

**科学研究費助成事業 研究成果報告書**

平成 30 年 6 月 25 日現在

機関番号：32682

研究種目：挑戦的萌芽研究

研究期間：2016～2017

課題番号：16K13858

研究課題名(和文) 高分散素子を用いた高速分光計の開発

研究課題名(英文) high-speed spectrometer by using a large optical dispersion

研究代表者

鈴木 隆行 (Suzuki, Takayuki)

明治大学・理工学部・専任准教授

研究者番号：80539510

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 2,700,000円

研究成果の概要(和文)：長距離光ファイバー伝搬により超短パルス光に付与される高分散がパルス幅を伸長する効果を利用し、スペクトルを時間の関数として計測する機構を研究した。実際には本手法による分光計測におけるファイバー長の依存性を定量的に明らかにし、さらに干渉スペクトルへの応用、周波数分解能の評価を行った。さらに簡単なモデルでファイバー長を適切なファイバー長を設計することも見出した。予定項目を早期に達成したので、実際の分光測定へと研究を展開した。別の研究課題である気体分子の振動ラマン分光への応用を試みた。実際には一桁ほどの感度不足が明らかとなったが、分光測定の方法自体を改善することで、実用可能であると期待できる。

研究成果の概要(英文)：We investigated the possibility of high-speed spectroscopy of ultrashort optical pulses by using large optical dispersion. An optical pulse becomes elongated with temporally varying frequency by passing through a dispersive material. Therefore, one can obtain the spectrum of the pulse in the form of its temporal waveform. In this study, we developed a high-speed spectrometer based on this principle. We examined the dependence on the fiber length of the pulse length and the rate of frequency variation. We evaluated the frequency resolution of this scheme experimentally as well as numerically by assuming second-order dispersion and Gaussian-shape pulses. We also verified that the spectroscopic technique works for interference spectra using a single-mode optical fiber. Additionally, we attempted to apply the scheme for Raman spectroscopy of molecular vibrations and found that higher sensitivity is required for nonlinear spectroscopy.

研究分野：レーザー物理学

キーワード：レーザー物理 超短パルスレーザー 超高速分光

### 1. 研究開始当初の背景

近年、レーザー発振器から出力される弱い光パルスでさえも分子振動を感度良くとらえたり、分子振動や構造変化を積極的に制御したりするのに足りる光強度や帯域を有するようになってきた。発振器出力を利用すれば秒間  $10^{10}$  発の光パルスを用いて実験することができるため、当該研究の劇的な高速化が期待できる。しかし実際には分光速度が律速となり、秒間 1000 回程度が分光測定の限界速度となっている。これは通常分光器が回折格子を用いた空間分散をベースとして、CCDやCMOSカメラを用いて計測しており、その検出素子の応答速度が測定速度を制限している主たる要因である。

### 2. 研究の目的

本研究では、高速な分光光度計の開発を目指す。フェムト秒レーザー発振器の繰り返し周波数である数十 MHz の取得レートを達成することにより、光パルス発ごとのスペクトル計測が可能となり、これによりシングルパルスそれぞれを活用した高速な分光測定への礎としたい。

### 3. 研究の方法

最近、従来通りの空間分散型の分光器に代わり、光パルスの時間的な伸長を利用した時間領域での分光計測が提案され、実現されつつある。これは繰り返えされる光パルスに大きな分散を付与し、チャープパルスとすることが中心的発想である。チャープパルスは時々刻々瞬時周波数が変わるので、その強度波形を測定することで、光パルスのスペクトルを時間波形として得ることができる。フェムト秒パルスを適切な長さの正常分散光ファイバーに通せば、光パルスに所望の分散を付与することができるので、何ら複雑な機構を用いずに超短パルス光をチャープパルスへと変換できる。本研究ではこのアイデアを基に、高速な分光光度計を開発する。

発振器出力の光パルスは 100 MHz 程度の繰り返し周波数を持つため、個々のパルスはおよそ 10 ns ごとに検出器に到達する。このことから光パルスを 10 ns 程度まで広げたチャープパルスが最適となる。このとき、周波数の分解能は時間波形を計測する際の時間分解能で決まるため、10 ns に対して以下に短い応答速度で計測できるかがカギとなる。

### 4. 研究成果

実験では 80 MHz の繰り返し周波数を持つチタンサファイアレーザー発振器 (Spectraphysics, integral element pro 1000) の出力を用いた。この出力パルスのスペクトルは 700-900 nm に広がっている。繰り返し周期が 12.5 ns であることから、この時間領域いっぱい 200 nm の帯域を広げたとすれば単位時間当たりの波長成分はおおよそ 16 nm/ns となる。通常の空間分散型の分

光器の分解能が 1 nm を下回る程度であるとし、それと同等の分解能を確保するためには 62.5 ps の時間分解能を持って測定する必要がある。本研究では光検出器として 12.5 ps の高速応答タイプの光検出器 (Newport 社, 1474-A) と 47 ps の立ち上がり速度を持つオシロスコープ (Tektronix, DSA70804) を組み合わせて用いた。

まず、長さの異なる石英製のシングルモード光ファイバーを複数用意し、ファイバー伝搬による光パルスの伸長を確認した。

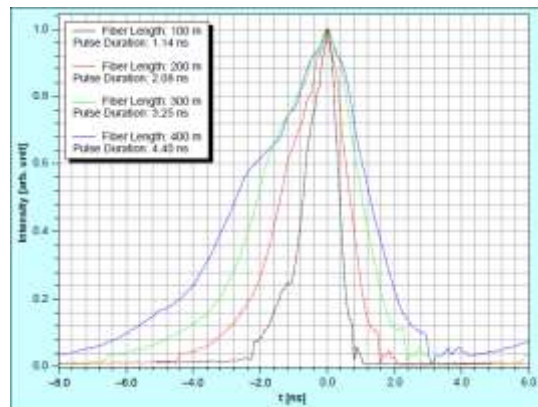


図1 時間波形のファイバー長依存性

図1に 100, 200, 300, 400 m の光ファイバーを伝搬した後の光パルスの時間波形の実測図を示す。数百メートルの石英ファイバーを伝搬することで実際にナノ秒オーダーの実測可能な時間幅を持つ光パルスが得られている様子がわかる。

次にこの時間波形が実際に光パルスのスペクトルを示していることを示すために、従来型の分光器 (Avantes, AvaSpec-ULS3648) の結果と比較しながら計測を行った。また、スペクトルの形状を特徴的なものとするために、マイケルソン型の干渉計を構築し、その干渉スペクトルを試験スペクトルとして用いた。この場合、干渉計の2つの光路の相対距離の差によって干渉フリンジの細かさを調整できる。この効果を利用して、スペクトルの変化が、伸長した時間波形の変化として現れるかを試した。

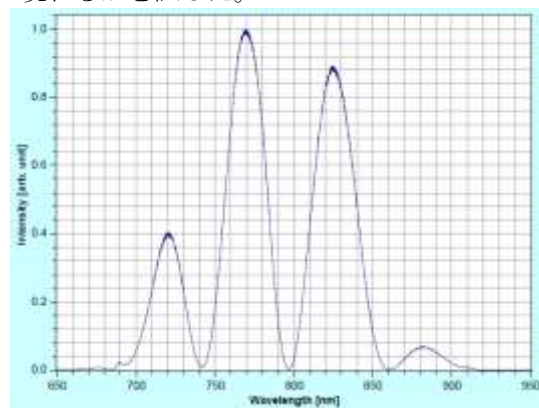


図2 干渉スペクトル実測例

図2は干渉計によって作られた干渉スペクト

ルを従来型の分光器で測定した結果である。このように2つの光路の光路長差に応じた干渉フリンジが現れる。このときの時間波形の実測例を図3に示す。このように時間波形においてもスペクトルに応じたフリンジが計測されている。

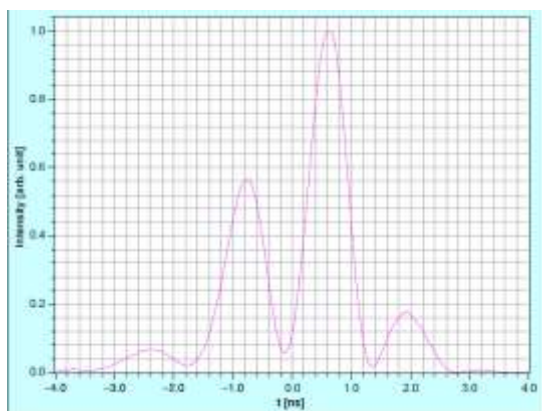


図3 干渉パルスの時間波形の実測例

この測定では数百メートルの光ファイバーが周波数情報を時間軸に展開できていること、それを高速な検出器でとらえることによって実測できることを示している。さらにこの方法ではファイバーを伝搬することによる干渉の消失が懸念されていたが、シングルモードファイバーを選べばその心配もないことも確認できた。

次に、干渉フリンジのピークの位置を比較することにより、時間波形として測定したスペクトルの波長を校正した。また、これをファイバー長ごとに行うことで、ファイバー長に対する時間分解能も明らかにすることができる。図4は100-700 mまで100 m刻みでファイバー長を変化させたときの周波数変化率を計測しプロットした結果である。

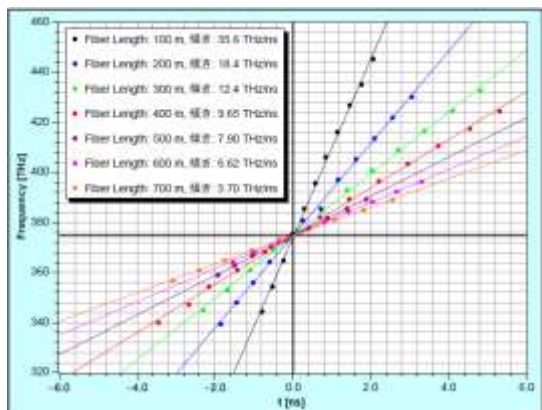


図4 周波数変化率の解析結果

ファイバー長を増すごとに単位時間当たりの周波数変化が小さくなっている様子がわかる。これは同じ時間分解能で光検出を行った場合の周波数の分解能の向上を表している。各ファイバー長の周波数変化率をまとめた結果を図5に示す。ファイバー長による周波数変化率の変化を、ガウス型を仮定した光パルスが2次の屈折率分散を持つ媒質中を伝

搬するモデルで計算し、その結果を図5の赤線で示す。このモデルの結果と実測結果ははととてもよく一致しており、このような単純なモデルを用いてファイバー長を見積もって構わないという知見を得た。

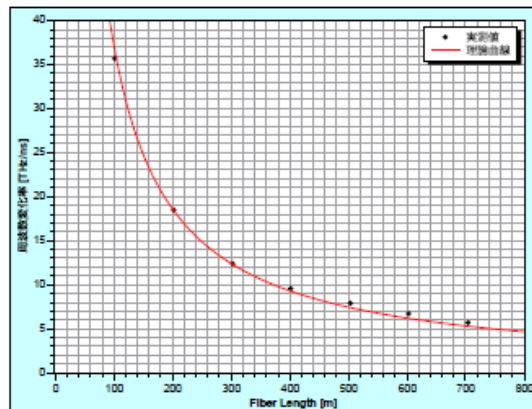


図5 ファイバー長に対する周波数変化率

干渉スペクトルのフリンジを細かくしていくと、応答速度の限界からフリンジが観測できなくなる。これを利用することで本研究での装置の応答時定数を見積もると50 psであった。この値と、周波数変化率の値を用いると周波数分解能を算出できる。本研究の条件ではファイバー長400 mで483 GHz、700 mで285 GHzであることが分かった。この値は波長分解能に換算して800 nm帯で1 nmを下回る程度であることが確認できる。

最後に感度についても評価をした。光ファイバーに取り込む直前のレーザーのパワーを計測し、徐々に弱めていった際に計測できる限界の光パワーを検出限界とした。代表的なファイバー長として400 mを採用し、測定したところ、およそ8  $\mu$ Wの時に、4 mV程度の信号強度で検出された。ノイズレベルが2 mV程度であるので、数 $\mu$ Wと現状での検出限界であると結論付けられる。光パルスを何発分か積算すればさらに感度を向上させることもできるが、それは当然のことながら取得レートを減少させることに直結するので、単発での分光感度はやはり数 $\mu$ Wといえる。

## 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2件)

- ① 田中溪, 森田芳恵, 鈴木隆行「干渉型ラマンイメージングのための高速スペクトル測定」, 第64回応用物理学会春季学術講演会, 16p-311-10.
- ② T. Suzuki, Y. Obara, K. Misawa「Phase-sensitive multiplex-CARS spectroscopy for label-free molecular imaging」The 55<sup>th</sup> annual meeting of the biophysical society of Japan,

symposium of Biological information  
probed by optical microscopes using  
scattering and absorption, 3SAA-4.  
〔図書〕（計0件）

〔産業財産権〕

○出願状況（計0件）

名称：  
発明者：  
権利者：  
種類：  
番号：  
出願年月日：  
国内外の別：

○取得状況（計0件）

名称：  
発明者：  
権利者：  
種類：  
番号：  
取得年月日：  
国内外の別：

〔その他〕

ホームページ等

## 6. 研究組織

### (1) 研究代表者

鈴木 隆行 (SUZUKI, Takayuki)  
明治大学・理工学部物理学科・准教授  
研究者番号：80539510

### (2) 研究分担者

( )

研究者番号：

### (3) 連携研究者

( )

研究者番号：

### (4) 研究協力者

( )