

科学研究費助成事業 研究成果報告書

令和 3 年 5 月 7 日現在

機関番号：12612

研究種目：研究活動スタート支援

研究期間：2019～2020

課題番号：19K23586

研究課題名(和文)非対称コマ分子の高感度中赤外新奇光コム分光手法の開発

研究課題名(英文)Development of a new direct frequency comb spectrometer for asymmetric molecules

研究代表者

岩國 加奈(Iwakuni, Kana)

電気通信大学・レーザー新世代研究センター・助教

研究者番号：80837047

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 2,200,000円

研究成果の概要(和文)：近年開発が盛んなデュアルコム分光計は広帯域スペクトルを高分解能かつ短時間で測定できる装置だが、分子の指紋吸収線が存在する中赤外領域への拡張が期待されている。しかし、一般的な中赤外用受光器はダイナミックレンジが狭いため、検出感度が低い。そこで本研究では分子のエネルギー準位構造に着目し、受光器のダイナミックレンジをフルに活用した分光計の開発を目指した。1台のレーザー共振器でfrepが異なる光コムを発生できるオリジナルなデュアルコム分光計の構成を考案し、非線形ループミラーでモード同期を実現した。また、開発した光コムをRb原子時計に安定化して、N20分子の分光を行い、その性能を評価した。

研究成果の学術的意義や社会的意義

原子に比べ分子は振動・回転の自由度のため、精密分光の対象となる分子種は構造が比較的単純な分子に限られているが、大気化学や医療などの応用に重要な分子は構造が複雑である場合が多い。スペクトルの複雑さの低減には、吸収強度が大きく、また、単位エネルギーあたりの状態数密度が低い中赤外領域での分光が適す。本研究で開発した光コムはPMファイバーで構成されており、温度や風などがコントロールされていない実験室環境でも有用であることが実証された。

研究成果の概要(英文)：Dual-comb spectrometers can observe a broad spectrum with high resolution within short acquisition time, and the next advance of the spectrometer will be spectroscopy in the mid-infrared region where molecular fingerprints exist. However, the sensitivity might be a problem, because of the relatively low dynamic range of mid-infrared detectors. In this work, we are aiming to develop a dual-comb spectrometer taking the advantage of the energy structure of asymmetric top molecules to use the full dynamic range of the detector. We started with the development a polarization maintain fiber-based laser cavity to generate frequency combs having slightly different repetition rates for dual-comb spectroscopy. We also evacuated the frequency comb with stabilizing it to Rb clock and observing absorption of N20 molecules.

研究分野：量子エレクトロニクス

キーワード：デュアルコム分光計 分子分光

1. 研究開始当初の背景

原子・分子の精密分光実験は量子力学をはじめ、物理・化学分野の発展に幅広く貢献してきた。原子に比べ分子は振動・回転の自由度のため準位構造が複雑で、精密分光の対象となる分子種は構造が比較的単純な分子に限られているが、大気化学や医療などの応用に重要な分子は構造が複雑である場合が多い。スペクトルの複雑さの低減には、吸収強度が大きく、また、単位エネルギーあたりの状態数密度が低い中赤外領域での分光が適す。このような背景を受け、波長 $3\ \mu\text{m}$ 以上の中赤外領域の光源開発が盛んに行われている。近赤外光レーザーを種光にした差周波発生法や光パラメトリック発振などの波長変換を利用した光源や、量子カスケードレーザーなどの光源が開発され、市販されるようになった。また、この波長域の光コムも非常に盛んに研究されている。

一方、近年、分光手法の発展も目覚ましく、特に近赤外光コムを分光光源として用いたダイレクト光コム分光法は広帯域なスペクトルを短時間・高分解能で観察できることから、盛んに研究されている。ダイレクト光コム分光の中でも、繰り返し周波数がわずかに異なる 2 台の光コムを光源とするデュアルコム分光は、特殊な光学素子や高価な赤外カメラが不要であるため、中赤外領域への拡張が期待されている。デュアルコム分光を行う際には繰り返し周波数の半分の周波数帯域をもつ受光器（数 10 MHz）が必要となる。一般的に市販されている中赤外用の受光器受光器はノイズが大きいいため、ダイナミックレンジが近赤外用受光器に比べて 2 桁程度狭い。そのため、デュアルコム分光法を中赤外領域に拡張するには、技術的な工夫が必要となる。

2. 研究の目的

広帯域スペクトルを短時間・高分解能で観察できるデュアルコム分光計を中赤外領域に応用し、近赤外領域と同程度の感度を実現するために非対称コマ分子のエネルギー準位構造に着目し、受光器のダイナミックをフルに活用した分光計の開発を目指した。

3. 研究の方法

デュアルコム分光計は、繰り返し周波数がわずかに異なる 2 台の光周波数コムを干渉させ、得られた干渉信号をフーリエ変換してスペクトルを得る手法である。この手法の実験構成では、片方の光コムの光路に気体分子を封入したセルを挿入する。気体分子は、光コムの出力パルスによって励起され、自由誘導減衰（FID）しながら基底状態に戻る。デュアルコム分光計では、繰り返し周波数のわずかな差を利用して、片方の光パルスとそれによって生じた FID 信号をもう片方の光パルスでサンプリングするが、2 つの光パルスのタイミングが近づいてくるとセンターバーストと呼ばれる強い信号が干渉信号に現れる。この信号はフーリエ変換すると光コムのスペクトルに対応しており、吸収線のバックグラウンドになる。センターバースト信号は FID

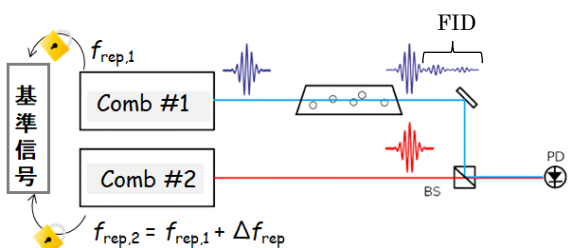


図 1 デュアルコム分光の基本構成

信号より大きいいため、FID 信号を増強しようとするセンターバーストが先に飽和してしまう。そこで本研究では、非対称コマ分子のエネルギー構造をうまく用いてセンターバーストの影響を低減し、FID 信号を増強する手法を検証する。そのためまず、繰り返し周波数が異なる 2 台の近赤外光コムを開発し、差周波発生法により近赤外光コムから中赤外光コムを得てデュアルコム分光計を構築し、考案した手法を検証することを目指す。

4. 研究成果

当初の計画では、非線形偏波回転によってモード同期を実現した 2 台のファイバーコムでデュアルコム分光計を構築する予定であった。しかし、一連の研究の中で非線形回転の光コムの場合、温度変動によりオフセット信号 (f_{ceo}) の S/N や線幅の変動が大きく、現在の実験室環境では長時間測定に適さないことが判明した。そこで、モード同期機構を非線形ループミラーに変更し、それに伴って、ファイバー共振器を偏波保持ファイバーで構成し、環境変動に対し堅牢な共振

器を開発した。さらに、従来のデュアルコム分光計は繰り返し周波数 (frep) がわずかに異なる2つの光コムを得るために2台の光共振器を用いるが、1台の共振器で2つの光コムを発生させるオリジナルな構成を考案した。これにより2つの光コムのノイズのふるまいが共通になるため、現在の実験室環境でも取り扱いが容易になると期待される。光コムを構成から見直して再構築したため、当初の研究計画よりやや遅れているが、今後の研究の発展性を考慮すると、より堅牢で信頼性の高い光源が開発できたことは意義深い。今後はデュアルコム分光計を完成させ、提案した新規手法を実証する。この成果は第21回分子分光研究会で口頭発表した。

光源開発と平行して分子分光実験を行い、開発した光コムの性能を評価した。波長 $1.52\ \mu\text{m}$ 帯に吸収をもつN₂O分子をRb原子時計に安定化した光コムを基準にして測定し、測定不確かさが先行研究より2桁程度小さい、1 MHz以下で遷移周波数を決定した。これにより、開発した光コムは高い測定精度で周波数計測できることを実証した。この成果はThe 4th Asian Workshop on Molecular Spectroscopyで口頭発表した。

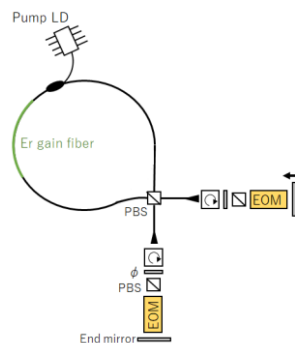


図 2. 開発したデュアルコム分光計

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計0件

〔学会発表〕 計3件（うち招待講演 1件 / うち国際学会 1件）

1. 発表者名 岩國加奈
2. 発表標題 中赤外光コムを用いた 分子分光
3. 学会等名 日本光学会年次学術講演会（OPJ）（招待講演）
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 高橋亜稀、岩國加奈
2. 発表標題 新奇デュアルコム分光計の開発に向けたモード同期ファイバーコムの開発
3. 学会等名 第21回分子分光研究会（国際学会）
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 Kana Iwakuni
2. 発表標題 Absolute frequency measurement of N2O at 1.52 μ m
3. 学会等名 The 4 th Asian Workshop on Molecular Spectroscopy
4. 発表年 2021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
---------------------------	-----------------------	----

7. 科研費を使用して開催した国際研究集会

〔国際研究集会〕 計0件

8 . 本研究に関連して実施した国際共同研究の実施状況

共同研究相手国	相手方研究機関
---------	---------