

平成 29 年 6 月 23 日現在

機関番号：92704

研究種目：基盤研究(B) (一般)

研究期間：2014～2016

課題番号：26286067

研究課題名(和文) サブTHz繰返し短光パルス列を用いた高速・広帯域デュアルコムCARS分光法の開拓

研究課題名(英文) High-speed broadband CARS dual-comb spectroscopy using a sub-THz short optical pulse train

研究代表者

石澤 淳 (ISHIZAWA, ATSUSHI)

日本電信電話株式会社 NTT 物性科学基礎研究所・量子光物性研究部・主任研究員

研究者番号：30393797

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 12,500,000円

研究成果の概要(和文)：半導体レーザーからの出力光に多段の電気光学変調器を用いて光周波数コムを発生させ、シングルモードファイバーで分散を付与した結果、25 GHz繰返しでパルス幅230フェムト秒の光パルス列の発生に成功した。本光源を活用して、市販の信号発生器を凌駕する、低雑音なミリ波・マイクロ発生を実証した。更に、H13C14Nガスや液体サンプルの広スペクトル帯域デュアルコム分光測定することに成功した。

研究成果の概要(英文)：Short optical pulse generation technique at high repetition rate from a CW LD based on electro-optic modulators has been developed. With a single-mode fiber for pulse compression, we could achieve the generation of 230-fs short optical pulses at 25 GHz. we demonstrated that an ultralow-phase-noise millimeter-wave and microwave generation by using our developed optical source. In addition, we could also achieve broadband dual-comb spectroscopy for H13C14N gas and liquid samples.

研究分野：レーザー工学

キーワード：光周波数コム デュアルコム分光 電気光学変調器 高繰返し 広モード間隔

1. 研究開始当初の背景

光周波数コムは、100 フェムト秒(フェムト： $10^{-15}$ )ほどの短光パルスを、数ナノ秒(ナノ： $10^{-9}$ )という短い時間ごとに繰返し発生させることでできる。そのスペクトルは周波数が髪をとかず“櫛(コム)”のような形に分布する為、“光周波数コム”と名付けられている。櫛の“歯”(モード)は厳密に等しい間隔で並び、それはパルスを発する時間間隔で決まる。典型的な光周波数コムで可視光全域をカバーしていると、歯の数は約40万本である。この高精度に周波数軸上に並んだ歯を物差しを目盛として、光時計、超高感度化学検出器、レーザーによる化学反応の制御、光ファイバーを用いた大容量光通信、精密な衛星利用測位システムなど、幅広い応用が期待されている。光周波数コムは上記のような光周波数計測や周波数標準等に利用されているが、近年分光測定における新たな応用手法として、2つの光周波数コムを用いたデュアルコム分光法の研究開発が行われている。これは、図1(a)に示すように、パルス繰返し数が  $f_{rep}$  だけ異なる2台の光周波数コムを用いて、一方を信号光、もう一方をローカルオシレーター光としてヘテロダイン検波し、ラジオ波領域のビート信号を解析する(図1(b)参照)。ビート周波数はコムモードの光周波数に応じてわずかに異なるので、光領域のスペクトルをラジオ波領域のスペクトルに変換して測定することができる(図1(c)参照)。このようにデュアルコム分光は広帯域なスペクトル領域を精密に分光できることから、フーリエ変換赤外分光法に取って代わる分光法として注目されている。しかしながら、その計測時間は、光源として用いているモード同期レーザー(ML)の達成可能な繰返し周波数が100 MHz 前後のために限界があった。

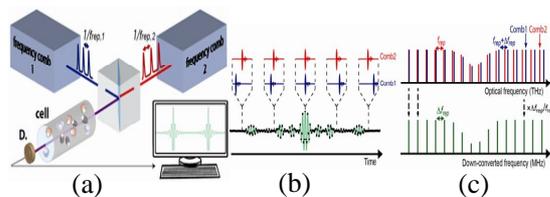


図1 デュアルコム分光の概念図

2. 研究の目的

上記の問題を克服する為に、以下のような特性を持つ高機能光源や要素技術の開発、並び、デュアルコム分光の研究を行う。

(1) ML方式レーザーでは実現が難しい25 GHzの高繰返し、かつ、低雑音なフェムト秒短パルス光源の開発。

(2) 種光源の周波数安定化に向けた自己参照干渉法の開発。

(3) 本光源をデュアルコム分光への適用。

3. 研究の方法

僅かに繰返し周波数が異なる2台の光周波数コム(Comb1とComb2)に、小型で簡便なCW LDと光変調器を用いた短光パルス列発生技術と波形整形器を駆使した光源を用いる。具体的なデュアルコム分光用光源の構成を図2に示す。LDからの連続光に対して、25 GHzのRF正弦波で駆動する光位相変調器により周期的なアップ・ダウンチャープを付与してスペクトル幅を24nmにまで広げて、直列接続している光強度変調器により線形なダウンチャープの部分を取り出し、通常のシングルモード光ファイバーを通して分散補償し、パルス圧縮を行う事でパルス幅230 fsの25 GHz繰返し光パルス列を発生させることに成功している。第一段階として、既存の上記25 GHz繰返し短光パルス列2台(Comb1とComb2)を、それぞれポンプ光とプローブ光とし、測定サンプルへ照射する。それら透過光をヘテロダイン検波し、ラジオ波領域のビート信号を解析する(図1参照)。

4. 研究成果

(1) 図2に我々が提唱する、光変調器を用いた25 GHzモード間隔光周波数コムの実現方式を示す。中心波長1552 nm、線幅800 HzのCW半導体レーザーからの出力光に対して、RFシンセサイザーからの25 GHz正弦波信号で3台の位相変調器を駆動する。3台の位相変調器を用いて与えられた合計の変調指数は20であった。この過程により、25 GHz繰返しの周期的なアップチャープとダウンチャープが生成される。線形なダウンチャープ部を強度変調器で抜き出すことにより、24 nmのスペクトル幅を持つ平坦な25 GHzモード間隔の光周波数コムを発生させることができた。パルスの圧縮は、位相変調器でチャープさせた光をシングルモードファイバーを通して分散を付与し、チャープ補償することで行った。自己相関波形から、25 GHz繰返しパルスのパルス幅は230 fsと見積もられた[雑誌論文4, 学会発表21]。続いて、この電気光学変調器ベース(EOM)光周波数コム有位相特性を波長可変レーザー光源(1525-1552 nm)との干渉信号の観測により調べた。

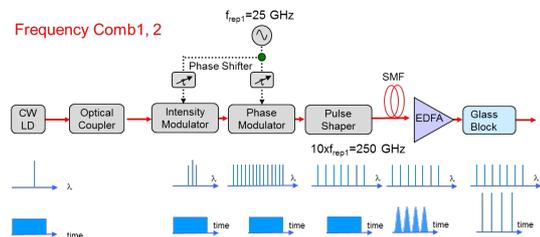


図2 高繰返し短パルス発生

図3に25 GHz繰返しの超広帯域光と波長可変レーザー光源との干渉信号の位相雑音特性を示す。横軸のモード次数は位相変調レ-

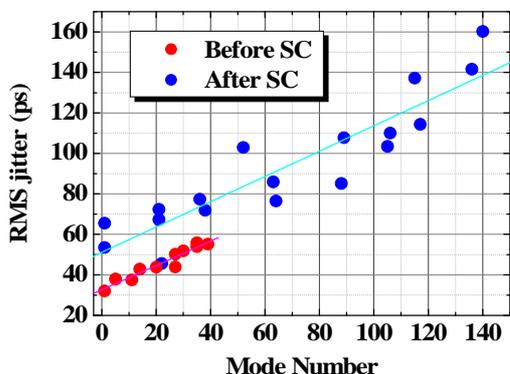


図3 EOM光周波数コム位相特性

ザーの中心波長からの光周波数コムモード次数を表している。位相変調レーザーを用いて発生したSC光の発生過程ではモード次数に対して位相雑音が増加することを確認した。一方、更に、2台の位相・強度変調器駆動用RF信号発生器を使用し、干渉信号の位相雑音特性を比較した結果、RF信号の位相雑音特性がSC光の位相雑音特性にも影響を与えていることも分かった。この雑音増幅に伴ってスペクトル幅が拡大される、EOM光周波数コムの問題点を利用して、高感度な「雑音検出器」として用いることで、従来よりも低雑音な周波数可変マイクロ波・ミリ波を発生させるアイデアの原理実証に成功すると共に、位相変調器ベース光周波数コムの問題点を克服した。マイクロ波・ミリ波の雑音は、25 GHz信号の中心周波数から1 kHz離れた周波数の雑音は、-110 dBc/Hzにまで低減できました。これは、市販で最も低雑音級のマイクロ波・ミリ波発生装置よりも雑音を100分の1まで低減できたことになる。半導体レーザーの中心波長から、より大きく離れた波長の参照レーザーを用いれば、更に雑音を低減することも可能である。また、本技術の汎用性を示すために、低雑音化されたマイクロ波・ミリ波発生装置の発振周波数の可変範囲の拡大を図り、6-72 GHzの帯域で連続可変することにも成功した[雑誌論文3, 学会発表2, 3, 5]。

(2) 種光源の周波数安定化には、自己参照干渉を用いるのが一般的である。光変調器を用いた広モード間隔光周波数コムは、高繰返し化や残留ノイズ等の影響で、得られるパルスエネルギーは低くなる。そこで、オクターブ帯域発生、及び、自己参照干渉計で用いる波長変換の低パルスエネルギー閾値化に着目し、低パルスエネルギーでもCEO周波数 $f_0$ を検出できる技術の開発に取り組んだ。シリコン導波路は、高効率なオクターブ帯域光発生用の非線形媒質として有望である。実験は、モード同期Erファイバーレーザーの出力光を先球ファイバーにより、シリコン導波路に光結合し、SC光発生を行った。導波路幅600 nm、導波路長1.7 mmの短尺なシリコン導波路を用いることで、伝搬損失を-0.2 dBまで低減でき、僅か50 pJのレーザーパルスエネルギーで、

900-2300 nmのオクターブ帯域光発生に成功した[学会発表16]。更に、シリコン細線導波路上に転写したグラフェンの長さや位置の最適化によって、光スペクトル帯域幅の更なる拡大にも成功した[雑誌論文2, 学会発表6]。高感度なCEO周波数 $f_0$ の検出に関しては、2倍波と3倍波を1つのチップで同時に発生することが可能となるように設計したデュアルピッチ周期反転二オプ酸リチウムリッジ導波路を作成し、コリニア型2f-3f自己参照干渉計を用いることで、環境ノイズ等に堅牢なCEO周波数 $f_0$ の検出法を確立した[雑誌論文5, 学会発表1, 3, 8, 15, 17, 19, 23, 24]。

(3) 連続発振半導体レーザーと多段電気光学変調器の組み合わせによる光源を用いた、新たな広スペクトル帯域デュアルコム分光法を提案しその実証を行った。

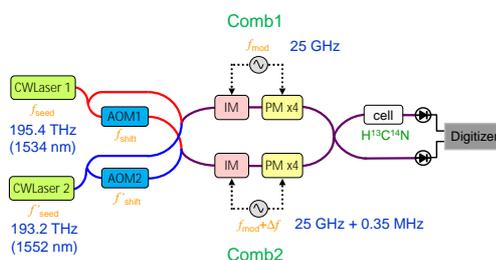


図4: 実験系構成図

図4に全体がファイバー結合で構成された実験系図を示す。フリーランニングの連続発振レーザー(CWLaser1)からの光を二分枝し、片方の周波数は音響光学変調器(AOM1)を通して $f_{shift}$ だけシフトする。それぞれの出力は一連の1台の強度変調器(IM)と4台の位相変調器(PM)に通す。一連の変調器は信号発生器からの周波数 $f_{mod}$ 及び $f_{mod}+f$ のRF正弦波にて駆動され、モード間隔が $f_{mod}$ の光周波数コム光(Comb1)  $f_{mod}+f$ の光周波数コム光(Comb2)を発生する。両方の光は2対2の光カプラーで混合され、片側の出力ではガスセルを通して吸収スペクトルの測定を行い、もう片側はレファレンスとして用いる。Comb1とComb2とのビート信号を高速フォトディテクターで受けてAD変換して記録した上フーリエ変換する事で、光スペクトルをRF信号にダウンコンバートして測定できる。なお、測定スペクトル領域の拡大を図る為にシードレーザーを2台用いた。図5に $H^{13}C^{14}N$ ガスの吸収線スペクトルの測定結果を示す。コム25 GHzのモード間隔の間を埋める為に、シードレーザー光の周波数を250 MHzずつシフトさせながら測定した100個のスペクトルを重ねる事で補間を行った。4段の位相変調器と2台のシードレーザーを用いる事により、 $H^{13}C^{14}N$ ガスの4.25 THzという広い範囲に渡る吸収線スペクトルの測定が出来た[学会発表10, 14]。

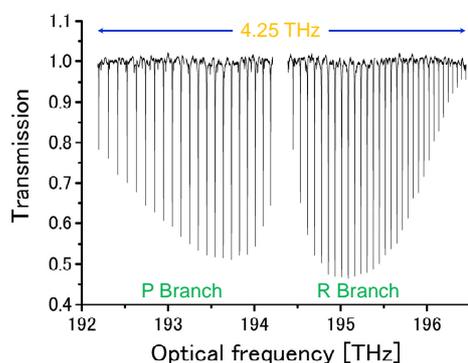


図 5 :  $H^{13}C^{14}N$  吸収線スペクトル

次に、デュアルコム分光は、高速・精密・広帯域な分光であるが、リフレッシュ時間が長いという課題を克服した。リフレッシュ時間の短縮は、顕微イメージング計測や化学反応モニタリングにおいて重要であるが、その実現には数 GHz 以上の高繰り返し光パルスが必要である。そこで我々は、CW 半導体レーザーを種光源とした電気光学変調器ベース光周波数コムを用いて、10 THz のスペクトル帯域幅を 157 GHz 分解能で、1 秒間に 100 万枚のスペクトルデータを取得することに成功した[図 6 参照] [学会発表 9, 13]。

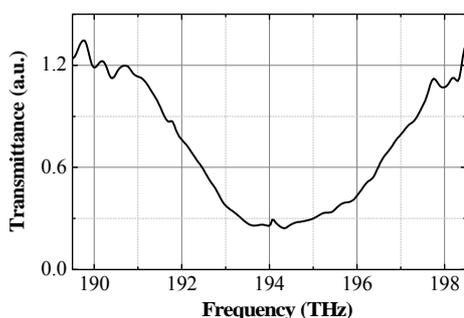


図 6 : 液体サンプルの透過スペクトル

## 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. K. Hitachi, K. Hara, O. Tadanaga, A. Ishizawa, T. Nishikawa, and H. Gotoh, "Reduced pulse energy for frequency comb offset stabilization with a dualpitch periodically poled lithium niobate ridge waveguide," *App. Phys. Lett.* 110 241107, 2017, 査読有  
DOI: 10.1063/1.4986444.
2. Atsushi Ishizawa, Rai Kou, Takahiro Goto, Tai Tsuchizawa, Nobuyuki Matsuda,

Kenichi Hitachi, Tadashi Nishikawa, Kouji Yamada, Tetsuomi Sogawa, and Hideki Gotoh, "Optical nonlinearity enhancement with graphene-decorated silicon waveguide," *Scientific Reports* 7 45520, 2017, 査読有

DOI: 10.1038/srep45520

3. A. Ishizawa, T. Nishikawa, T. Goto, K. Hitachi, T. Sogawa, and H. Gotoh, "Ultralow-phase-noise millimetre-wave signal generator assisted with an electro-optics-modulator-based optical frequency comb", *Scientific Reports* 6 24621, 2016, 査読有  
DOI: 10.1038/srep24621
4. 石澤淳, 「超高繰り返しフェムト秒光周波数コム光源」*光学* 45 巻 94-101, 2016, 査読有
5. K. Hitachi, A. Ishizawa, O. Tadanaga, T. Nishikawa, H. Mashiko, T. Sogawa, and H. Gotoh, "Frequency stabilization of an Er-doped fiber laser with a collinear 2f-to-3f self-referencing interferometer," *Applied Physics Letters* 106 231106, 2015, 査読有  
DOI: 10.1063/1.492253

[学会発表](計 25 件)

1. 原一鳳、日達研一、忠永修、石澤淳、西川正、後藤秀樹、「デュアルピッチ PPLN 導波路による CEO 周波数安定性の評価」第 64 回応用物理学会春季学術講演会、平成 29 年 3 月 17 日、17a-P2-1、パシフィコ横浜 (神奈川県・横浜市)
2. 石澤淳 「電気光学変調器ベース光周波数コムを用いた超高精度周波数変換技術の創出」第 33 回先端量子科学アライアンスセミナー、平成 29 年 3 月 3 日、慶應義塾大学、(神奈川県・横浜市)
3. A. Ishizawa, T. Nishikawa, T. Goto, K. Hitachi, T. Sogawa, and H. Gotoh, "Generation of low-phase-noise millimeter waves in a wide frequency range by using a frequency comb based on electro-optics-modulators," *Frontier in*

- Optics 2016, 18 October, 2016, FTu5C.5, Rochester (USA)
4. K. Hara, K. Hitachi, O. Tadanaga, A. Ishizawa, T. Nishikawa, T. Sogawa, and H. Gotoh, "Reduction of pulse energy for frequency stabilization with dual-pitch periodically poled lithium niobate waveguides," IEEE Photonics Conference 5 October, 2016, WE1.3, Hawaii (USA)
  5. 石澤淳, 西川正, 後藤貴大, 日達研一, 寒川哲臣, 後藤秀樹, 「位相変調器ベース光コムを用いた広周波数可変な低位相雑音ミリ波発生」第 63 回応用物理学会春季学術講演会、平成 28 年 3 月 21 日、21p-S622-13、東京工業大学 (東京都・目黒区)
  6. 後藤 貴大, 石澤淳, 高磊, 土澤泰, 松田信幸, 日達研一, 西川正, 山田浩治, 寒川哲臣, 後藤秀樹, 「グラフェン転写シリコン導波路からのスーパーコンティニウム光発生」第 63 回応用物理学会春季学術講演会、平成 28 年 3 月 20 日、20p-P3-4、東京工業大学 (東京都・目黒区)
  7. 原一鳳, 日達研一, 忠永修, 石澤淳, 西川正, 寒川哲臣, 後藤秀樹, 「デュアルピッチ PPLN 導波路による CEO 周波数安定化の低パルスエネルギー閾値化」第 63 回応用物理学会春季学術講演会、平成 28 年 3 月 20 日、20p-P3-5、東京工業大学 (東京都・目黒区)
  8. K. Hitachi, A. Ishizawa, O. Tadanaga, T. Nishikawa, H. Mashiko, T. Sogawa, and H. Gotoh, "Frequency stabilization in a collinear 2f-to-3f self-referencing interferometer with a dual-pitch PPLN ridge waveguide," ISNTT2015, 18 November, 2015, PWe02, NTT 厚木研究開発センター (神奈川県・厚木市)
  9. 石澤淳, 西川正, M. Yan, G. Millot, 後藤秀樹, T. W. Hänsch, N. Picque, 「広モード間隔光周波数コムを用いたマルチヘテロダイン実時間分光」第 76 回応用物理学会秋季学術講演会、平成 27 年 9 月 14 日、14a-2G-8、名古屋国際会議場 (愛知県・名古屋市)
  10. 西川正, 石澤淳, M. Yan, 後藤秀樹, T. W. Hänsch, N. Picque, 「デュアルコム分光用多段電気光学変調器ベース光周波数コム光源」応用物理学会 第 76 回応用物理学会秋季学術講演会、平成 27 年 9 月 14 日、14a-2G-7、名古屋国際会議場 (愛知県・名古屋市)
  11. 石澤淳, 「分散制御シリコン導波路を用いたオンチップスーパーコンティニウム光発生」信学会 超高速光エレクトロニクス研究会、平成 27 年 7 月 22 日 東京大学生産研究所 (東京都目黒区)
  12. A. Ishizawa, T. Nishikawa, T. Goto, K. Hitachi, T. Sogawa, and H. Gotoh, "Low-Phase-Noise Millimeter-Wave Signal Generator assisted with Frequency Comb based on Electro-Optics-Modulators," Conference on Lasers and Electro-Optics 2015, 13 May, 2015, STh4N.6, San Jose (USA)
  13. A. Ishizawa, T. Nishikawa, M. Yan, G. Millot, H. Gotoh, T. W. Hänsch, and N. Picque, "Optical Frequency Combs of Multi-GHz Line-spacing for Real-time Multi-heterodyne Spectroscopy," Conference on Lasers and Electro-Optics 2015, 13 May, 2015, SW1G.7, San Jose (USA)
  14. T. Nishikawa, A. Ishizawa, M. Yan, H. Gotoh, T. W. Hänsch, and N. Picque, "Broadband Dual-comb Spectroscopy with Cascaded-electro-optic-modulator-based Frequency Combs," Conference on Lasers and Electro-Optics 2015, 13 May, 2015, SW3G.2, San Jose (USA)
  15. K. Hitachi, A. Ishizawa, O. Tadanaga, H. Mashiko, T. Nishikawa, T. Sogawa, H. Gotoh, "A Robust 2f-to-3f Collinear Interferometer with a Dual-Pitch Periodically Poled Lithium Niobate Ridge Waveguide," Conference on Lasers and Electro-Optics 2015, 13 May, 2015, SW4G.3, San Jose (USA)
  16. T. Goto, A. Ishizawa, R. Kou, T. Tsuchizawa, N. Matsuda, K. Hitachi, T. Nishikawa, K. Yamada, T. Sogawa, and H. Gotoh, "Octave Spanning Frequency Comb Generation in a Dispersion-Controlled Short Silicon-Wire Waveguide with a Fiber Laser Oscillator," Conference on Lasers and Electro-Optics 2015, 13 May, 2015, SW4G.1, San Jose (USA)
  17. 日達研一, 「広モード間隔光周波数コムの周波数安定化に向けて」、国際光年記念シンポジウム、平成 27 年 4 月 21 日、東京大学本郷キャンパス (東京都・文京区)
  18. 石澤淳, 西川正, 後藤貴大, 日達研一, 寒川哲臣, 後藤秀樹, 「電気光学変調器ベース光周波数コムを用いた低位相雑音ミリ波発生」第 62 回応用物理学会春季学術講演会、平成 27 年 3 月 12 日、12p-A15-9、東海大学湘南キャンパス (神奈川県・平塚市)
  19. 日達研一, 石澤淳, 忠永修, 増子拓紀, 西川正, 寒川哲臣, 後藤秀樹, 「2f-3f 自己参照干渉計による CEO 周波数の安定性評価」第 62 回応用物理学会春季学術講演会、平成 27 年 3 月 12 日、12p-A15-4、東海大学湘南キャンパス (神奈川県・平塚市)
  20. 後藤貴大, 石澤淳, 高磊, 土澤泰, 松田信幸, 日達研一, 西川正, 山田浩治, 寒川哲臣, 後藤秀樹, 「オンチップスーパ

- ーコンティニウム光スペクトルとシリコン導波路の入射パルス波形の関係」第62回応用物理学会春季学術講演会、平成27年3月12日、12p-A15-7、東海大学湘南キャンパス(神奈川県・平塚市)
21. 石澤淳、「2.5 GHzモード間隔通信波長帯光周波数コム」レーザー学会学術講演会第35回年次大会、平成27年1月11日、11p-1、東海大学高輪キャンパス(東京都・港区)
  22. 後藤貴大、石澤淳、高磊、土澤泰、松田信幸、日達研一、西川正、山田浩治、寒川哲臣、後藤秀樹、「分散制御した短尺シリコン導波路を用いたオンチップスーパーコンティニウム光」第75回応用物理学会秋季学術講演会、平成26年9月20日、20a-C2-5、北海道大学(北海道・札幌市)
  23. 日達研一、「広モード間隔光周波数コムの開発とその応用」第4回先端フォトニクスシンポジウム、平成26年8月8日、No. 57、日本学術会議講堂(東京都・港区)
  24. K. Hitachi, A. Ishizawa, T. Nishikawa, H. Mashiko, O. Tadanaga, M. Asobe, T. Sogawa, and H. Gotoh, "A collinear 2f-to-3f self-referencing interferometer with a dual-pitch PPLN ridge waveguide," Conference on Lasers and Electro-Optics 2014, 8-13 June, 2014, JW2A.106, San Jose (USA)
  25. A. Ishizawa, T. Goto, N. Nishi, M. Matsuda, R. Kou, K. Hitachi, T. Nishikawa, K. Yamada, T. Sogawa, and H. Gotoh, "On-chip supercontinuum generation in a dispersion-controlled silicon-wire waveguide," Conference on Lasers and Electro-Optics 2014, 8-13 June, 2014, Atu3P3, San Jose (USA)

〔産業財産権〕

出願状況(計 5件)

名称：広帯域光発生装置  
 発明者：石澤淳、高橋礼、山田浩治、土澤泰、後藤貴大  
 権利者：日本電信電話株式会社  
 種類：特許  
 番号：特願 2016-039782  
 出願年月日：平成 28 年 3 月 2 日  
 国内外の別：国内

名称：光周波数コム測定装置  
 発明者：日達研一、忠永修、石澤淳、後藤秀樹  
 権利者：日本電信電話株式会社  
 種類：特許  
 番号：特願 2016-028584

出願年月日：平成 28 年 2 月 18 日  
 国内外の別：国内

名称：信号発生器  
 発明者：石澤淳、西川正  
 権利者：日本電信電話株式会社、東京電機大学  
 種類：特許  
 番号：特願 2015-023926  
 出願年月日：平成 27 年 2 月 10 日  
 国内外の別：国内

名称：光周波数コム安定化光源及び信号発生器  
 発明者：石澤淳、西川正  
 権利者：日本電信電話株式会社  
 種類：特許  
 番号：特願 2014-112075  
 出願年月日：平成 26 年 5 月 8 日  
 国内外の別：国内

名称：波長変換素子および光周波数コム発生装置  
 発明者：忠永修、日達研一、石澤淳、竹ノ内弘和  
 権利者：日本電信電話株式会社  
 種類：特許  
 番号：特願 2014-079779  
 出願年月日：平成 26 年 4 月 8 日  
 国内外の別：国内

## 6. 研究組織

### (1) 研究代表者

石澤 淳 (ISHIZAWA, Atsushi)  
 日本電信電話株式会社 NTT 物性科学基礎研究所・量子光物性研究部・主任研究員  
 研究者番号：30393797

### (2) 研究分担者

西川 正 (NISHIKAWA, Tadashi)  
 東京電機大学・工学部・教授  
 研究者番号：20374069

小栗 克弥 (OGURI, Katsuya)  
 日本電信電話株式会社 NTT 物性科学基礎研究所・量子光物性研究部・主幹研究員  
 研究者番号：10374068

増子 拓紀 (MASHIKO, Hiroki)  
 日本電信電話株式会社 NTT 物性科学基礎研究所・量子光物性研究部・主任研究員  
 研究者番号：60649664

日達 研一 (HITACHI, Kenichi)  
 日本電信電話株式会社 NTT 物性科学基礎研究所・量子光物性研究部・研究主任  
 研究者番号：60564276