

## 科学研究費助成事業 研究成果報告書

平成 26 年 6 月 10 日現在

機関番号：12605

研究種目：挑戦的萌芽研究

研究期間：2012～2013

課題番号：24654129

研究課題名(和文) 分子制御用の繰り返し可変パルス光源の開発

研究課題名(英文) Development of pulsed laser with repetition-rate control for control of quantum states of molecules

研究代表者

鈴木 隆行 (Suzuki, Takayuki)

東京農工大学・工学(系)研究科(研究院)・助教

研究者番号：80539510

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 3,000,000円、(間接経費) 900,000円

研究成果の概要(和文)：光共振器をベースとした既存のパルスレーザー光源では成しえない、繰り返し周波数が可変のパルスレーザーシステムの構築を目指した。光ファイバーに直結したレーザーダイオードの出力に対し、ファイバー位相変調器を介してGHzオーダーの位相変調を与え、広帯域化・分散補償を施すことで目的達成を目指した。実際の高周波位相変調を確認するための掃引型周波数分析器の開発も行った。テーパアンプの納入の問題で、光増幅と広帯域化にかかわる部分は今後の課題となってしまったが、用具だけは整っており、プロジェクト継続後も継続して未了部分の達成を目指す。

研究成果の概要(英文)：We aimed to develop a pulsed laser system with arbitrary repetition-rate which is difficult to realize by an ordinary optical-cavity-based laser system. The key concept is use of fiber phase modulator which enables us to modulate a continuous wave laser beam with modulation frequency of from DC to 40 GHz. There is no commercial device, we also developed handmade scanning Fabry-perot interferometer as an optical spectrum analyzer to obtain GHz phase modulation. Unfortunately, optical taper amplifier was delayed due to manufacturing problem. The tasks concerning laser amplifier were not yet started, however it is continued after the project.

研究分野：数物系科学

科研費の分科・細目：物理学 原子・分子・量子エレクトロニクス

キーワード：超短光パルス ファイバー位相変調

## 1. 研究開始当初の背景

### (1) 超短パルスレーザーの発展と量子制御

超短パルスレーザー技術の発展は目覚ましく、近赤外域で 10fs を切るような光パルスも商用のレーザーとして市販されるに至っている。これはレーザー電場の振動の 2~3 周期に相当する継続時間である。このようなレーザーパルスはスペクトル帯域も非常に広く、対象物質の様々な量子状態を一度に励起することが可能である。このような背景から、特定の励起状態を選択的に励起するなどのいわゆる量子制御が隆盛を見せ、光パルスの様々な周波数成分間の位相をパラメータとした制御実験が広く展開されるようになった。位相の制御は、超短パルスレーザーの波形整形として技術的な確率も見せ、パルス波形整形を通じた量子制御が一つの有力かつ魅力的な研究対象となった。

初期の量子制御実験では最適なパルスの位相関係、すなわちパルス波形を実験的に探索することが主流であった。しかし一方で理論面からも最適パルス形状の研究は進められてきた。実験的にも理論的にも、ある一定の時間間隔を持つ光パルスは特定の量子準位を選択的に励起する単純な解であることが早い段階で明らかになり、これを利用した選択励起は当然のように実証されるに至っている。

### (2) 光パルスの繰り返し周波数

パルス波形整形技術による一つのパルスを分解・再構成する方法でのパルス列生成には限界がある。一方で光パルスは、発生段階において光共振器を用いて、その共振器内を光パルスが往復する時間間隔で出力されるため、本質的にはパルス列となっている。しかしながらこのパルス列の繰り返し周波数を変更するためには光共振器の長さを変更する必要がある。光共振器は光の波長程度の精度を持って調整されているもので、その長さを 2 倍、3 倍と変えることはおろか 1 割変更することも現実的ではない。このため光パルスの繰り返し周波数は、現状の超短パルス光源にとって変更不能なパラメータである。

2005 年のノーベル物理学賞を受賞した光コムの研究は、このような繰り返される光パルス列が、スペクトルとしては等間隔の楕円型にあることを意識し、スペクトル空間での物差しとして利用した研究である。しかし、この研究からもわかるように、スペクトル間隔、すなわちパルス繰り返し周波数は非常に安定しており(させることが可能であり)、変更できるようなパラメータではない。

## 2. 研究の目的

本研究では繰り返し周波数が可変のパルス光源の開発を目的とする。これは任意スペクトル間隔の広帯域スペクトルの生成と、その相対位相の調整と換言できる。楕円型スペクトルの間隔が自由に調整できれば、ラマン過程など周波数の差が本質的な寄与を果たす物

理過程に適合した良質の光源となることが期待される。特に従来の MHz 帯域の繰り返し周波数だけでなく GHz 領域までもをカバーすることによって、孤立分子の回転運動なども制御対象として見据えることが可能となる。

## 3. 研究の方法

繰り返し周波数を自由に変更するためには、従来のような光共振器に頼った光パルスの発生法は利用できない。本研究では、連続発振光を基本として、その位相変調を利用する戦略をとる。周期的な屈折率変調を与えた媒質を通過した光は、その周期に応じたサイドバンド光を含んだ光に変調される。このサイドバンド光を多重に生成し、広帯域スペクトルとする。また、広帯域スペクトルの位相の調整は正常分散媒質を通過させることによって行う。媒質長を選択することで任意の分散を与えることが可能となる。

上記の光発生は、光ファイバー中で行うこととする。これにより光軸再調整などの不便を解消するとともに、分散媒質の長さの変更も、異なる長さの光ファイバーの付け替えのみで完結するはずである。

## 4. 研究成果

### (1) マスターレーザーの開発とシングルモードファイバーへの結合

基礎となるマスターレーザーにピグテール付き半導体レーザーを採用した(図 1)。これは半導体レーザーに直接シングルモード光ファイバーが接続されたもので、光ファイバーへの光軸の調整を不要にするだけでなく、長時間使用時の光軸ずれの問題も解決することができた。またシングルモード光ファイバーの接合端面は傾斜研磨(APC)とし、ファイバー端面からの反射光を極力防ぎ、レーザー光の周波数の安定化に努めた。実際、ピグテール付き半導体レーザーを温度、電流の安定化のもと発振させ、2 mW 以上の平均出力を確保することに成功した。この後段に配置するファイバー位相変調器の入力光強度の上限により 2mW は十分な出力である。

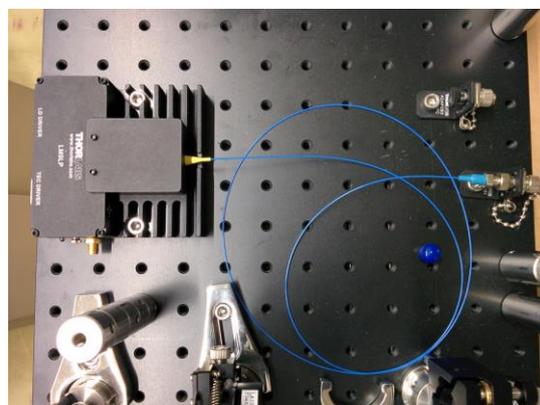


図 1 ピグテール付き半導体レーザー

### (2) ファイバー位相変調器の導入

サイドバンド光発生用の位相変調モジュールには EOSPACE 社のファイバー位相変調器を導入した(図 2)。これは、現在市販される位相変調器の中で最高クラスの位相変調スピードを誇っており、40GHz までの変調帯域を持つ。また、共振器型ではないため変調周波数も可変であり、入力する電気発振器の信号に応じて DC から 40GHz の範囲の無段階変調に対応している。GHz オーダーまでの出力を可能にする発振器は通常非常に高価であるが、本プロジェクト内で可能な発振器として、Vernix 社のプログラマブル rf シグナル発生器を導入した。しかしながら、市販されている光スペクトルアナライザでは、10GHz オーダーの変調周波数を観測できるほどの周波数帯域は無く、一方で回折格子分光器の周波数分解能は 100GHz オーダーとなってしまうため、この変調を直接観測するようなシステムは別途開発の必要がある。



図 2 ファイバー位相変調器

### (3) 掃引型ファブリペロー干涉計の設計・開発

通常の回折格子分光器よりも高い周波数分解能を持ち、市販されている光スペクトルアナライザよりも一桁以上高い周波数範囲を観測可能な掃引型ファブリペロー干涉計の開発を行った。観測周波数範囲を広げるため共振器ミラーの間隔は 1mm 程度まで縮める必要がある。実際の設計においては、ミラーの掃引に対して強固な構成となるようにミラーの曲率半径を大きくし、ミラー間隔の変更に伴う共振器モードの変化が少なくなるようにした。この設計を基に、前述のピグテールファイバーレーザーの出力に適用するような共振器モードの解析計算を行った。計算の前提条件として理想的なガウシアンビームを仮定し、共振器の自由スペクトル間隔を 100GHz、共振器フィネスを 100 と設定した。周波数分解能は 1GHz 程度であるが、周波数分解能をあげるほど共振器の調整が敏感となるため、必要最低限の分解能の確保にとどめた。共振器ミラーは、反射率 98.0%、曲率半径 20m とし、業者に特注制作を依頼した。ただし実際のミラーは 800nm 帯で 99.3%の反射率となり設計と異なってしまったが、使用波長により変化するのでこの差は大きな問題にならないと判断した。実際に組

み上げた共振器を図 3 に示す。独自設計のミラーマウントとそれを前後に稼働させる積層ピエゾステージから構成されている。共振器内モードとピグテール付き半導体レーザーの出力ビームとを結合させるためのレンズの焦点距離、配置の決定もガウシアンを仮定した解析的モード計算から行った。レーザー光源と掃引型ファブリペロー共振器は同一ブレッドボード上に配置することにより出力のスペクトル解析を容易にできるようにした。

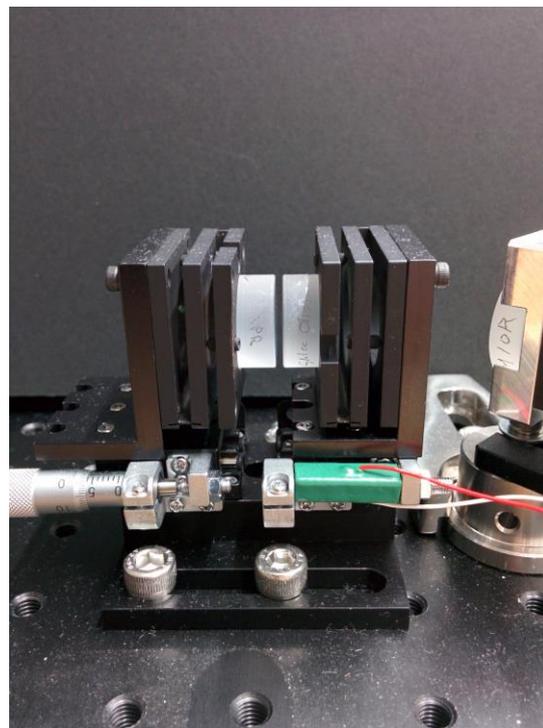


図 3 独自開発の走査型ファブリペロー干涉計

### (4) スペクトルアナライザの評価

半導体レーザーからの出力を制作した掃引型ファブリペロー干涉計に導入し、その動作の確認と性能の評価を行った。共振器出射側に CMOS カメラを配置し共振器モードを確認し、光軸の調整を行った。その後、ピエゾ駆動で周期的にミラー間隔を掃引し、共振器からの透過光強度をフォトダイオードで観測した。共振器の光軸が調整されると、半導体レーザー光源に、共振器からの戻り光が入力され、レーザーの出力周波数が激しく乱れてしまうことが確認された。このため、急きょファイバーアイソレーターと自遊空間型アイソレーターを 2 段構えで導入し、レーザー出力の安定化を図った。光学系の全体像を図 4 に、スペクトルの測定結果を図 5 に示す。設計フィネスは 100 であったが、実際には 40 程度のフィネスとなってしまっていた。これは使用した半導体レーザーの出力波長 780nm 帯での反射率がおよそ 93%まで落ち込んでしまっていることを示唆している。しかし、自由スペクトル間隔 100GHz に対してフィネス 40 であれば 2.5GHz の周波数分

解能が確保できることになり、10GHz オーダーの周波数変調を十分に分解できると結論できる。

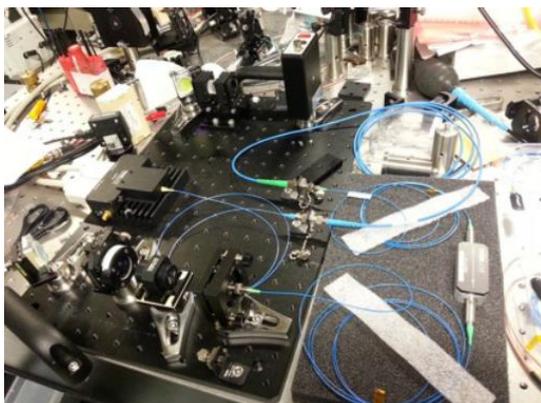


図 4 光学系の全体像

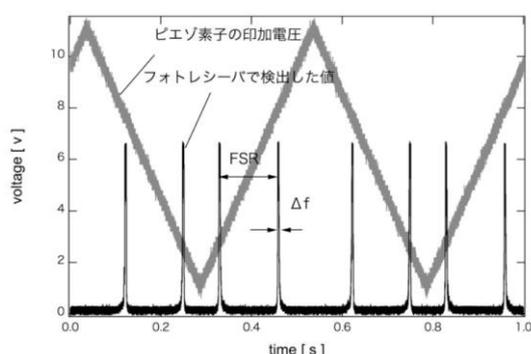


図 5 走査型ファブリペロー干渉計によるレーザースペクトル分析の結果

#### (5) サイドバンド発生実験

ファイバー位相変調器に、Veunix 社の rf 発振器を接続し、位相変調によるサイドバンド発生を行った。この rf 発振器は rf 出力が電圧換算で 0.7V であるが、ファイバー位相変調器の  $V_{pi}$  は典型的には数 V である。このためサイドバンドが確認できるギリギリの入力電圧である。掃引型ファブリペロー共振器が完成したので、購入した rf 発振器でのサイドバンド発生を試みたが、はっきりとしたサイドバンドを確認するには至らなかった。サイドバンド発生を確認するため、rf 発振アナログスイーパーをさらに導入した。この試験は今後の課題であるが、20GHz までの高出力パワーによるサイドバンド発生は課題終了後も引き続き挑戦する。

#### (6) テーパーアンプの導入

サイドバンド光を含めて光増幅することも本課題の目的の一つである。サイドバンドの発生が確認できなかったことが主因で、光増幅も未着手であるが、今後も引き続きサイドバンド光の増幅には挑戦する。光増幅器にシード光としてサイドバンド光を含む位相変調光を導入する方法で高出力位相変調光を得ることが目的であるが、光共振器型の光増幅では利得を特定の周波数成分にとられてしまうことが懸念される。そこで、本研究で

はシングルパスの光増幅機構として、テーパーファイバーアンプを導入した。テーパーアンプでは、ファイバー通過中に外部から注入されたエネルギーを獲得し光増幅を達成するので、利得の偏重が抑制できると期待される。そこで、10GHz オーダーでのサイドバンド発生後の光をまとめて増幅できるような利得帯域を持つテーパーアンプを導入した。制作メーカーの仕様変更等があり納品に時間がかかってしまい、テーパーアンプ自体の納品は年度末ギリギリとなってしまった。しかし、前述のサイドバンド発生後にすぐに増幅実験へと移行できる環境は整った。

#### (7) 超短パルス光源の生命科学応用への予備実験

超短パルス光源を用いた応用研究の足掛かりとして、既存の超短パルス光源を使用した応用研究もスタートした。特に生命科学系の応用を見据え、薬剤分子の分子固有の光応答の観測を行った。これまで観測不可能とされていた小分子麻酔薬のイソフルランやセボフルラン、さらにはタウリンといった生理活性分子の固有信号の観測に成功した。これらを基に、生命科学分野への応用性を検討するとともに、シンポジウムでの講演等を行った。

#### 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 0 件)

[学会発表] (計 7 件 (うち招待講演 2 件))

- (1) <招待講演> 鈴木隆行、小原祐樹、三沢和彦「広帯域位相制御パルスを用いた位相敏感コヒーレントラマン分光」、レーザー学会第 34 回学術講演会、2014 年 1 月 20 日～2014 年 1 月 22 日
- (2) 箱守宏治、鈴木隆行、三沢和彦、「位相敏感 CARS 分光法の反射型試料への応用」、日本物理学会、2013 年 3 月 26 日～2013 年 3 月 29 日
- (3) 鈴木隆行、三沢和彦、「時間分解法を用いた位相敏感 CARS 分光における水のノイズ除去」日本物理学会、2013 年 3 月 26 日～2013 年 3 月 29 日
- (4) 小川秀人、鈴木隆行、三沢和彦、「レゾナントスキヤナを用いた高速位相変調系の開発」日本物理学会、2013 年 3 月 26 日～2013 年 3 月 29 日
- (5) <招待講演> 鈴木隆行、「超短パルス制御技術が開く最先端医療」、日本光学会 光波センシブ研究グループ研究会、2013 年 2 月 28 日～2013 年 3 月 1 日
- (6) 鈴木隆行、「コヒーレント光技術が繋ぐ物理学と生命科学」日本学術会議 物性物理学・一般物理学分科会シンポジウム、2013 年 1 月 15 日
- (7) 鈴木隆行、三沢和彦、「広帯域パルスの単

色成分位相変調を用いた位相敏感 CARS 分光」、電子情報通信学会 レーザー・量子エレクトロニクス研究会、2012 年 5 月 25 日

## 6. 研究組織

### (1) 研究代表者

鈴木 隆行 (SUZUKI, Takayuki )

東京農工大学・大学院工学研究院・助教

研究者番号：80539510