス共振器を用いた FFC において、縦シングルモード発振による単一周波数レーザーの自立安定な光共振器内への蓄積動作を初めて実現することができた。吸収分光法で一般的に要求される波長掃引機能は実現することができなかったが、モードホップの後にも発振波長が特定の 2 波長に限定されるという特徴的な現象が見いだされた。この系の解析は光工学の観点からも興味深い課題である。今後、本研究期間中には実施できなかった高フィネス共振器による波長 1035 nm での FFC の試験を行い、成果をまとめる予定である。

FFC のモード同期化による光コム分光法への応用については、その実現性は今のところ技術的な課題が多く困難であることが示唆された。ただし、受動モード同期にこだわらずに、外部光変調器を使用した能動モード同期を利用することでパルス動作する FFC の実現可能性があることを指摘しておく。これは未だ検証されておらず、今後の興味ある研究課題であるといえる。

#### < 引用文献 >

- [1] Y. Uesugi et. al., Feedback-free optical cavity with self-resonating mechanism, APL Photon. 1, 026103 (2016).
- [2] Y. Hosaka et. al., Mode-locked pulse oscillation of a self-resonating enhancement optical cavity, J. Phys. Conf. Ser. 1350, 012028 (2019).

## 5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計3件（うち査読付論文 3件/うち国際共著 0件/うちオープンアクセス 2件）

1. 著者名 T. Akagi, S. Araki, Y. Honda, A. Kosuge, T. Omori, H. Shimizu, N. Terunuma, J. Urakawa, T. Takahashi, R. Tanaka, Y. Uesugi, H. Yoshitama, Y. Hosaka, K. Sakaue	4. 巻 402
2. 論文標題 Development of optical resonant cavities for laser-Compton scattering	5. 発行年 2017年
3. 雑誌名 Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section B: Beam Interactions with Materials and Atoms	6. 最初と最後の頁 370-372
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1016/j.nimb.2017.03.081	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスとしている（また、その予定である）	国際共著 -

1. 著者名 Y. Hosaka, Y. Honda, T. Omori, J. Urakawa, A. Kosuge, K. Sakaue, T. Takahashi, Y. Uesugi, M. Washio	4. 巻 1350
2. 論文標題 Mode-locked pulse oscillation of a self-resonating enhancement optical cavity	5. 発行年 2019年
3. 雑誌名 Journal of Physics: Conference Series	6. 最初と最後の頁 012028 ~ 012028
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1088/1742-6596/1350/1/012028	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスとしている（また、その予定である）	国際共著 -

1. 著者名 Y. Uesugi, A. S. Aryshev, M. Fukuda, T. Omori, N. Terunuma, J. Urakawa, T. Takahashi, Y. Koshiha, S. Otsuka, M. Washio, Y. Hosaka, S. Sato	4. 巻 -
2. 論文標題 Development of self-resonating enhancementcavity operating in single-longitudinal-mode	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 CLEO: Science and Innovations	6. 最初と最後の頁 -
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） なし	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

〔学会発表〕 計7件（うち招待講演 1件/うち国際学会 1件）

1. 発表者名 上杉祐貴, 福島涼太, 佐藤俊一
2. 発表標題 レーザー干渉加工による電子線ホログラフィック回折格子
3. 学会等名 第79回応用物理学会秋季学術講演会
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 上杉祐貴, 渡辺和樹, 佐藤俊一
2. 発表標題 フェムト秒レーザーで駆動するチップ陰極型電子源の開発
3. 学会等名 第66回応用物理学会春季学術講演会
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 上杉 祐貴, 佐藤 俊一
2. 発表標題 レーザー干渉加工による電子線ホログラフィック回折格子
3. 学会等名 第78回応用物理学会秋季学術講演会
4. 発表年 2017年

1. 発表者名 上杉 祐貴, 浦川 順治, 大森 恒彦, 小菅 淳, 坂上 和之, 高橋 徹, 保坂 勇志, 本田 洋介, 鷺尾 方一
2. 発表標題 レーザーコンプトン散乱光源のための自発共鳴型光蓄積共振器
3. 学会等名 レーザー学会学術講演会第38回年次大会(招待講演)
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 上杉 祐貴, 浦川 順治, 大森 恒彦, 小菅 淳, 坂上 和之, 高橋 徹, 保坂 勇志, 本田 洋介, 鷺尾 方一
2. 発表標題 自発共鳴型レーザーパルス蓄積振器の開発
3. 学会等名 第65回応用物理学会春季学術講演会
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 Yuuki Uesugi, Alexander S. Aryshev, Masafumi Fukuda, Tsunehiko Omori, Nobuhiro Terunuma, Junji Urakawa, Tohru Takahashi, Yuya Kobayashi, Seiya Otsuka, Masakazu Washio, Yuji Hosaka, Shunichi Sato
2. 発表標題 Development of self-resonating enhancement cavity operating in single-longitudinal-mode
3. 学会等名 CLEO 2020 (国際学会)
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 上杉 祐貴, アリシェフ アレクサンダー, 浦川 順治, 大森 恒彦, 照沼 信浩, 福田 将史, 大塚 誠也, 小柴 裕也, 鷲尾 方一, 高橋 徹, 保坂 勇志
2. 発表標題 単一縦モードで動作する自発共鳴型光共振器の開発
3. 学会等名 第67回応用物理学会春季学術講演会
4. 発表年 2020年

〔図書〕 計0件

〔産業財産権〕

〔その他〕

-

6. 研究組織

	氏名 (ローマ字氏名) (研究者番号)	所属研究機関・部局・職 (機関番号)	備考