

令和元年6月20日現在

機関番号：32657

研究種目：基盤研究(B) (一般)

研究期間：2016～2018

課題番号：16H04379

研究課題名(和文)フリーランニングCW半導体レーザーベースデュアルコム分光による呼気分析法開発

研究課題名(英文) Development of breath analysis by dual comb spectroscopy with a free running CW semiconductor laser

研究代表者

西川 正 (NISHIKAWA, TADASHI)

東京電機大学・工学部・教授

研究者番号：20374069

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 13,420,000円

研究成果の概要(和文)：我々はデュアル電気光学変調コム分光における25 GHzモード間隔の自動補間手法の開発を行った。その結果、シアン化水素とアセチレンガスの0.8 THz帯域に渡る吸収線スペクトルの測定を250 MHzの分解能での9.3 msシングルショット計測に成功した。また、本手法による腎臓病のバイオマーカーであるアンモニアガスの吸収線スペクトルの同定にも成功した。計測スペクトル帯域は、単に電気光学変調器の台数を増やすことでさらに拡大する事が可能になる。この自動補間手法の開発によってシングルショット分光計測が可能となり、広帯域、高分解能、高速リアルタイム分光計測の実用的なプラットフォームを提供する事が出来た。

研究成果の学術的意義や社会的意義

繰返し周波数が僅かに異なる2台のモードロックレーザーを用いたデュアルコム分光法は、広いスペクトル領域にわたる高分解能分光を高速に行う手段として注目されている。しかしながら、2台のレーザー間の高度な制御を必要としレーザーの専門家でなければ取り扱いが困難であった。そこで、レーザーの位相同期を必要とせずにレーザーの専門家でなくとも手軽に扱え、ロバストでフィールド環境でも使用可能な、1台のフリーランニング連続発振半導体レーザーと多段の電気光学変調器を用いた光ファイバー結合ベースの新たなデュアルコムリアルタイム計測装置及びその広いモード間隔の自動補間手法の開発に成功し、呼気分析への適用を可能にした。

研究成果の概要(英文)：We have developed an automatic technique for interpolating a 25 GHz mode spacing in dual EOM comb spectroscopy. The absorption spectra of Hydrogen Cyanide and Acetylene with a resolution of 250 MHz for a full spectral band above 0.8 THz can be measured with a single-shot recording time of 9.3 ms. We also succeeded in identifying the absorption line spectrum of ammonia gas, which is a biomarker for kidney disease by this method. The measurable full spectral bandwidth can be extended simply by adding more electro-optic phase modulators. This automatic interpolation technique enables single-shot measurement and provides a practical platform for broadband, high-resolution, high-speed real-time spectroscopy.

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

様式 C - 19、F - 19 - 1、Z - 19、CK - 19 (共通)

1. 研究開始当初の背景

人間の呼気分析によりそこに含まれる病気に関係する特定分子(バイオマーカー)の量によって病気の有無を診断する方法が血液検査に代わる非侵襲な方法として長年研究されている。例えば、アセトンは糖尿病、アンモニアは腎臓病や喘息のバイオマーカーとなる。近年のレーザー分光技術の発達により、従来のガスクロマトグラフィー分析法では難しかった高速計測による診療現場での即時検査の可能性も見えてきた。呼気分析に必要な広いスペクトル領域にわたる高分解能な分光を高速に行う方法として、繰返し周波数が f_{rep} と $f_{\text{rep}} + \Delta f_{\text{rep}}$ のように僅かに異なる2台のモードロックレーザーを用いたデュアルコム分光法がある。2台のレーザーからの光は繰返し周波数と同じ等しい間隔に並んだ輝線スペクトルから成る光周波数コム光を形成する。両者の僅かな輝線スペクトル間隔の大きさの違い Δf_{rep} により、二つのコムを構成する各輝線スペクトルの光周波数差によって生じるビート周波数は、光周波数と線形関係になるので、回折格子等を用いずに光の周波数を RF 領域のビート信号に変換して計測する事が可能となる。本手法は、単一の検出器で多波長を同時に分光でき、分光器の波長分解能から来る制約も無いので、高分解能な分光を高速に行う事ができる[Appl.Phys.Express 8,082402(2015)]。しかしながら、2台のレーザーの繰返し周波数と位相を複雑な制御機構を用いて高精度に同期する必要があり、広い帯域に渡るスペクトルを一度に取得するためには別の低膨張ガラス光共振器に安定化した狭線幅レーザーを用いてコムを狭線幅化しなければならず、高度な技術を必要とする為に一部のレーザーの先端研究機関でのみで実施され、本分光法を世の中に広く普及させる為の壁となっていた。また、測定時間を短くする為には、レーザーの高繰返し化が必要となるが、光共振器ベースのレーザーでは 1 GHz の高繰返し化が限界である。

研究代表者は、2014年4月から2015年3月まで大学の海外研修制度を利用して、光周波数コムでノーベル物理学賞を受けたドイツのマックス・プランク量子光学研究所(MPQ)の T. W. Hänsch 教授の研究室に滞在し、MPQ と NTT との共同実験に参画し、研究代表者が NTT 在籍時代に研究に着手したフリーランニング連続発振半導体レーザーと電気光学変調器(EOM)ベースの 25 GHz 高繰返し光周波数コム光源技術と MPQ が取り組んで来たデュアルコム分光技術との組み合わせによる、フリーランニング連続発振半導体レーザーベースの新たなデュアルコム分光手法の共同実験を実施した。その結果、本手法にて 4.25 THz という広い範囲にわたる $\text{H}^{13}\text{C}^{14}\text{N}$ ガスの吸収線スペクトルの測定を行ってその原理実証を行い、CLEO2015 国際会議にて発表を行った。

2. 研究の目的

我々が提案したフリーランニング連続発振半導体レーザーと電気光学変調器を用いた新たなデュアルコム分光法は、そのシステム構成の簡便性と高繰返し周波数を活かした計測時間の高速化によって、優れた性能を持つがそのシステムの複雑さゆえに世の中一般への普及がさまたげられていたデュアルコム分光法を広く普及させられる可能性を秘めているが、実用化にあたっては解決すべき問題があることが原理実証実験にて明らかになった。25 GHz の高繰返し周波数は測定スペクトル帯域の広帯域化や高速計測、高 SN 比を得るのに必要であるが、光周波数コムの輝線スペクトル間隔も 25 GHz となるのでそれより細かい波長分解能を必要とする計測ではスペクトル補間を行う必要がある。先の原理実証実験ではコムのモード間隔 25 GHz の間の補間を行う為に、連続発振半導体レーザーの周波数を 250 MHz ずつ手動で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 250 MHz のスペクトル測定分解能を達成したが、手間が掛かり 1 時間以上の作業時間を要することになりリアルタイム分光や呼気診断における即時検査に利用して行く上での障害となっていた。そこで、スペクトルの補間を自動で瞬時に行う新たな手法を開発することで、短時間でのシングルショット計測を可能にし、デュアル EOM コム分光の呼気分析やリアルタイム分光計測への適用を可能にする事を目的とする。

3. 研究の方法

図 1 に我々が提案する自動補間法の実験系を示す。モードロックレーザーベースのデュアルコム分光法ではダウンコンバートされた RF 領域の計測スペクトルは、二つの光周波数コム光源からの近接した輝線スペクトル間の周波数差で決まり、各コムの光周波数とは関係しない。一方、我々が提案するデュアルコム EOM 分光法では、図 1 に示したように一つのシードレーザーからの光を二分岐して片方の光周波数を AOM を用いて f_{shift} だけシフトした後に電気光学変調器を用いて光周波数コム光を生成しているため、コムのモードの中心となるシード光波長をダウンコンバートした RF スペクトルの中心周波数はシードレーザー波長とは関係なく AOM の駆動周波数と一致する。従って、半導体レーザーの光周波数 f_{seed} をシフトさせながら、同時にそのシフト量に同期させて AOM の駆動周波数をスキャンしながら光周波数コム間の干渉時間信号を高速フォトディテクターで受けて AD 変換器で記録することにより、フーリエ変換後に得られるダウンコンバートスペクトルは、光周波数コムの 25 GHz のモード間隔が自動的に補間されたスペクトルとなる。同期は 2 チャンネル信号発生器から出力される AOM を駆動する周波数変調信号と、半導体レーザーのカレントを制御する三角波信号を用いて行った。

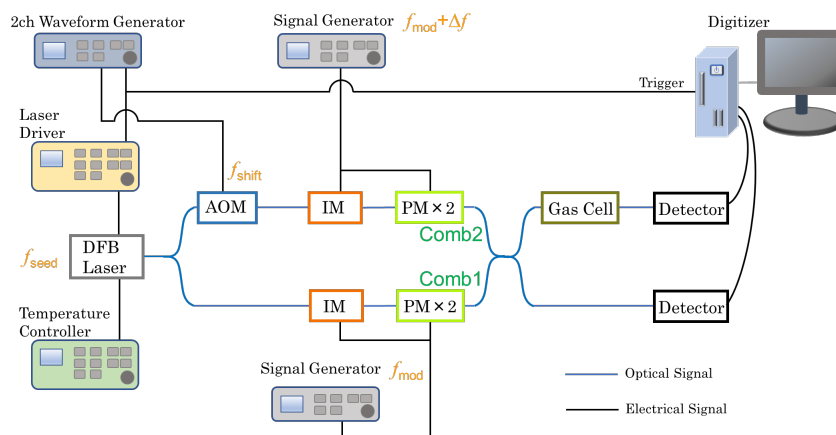


図1. スペクトルの自動補間システムの実験系

4. 研究成果

図2に今回開発した手法を用いて、光路長 16.5 cm、圧力 25 Torr の $\text{H}^{13}\text{C}^{14}\text{N}$ ガスセルの透過スペクトルをシングルショット計測した結果を示す。光周波数コムとの 25 GHz モード間隔の自動補間手法の開発により、データ取得時間わずか 9.3 ms で、250 MHz の光周波数分解能で 0.8 THz に渡るスペクトル帯域の分光計測に成功した。計測スペクトル帯域は、単に光位相変調器の台数を増やしてやるだけでさらに拡大する事が出来る。

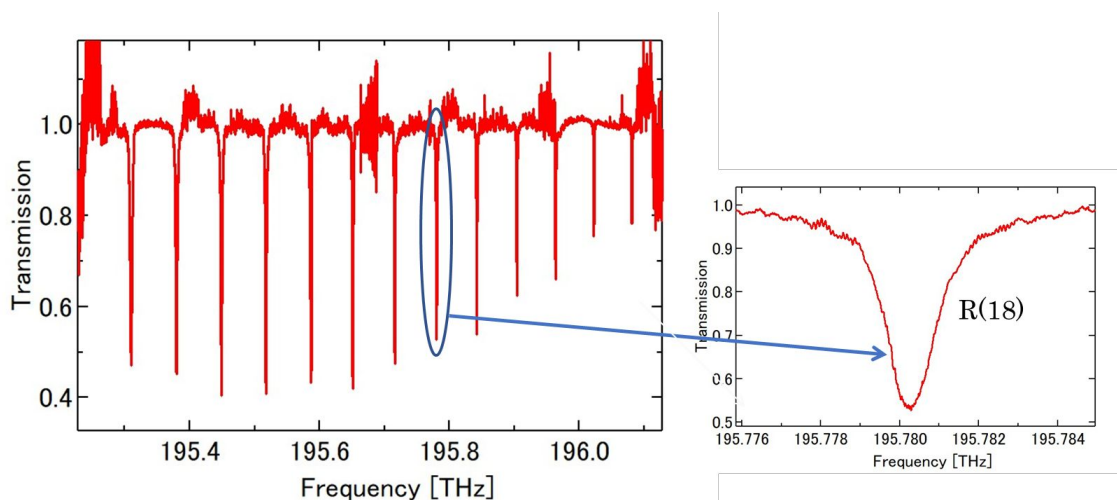


図2. $\text{H}^{13}\text{C}^{14}\text{N}$ ガスの吸収線スペクトルのシングルショット計測結果

また、通信波長帯の標準ガス試料として用いられている C_2H_2 の、光路長 5.5 cm、圧力 50 Torr のガスセルにおける吸収線スペクトルを 9.3 ms のシングルショットで計測し（赤実線）同じ条件で HITRAN データベースを元に計算した結果（緑破線）と比較した（図3）。我々のシングルショット計測結果は HITRAN データベースの結果と良く一致している。本成果は CLEO2019 国際会議で発表を行った。

さらに我々は、今回開発した自動補間法を用いて実際に腎臓病のバイオマーカーであるアンモニアの測定を行った。その結果、光路長 80 cm、圧力 740 Torr、濃度 300 ppm のガスセル中のアンモニアの吸収線を測定、識別する事に成功した。呼気分析に適用する為にはさらに計測感度を高める必要があるが、ガスセルの光路長を 20 倍に伸ばして、使用しているシードレーザー波長を現在の 1548 nm と比較してアンモニアの吸収係数が 5 倍になる 1515 nm に替える事で、3 ppm 程度の感度での測定が可能になる事を示せた。

以上のように、我々はデュアル EOM コム分光における 25 GHz モード間隔の自動補間法の開発に成功した。本手法により、25 GHz モード間隔 EOM コム光源を用いて、目的に応じてスキャン速度を調整する事で所望の波長分解能での、高速のシングルショットデュアルコム分光計測が可能となった。以上の研究開発により、広帯域、高分解能、高速分光計測が可能になり、その広帯域高分解能高速リアルタイム計測性能を活かした、呼気分析や環境ガスリモートセンシング、燃焼過程モニタリング、生体反応計測等への展望を開く事が出来た。

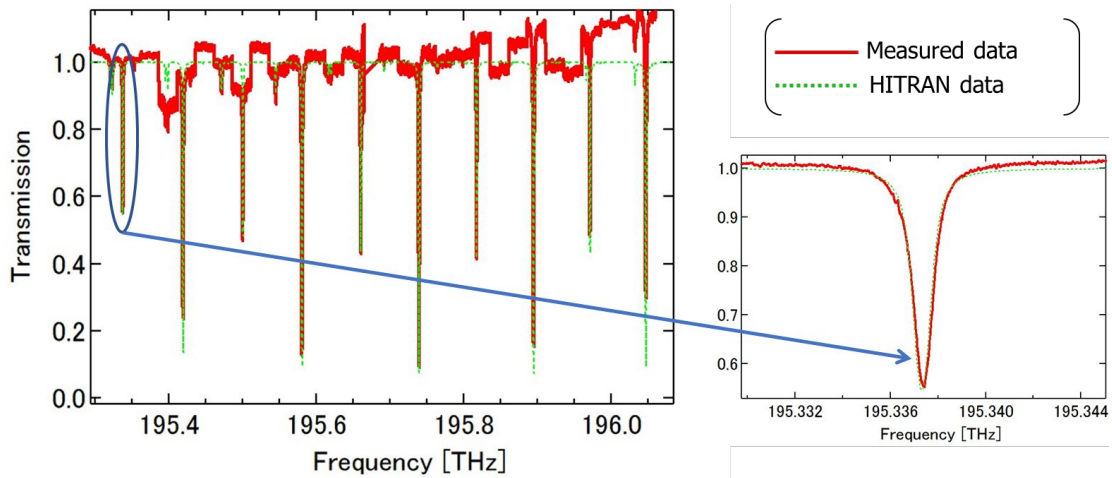


図 3. C_2H_2 ガスの吸収線スペクトルのシングルショット計測結果の HITRAN との比較

5 . 主な発表論文等

[雑誌論文] (計 7 件)

Atsushi Ishizawa, Kenya Hitomi, Kazutaka Hara, Kenichi Hitachi, Tadashi Nishikawa, Tetsuomi Sogawa, and Hideki Gotoh, "Simple method for stabilizing an optical frequency comb to an optical reference without an RF signal generator," *OSA Continuum*, 2(5), 1706-1712, (April 2019). 査読有
<https://doi.org/10.1364/OSAC.2.001706>

K. Hitachi, M. Someya, A. Ishizawa, T. Nishikawa, and H. Gotoh, "Characterization of longitudinal acoustic phonons in InGaAsP multiple quantum wells by asynchronous optical sampling," *Applied Physics Letters* 113(20), 201102, (November 2018). 査読有
<https://doi.org/10.1063/1.5041475>

石澤 淳、西川 正、日達 研一、後藤 秀樹、「電気光学変調光コムを用いた超高精度周波数変換技術」、*レーザー研究*、第 46 巻第 2 号、pp. 80-85 (2018 年 2 月)。査読有

Atsushi Ishizawa, Takahiro Goto, Rai Kou, Tai Tsuchizawa, Nobuyuki Matsuda, Kenichi Hitachi, Tadashi Nishikawa, Koji Yamada, Tetsuomi Sogawa, and Hideki Gotoh, "Octave-spanning supercontinuum generation at telecommunications wavelengths in a precisely dispersion- and length-controlled silicon-wire waveguide with a double taper structure," *Applied Physics Letters* 111(2), 021105, (July 2017). 査読有
<https://doi.org/10.1063/1.4992112>

K. Hitachi, K. Hara, O. Tadanaga, A. Ishizawa, T. Nishikawa, and H. Gotoh, "Reduced pulse energy for frequency comb offset stabilization with a dual-pitch periodically poled lithium niobate ridge waveguide," *Applied Physics Letters* 110(24), 241107, (June 2017). 査読有
<https://doi.org/10.1063/1.4986444>

A. Ishizawa, R. Kou, T. Goto, T. Tsuchizawa, N. Matsuda, K. Hitachi, T. Nishikawa, K. Yamada, T. Sogawa, and H. Gotoh, "Optical nonlinearity enhancement with graphene-decorated silicon waveguides," *Scientific Reports* 7, 45520, (April 2017). 査読有
<https://doi.org/10.1038/srep45520>

[学会発表] (計 3 1 件)

Atsushi Ishizawa, Tadashi Nishikawa, Kenichi Hitachi, Kenya Hitomi, and Hideki Gotoh, "Ultra-Low Phase Noise Microwave Generation with 25-GHz Electro-Optics-Modulation Comb," *OECC/PSC 2019*, Fukuoka (Japan), 7-11 July 2019.

Tadashi Nishikawa, Akira Oohara, Shohei Uda, Atsushi Ishizawa, Kenichi Hitachi, Nathalie Picqué, and Theodor W. Hänsch, "Automatic Interpolation of 25 GHz Mode Spacing in Dual EOM Comb Spectroscopy," *Conference on Lasers and Electro-optics (CLEO2019)*, San Jose (USA), 5-10 May 2019, SF11.3.

Atsushi Ishizawa, Tadashi Nishikawa, Kenichi Hitachi, Kazutaka Hara, Kenya Hitomi, Tomoya Akatsuka, Tetsuomi Sogawa, and Hideki Gotoh, "Ultra-low noise microwave generation using carrier-envelope-offset signal of 25-GHz EOM comb," *Conference on Lasers and Electro-optics (CLEO2019)*, San Jose (USA), 5-10 May 2019, SW4G.2.

A. Ishizawa, T. Nishikawa, K. Hitachi, and H. Gotoh, "Generation of ultralow-phase-noise millimeter-wave signal using an electro-optics-modulation comb," 2019 URSI Asia-Pacific Radio Science Conference (AP-RASC 2019), New Delhi (India), 9-15 March 2019, Th-DO8-6.

大原憲, 宇田祥平, 石澤淳, 日達研一, Nathalie Picque, Theodor Haensch, 西川正, 「デュアル EOM コム 分光における 25GHz モード間隔の自動補間法」, レーザー学会学術講演会第 39 回年次大会、2019 年 1 月 12 日、B-12pVII-5。

Kenichi Hitachi, Mayu Someya, Atsushi Ishizawa, Tadashi Nishikawa, Hideki Gotoh, "Characterization of Acoustic Phonons in InGaAsP MQW by Asynchronous Optical Sampling," Pacific Rim Conference on Lasers and Electro-Optics (CLEO-PR 2018), Hong Kong (China), 29 July-3 Aug 2018, W4B.5.

Kenya Hitomi, Atsushi Ishizawa, Kenichi Hitachi, Tadashi Nishikawa, Hideki Gotoh, Tetsuomi Sogawa, and Kazutaka Hara, "Simple method to lock an optical frequency comb to an ultra-stable laser without an RF signal generator," Pacific Rim Conference on Lasers and Electro-Optics (CLEO-PR 2018), Hong Kong (China), 29 July-3 Aug 2018, W2F.5.

鈴木将之, 「時間伸張フーリエ分光によるファイバーレーザーにおける超高スペクトルダイナミクス」, ファイバーレーザー技術専門委員会 第 2 回委員会、2018 年 7 月 26 日、7)。

A. Ishizawa, T. Nishikawa, K. Hara, K. Hitachi, T. Sogawa, and H. Gotoh, "Carrier-envelope-offset locking of 25-GHz EOM comb based on a free-running CW Laser Diode," Conference on Lasers and Electro-optics (CLEO2018), San Jose (USA), 13-18 May 2018, SM4L.5.

鈴木将之, 黒田寛人, 「フォトリソニック結晶ファイバーを用いた Yb ファイバーレーザー励起広帯域光生成」, 第 65 回応用物理学学会春季学術講演会、2018 年 3 月 18 日、18p-P1-2。

宇田 祥平、大原 憲、石澤 淳、日達 研一、西川 正、「デュアル電気光学変調コム分光法によるアセチレン吸収線スペクトル測定」, レーザー学会学術講演会第 38 回年次大会、2018 年 1 月 24 日、E-24pIII-10。

K. Hitachi, K. Hara, O. Tadanaga, A. Ishizawa, T. Nishikawa, and H. Gotoh, "Reduced pulse energy for frequency stabilization with a dual-pitch periodically poled lithium niobate ridge waveguide" Lasers and Electro-Optics Europe & European Quantum Electronics Conference (CLEO/Europe-EQEC 2017), Munich(Germany), 25-29 June 2017, ED-P.6

[産業財産権]

出願状況 (計 4 件)

名称：光周波数計測装置

発明者：石澤淳、日達研一、西川正、原一鳳

権利者：日本電信電話株式会社、学校法人東京電機大学

種類：特許

番号：特願 2018-190682

出願年：2018 年

国内外の別：国内

名称：光周波数計測装置

発明者：石澤淳、日達研一、西川正、原一鳳

権利者：日本電信電話株式会社、学校法人東京電機大学

種類：特許

番号：特願 2018 -036202

出願年：2018 年

国内外の別：国内

名称：光周波数コム安定化装置

発明者：石澤淳、日達研一、西川正、人見賢弥、原一鳳

権利者：日本電信電話株式会社、学校法人東京電機大学

種類：特許

番号：特願 2018 -008591

出願年：2018 年

国内外の別：国内

名称：信号発生器および信号発生方法
発明者：石澤淳、日達研一、西川正
権利者：日本電信電話株式会社、学校法人東京電機大学
種類：特許
番号：特願 2017-160018
出願年：2017 年
国内外の別：国内

〔その他〕

2019 年 5 月 31 日 レーザー学会業績賞（論文賞解説部門）受賞
石澤 淳、西川 正、日達 研一、後藤 秀樹、「電気光学変調光コムを用いた超高精度周波数変換技術」、レーザー研究、第 46 巻第 2 号、pp. 80-85 (2018 年 2 月)

6 . 研究組織

(1)研究分担者

研究分担者氏名：石澤 淳

ローマ字氏名：(ISHIZAWA, Atsushi)

所属研究機関名：日本電信電話株式会社 NTT 物性科学基礎研究所

部局名：量子光物性研究部

職名：主任研究員

研究者番号（8 桁）：30393797

研究分担者氏名：日達 研一

ローマ字氏名：(HITACHI, Kenichi)

所属研究機関名：日本電信電話株式会社 NTT 物性科学基礎研究所

部局名：量子光物性研究部

職名：主任研究員

研究者番号（8 桁）：60564276

研究分担者氏名：鈴木 将之

ローマ字氏名：(SUZUKI, Masayuki)

所属研究機関名：愛知医科大学

部局名：医学部

職名：准教授

研究者番号（8 桁）：60622371

(2)研究協力者

研究協力者氏名：原 一鳳

ローマ字氏名：(HARA, Kazutaka)

研究協力者氏名：宇田 祥平

ローマ字氏名：(UDA, Shohei)

研究協力者氏名：大原 憲

ローマ字氏名：(OOHARA, Akira)

研究協力者氏名：人見 賢弥

ローマ字氏名：(HITOMI, Kenya)

科研費による研究は、研究者の自覚と責任において実施するものです。そのため、研究の実施や研究成果の公表等については、国の要請等に基づくものではなく、その研究成果に関する見解や責任は、研究者個人に帰属されます。