

令和 4 年 6 月 6 日現在

機関番号：17102

研究種目：基盤研究(C) (一般)

研究期間：2018～2021

課題番号：18K04982

研究課題名(和文) 分子変調連続発振ラマンコムの開発

研究課題名(英文) Development of a molecularly-modulated continuous-wave Raman comb

研究代表者

財津 慎一 (Zaitzu, Shin-ichi)

九州大学・工学研究院・准教授

研究者番号：60423521

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 3,400,000円

研究成果の概要(和文)：光波を制御するための新しい方法である「連続発振分子光変調器」を用いて、10テラヘルツを超える周波数間隔で等間隔に並ぶ「連続発振ラマンコム」を実現した。その新しい光波の特性を評価するために、干渉型自己相関波形測定と光ヘテロダイン干渉法を組み合わせ、ラマンコム間の位相測定方法を新たに開発した。この測定法によって、17.6THzで変調された連続発振ラマンコム位の位相差測定を実現した。

研究成果の学術的意義や社会的意義

本研究で開発した「連続発振ラマンコム」の位相測定方法は、(1)位相と振幅を制御した複数のラマンコム合成によって得られる光シンセサイザー、(2)10THzを超える繰り返し周波数で発振する画期的な分子変調モード同期レーザー、(3)極限的な周波数の精度で発生する単一周波数テラヘルツ波光源、(4)原子・分子の準位間の複数の遷移に同時にアクセスできる位相同期レーザーなどの新しい展開への貢献が期待される。また、これらの光源は、超高速光通信、精密原子/分子分光、高精度光計測・センシングなど、社会の発展に寄与する応用が期待できる。

研究成果の概要(英文)：A continuous-wave (cw) Raman comb that provides an equally-separated narrow-line frequency components at a frequency of larger than 10 THz was demonstrated. It is based on a "continuous-wave molecular-optic modulator" that is a newly-developed method to control a lightwave. In order to characterize the cw Raman comb, a method to measure a phase-relationship between comb lines by combining an interferometric autocorrelator and optical heterodyne detector was developed. This allows us to quantify a phase difference of the cw Raman comb modulated at a frequency of 17.6 THz.

研究分野：非線形光学

キーワード：ラマン効果 光共振器増強 非線形光学 光変調 四光波混合

1. 研究開始当初の背景

申請者が初めて報告した「連続発振分子光変調器」は、申請者が独自に提案し、これまでに取り組んできた「共振器位相整合非線形光学」(S. Zaitzu et al., Phys. Rev. Lett. 100, 073901 (2008))の原理を基礎としている。一般的に、位相不整合の大きさは非線形光学媒質の有する「分散」によって決定される。この原理の新しい着想は、非線形光学過程における位相整合条件を、光共振器の助けを借りて満足させるというものである。光共振器中に充填された媒質の有する「正」の分散を、光共振器を構成する高反射鏡の「負」の分散によって打ち消し合うことによって、共振器内非線形光学過程の位相整合を満足させ、その効率を飛躍的に高めることができる。

この手法を用いることによって、申請者は世界で初めて、連続発振光に対して分子コヒーレント運動による光波変調を実現した(図1参照)。一般的に分子運動の周波数は、テラヘルツの領域に存在し、それをコヒーレントに励起することによって、超高速に変化する分極率を得ることができる。それを光波と相互作用させ、テラヘルツの周波数での光波変調を実現することができる。この時、上述した「共振器位相整合」の原理によって光波変調の位相整合条件を満足させ、高い効率でテラヘルツの周波数間隔で位相関係の決まったラマンサイドバンドを発生させた。申請者はこの方法により、これまでの一般的な光波の変調周波数(～ $10^{10}$ Hz)を劇的に増大( $>10^{13}$ Hz)させ、これを「連続発振分子光学変調法」と命名した。

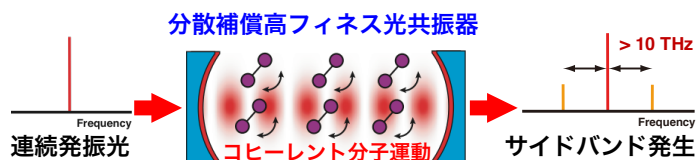


図1. 共振器位相整合に基づく連続発振分子光学変調法

この時、上述した「共振器位相整合」の原理によって光波変調の位相整合条件を満足させ、高い効率でテラヘルツの周波数間隔で位相関係の決まったラマンサイドバンドを発生させた。申請者はこの方法により、これまでの一般的な光波の変調周波数(～ $10^{10}$ Hz)を劇的に増大( $>10^{13}$ Hz)させ、これを「連続発振分子光学変調法」と命名した。

2. 研究の目的

この研究提案の核心をなす学術的な問いは、光源の発展に欠くことのできなき寄与をもたらしてきた「光変調器の次なる展開は何であろうか?」という点である。申請者はこの問いへの回答として、上述したような「共振器位相整合非線形光学」に基づき、変調原理として分子のコヒーレントな運動に基づいた光変調器である「連続発振分子光変調器」を初めて実現した(S. Zaitzu et al., Sci. Rep., Vol. 6, 20908 (2016))。これは、これまでの一般的な光変調器の性能を3桁上回る10THzを超える周波数で動作する。本研究では、この連続発振分子光変調器をさらに発展させた「連続発振ラマンコム」を実現し、その特性評価を目的とする。

3. 研究の方法

(1) 自己相関波形測定法によるラマンコム間の位相差測定

① ガラスプリズム対を用いた位相差の付与

位相差を測定するために、実験装置に新しくガラスプリズム対を設置した。連続発振ラマンコムが形成する超短光パルス列がガラスプリズムを透過するとき、基本光、ストークス光、アンチストークス光はその波長の違いから屈折率にも違いが生じる。そのため、ガラスプリズム透過前と透過後では3波長成分の位相関係が変化する。さらにこのガラスプリズム対は厚みを変化させることが出来るため、それにより様々な位相差での自己相関波形を測定することが可能となる。概要図を図2に示す。

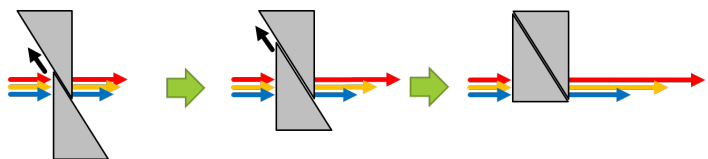


図2. ガラスプリズム対によるラマンコム間の位相差の変化

② 連続発振ラマンコムの位相差測定

連続発振ラマンコム間の位相差を測定するための光学系を図3に示す。チタンサファイアレーザーから出力された連続発振光を、水素が充填された共振器に入射した。共振器出力光を上記したガラスプリズム対に通過させ、その後マイケルソン型干渉計を通過したビームをBBO結晶に集光することで第二次高調波を発生させた。回折格子を用いて第二次高調波のみを光電子増倍管とオシロスコープにより検出した。ビームスプリッターで分けられた2つの光の時間的な重なり具合を、ピエゾステージにより変化させながら第二次高調波を測定することで自己相関波形を得た。ガラスプリズム対の厚みを13 mmから28 mmまで変化させ、各厚みで自己相関波形を測定した。ここで、各厚みでの自己相関波形の光強度  $I$  を、ピーク高さ ( $a$ ) とベースライン高さ ( $b$ ) の比 ( $I=a/b$ ) で評価した。位相差が変化すると光強度  $I$  が変化すると考えられる。

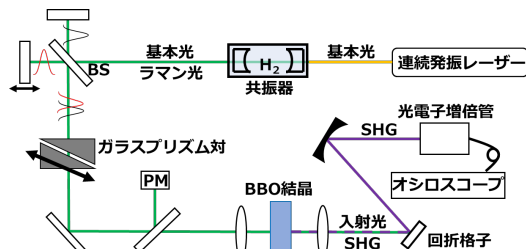


図3. 自己相関波形測定光学系

(2) 光ヘテロダイン干渉法によるラマンコム間の位相差測定

① 光ヘテロダイン信号の測定

等周波数間隔に並ぶラマンコムの周波数を  $\omega_n = \omega_0 \pm n \cdot \Omega$  ( $n = \dots -2, -1, 0, 1, 2, \dots$ ) とする時、基本光  $\omega_0$  の第 2 高調波 (SHG) と  $\omega_{+n}$  と  $\omega_{-n}$  の和周波 (SFG) は互いに干渉し、その信号強度はラマンコムの位相差の情報を有している。本研究では、この信号を光ヘテロダイン干渉法によって観測し、ラマンコム間の位相差を測定する。光ヘテロダイン干渉のための光学系を図 4 に示す。チタンサファイアレーザーから出力された連続発振レーザー光を、水素を充填した共振器に入射し、ストークス光とアンチストークス光を発生させた。これら成分を含む光波を BBO 結晶に集光することで第二次高調波を発生させた。SHG スペクトルの測定装置には分光器を用いた。

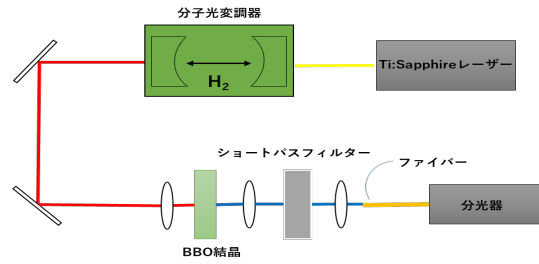


図 4. 光ヘテロダイン干渉光学系

② 連続発振ラマンコムの位相差測定

光ヘテロダイン干渉法を用いた位相差測定のための光学系を図 5 に示す。チタンサファイアレーザーからの連続発振レーザー光を、水素を充填した共振器に入射し、ストークス光、アンチストークス光を発生させた。これらの周波数成分が基本光と干渉することにより超短光パルス列が発生する。この 3 成分を含む光波を、周波数成分間の位相差を変化させるためのガラスプリズム対に通過させた。その後、BBO 結晶に集光し、第二次高調波と和周波を発生させる。回折格子を用いて第二次高調波のみを光電子増倍管とオシロスコープにより検出した。ビームスプリッターで分けられた 2 つの光の時間的な重なり具合をピエゾステージにより変化させながら第二次高調波を測定することで自己相関波形を得た。同時に、第二次高調波と和周波のスペクトル (光ヘテロダイン信号) を分光器で測定した。

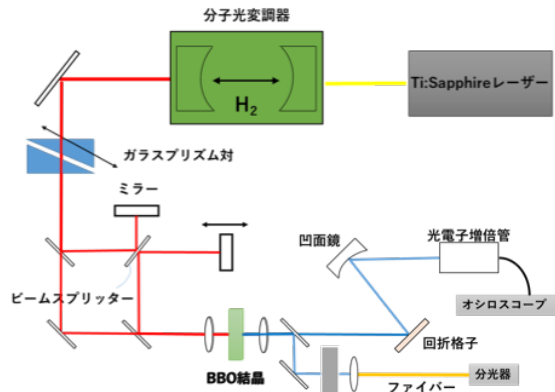


図 5. ラマンコムの位相差測定光学系

4. 研究成果

(1) 自己相関波形測定法によるラマンコム間の位相差測定

3 波長干渉時の自己相関波形を測定するために、水素圧力はアンチストークス光が発生する 7.70 atm に調整した。このとき積算時間 500 ms で測定したラマンコムスペクトルを図 6 に示す。BBO 結晶直前の光パワーは 13.1 mW だった。この条件でガラスプリズム対の厚みを 13 mm から 28 mm まで変化させたときの、各厚みでの光強度  $I$  を測定した。また、同様の条件で算出したシミュレーション波形の光強度も合わせて、図 7 に示す。図 7 より、3 波長干渉時はガラスプリズム対の厚み変化に伴って光強度が変化することが確認できた。2 波長干渉時は光強度が変化しなかったことから、この結果はガラスプリズム対の厚み変化による位相差の変化を反映していると考えられる。

基本光、ストークス光、アンチストークス光の 3 波長の合成で得られる超短光パルス列の形状を決める位相差  $\Delta \phi$  を以下のように定義する。ここで、 $\phi_F$ 、 $\phi_S$ 、 $\phi_{AS}$  はそれぞれ基本光、ストークス光、アンチストークス光の位相である。

$$\begin{aligned} \Delta \phi &= (\phi_F - \phi_S) - (\phi_{AS} - \phi_F) \\ &= 2\phi_F - \phi_S - \phi_{AS} \end{aligned}$$

この式において、 $\Delta \phi = 2n\pi$  のとき光強度は最大、 $(2n+1)\pi$  のとき光強度は最小となる。従って、光強度が最も高い、厚み 13 mm、25 mm のとき超短光パルス列の位相差が  $2n\pi$ 、光強度が最も低い、厚み 19 mm のとき位相差が  $(2n+1)\pi$  であることが明らかになった。

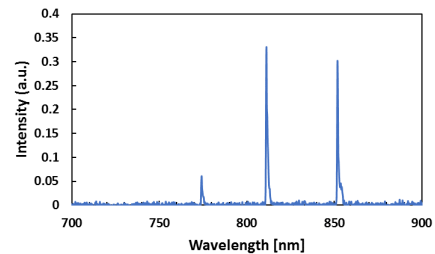


図 6. ラマンコムスペクトル

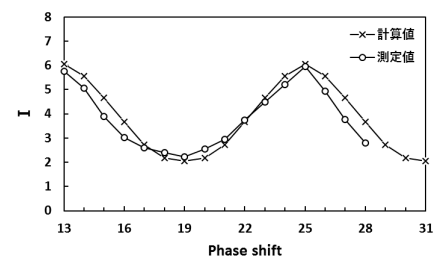


図 7. ガラスプリズムの厚みの変化に対する 3 波長干渉時の光強度変化

また、測定値と計算値はおよそ一致した。ここで、ガラスプリズム対の厚みを 13 mm から 28 mm まで変化させて測定した光強度は、厚み 12 mm から 27 mm まで変化させたときのシミュレーション結果と一致した。この結果から、本研究で発生させた超高繰り返し超短光パルス列には、ガラスプリズム 1 mm 分程度の位相のずれが含まれていたことが明らかになった。超短光パルス列は共振器内で位相のずれが 0 になるようにして発生するが、共振器から出力されてから光電子増倍管で検出されるまでの過程で複数の光学素子を通るため、それらの分散により位相がずれたと考えられる。

測定した自己相関波形、シミュレーション波形のうち、位相差  $2n\pi$ 、 $(2n+1)\pi$  のときの波形を図 8 に示す。各測定波形の左側の波形に乱れが生じた理由は、ピエゾステージが正確に稼働していないことが原因だと考えられる。測定波形とシミュレーション波形はおよそ一致した。以上の結果より、本測定系で超高繰り返し超短光パルス列の位相差を測定できることを明らかにした。

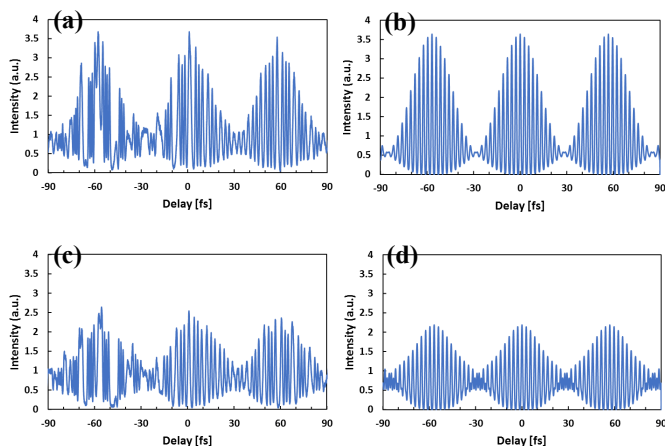


図 8 自己相関波形  
(a) 測定波形  $2n\pi$ 、(b) シミュレーション波形  $2n\pi$   
(c) 測定波形  $(2n+1)\pi$  (d) シミュレーション波形  $(2n+1)\pi$

## (2) 光ヘテロダイン干渉法によるラマンコム間の位相差測定

### ① 光ヘテロダイン信号の測定

中心波長 800 nm での、測定した結果を図 9 に示す。図 9、基本光のピークが 800 nm、ストークス光のピークが 840 nm、アンチストークス光のピークが 763 nm に現れている。この時の水素圧力は 7.25 atm であった。このラマンコムの SHG スペクトルを図 10 に示す。図 10 より、基本光の SHG が 400 nm、ストークス光の SHG が 420 nm、基本光とストークス光の和周波が 410 nm、基本光とアンチストークス光の和周波が 390 nm に現れている。400 nm に観測された信号は、ストークス光とアンチストークス光の SFG によって発生した成分も含んでいる。従って、この信号の強度は、ラマンコム間の位相差を反映して変化すると考えられる。

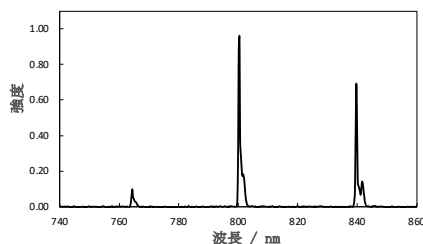


図 9. ラマンコムスペクトル

### ② 連続発振ラマンコムの位相差測定

中心波長 820 nm でのプリズムの厚さの変化 2.5 mm および、-2.5 mm での SHG スペクトルの結果をそれぞれ図 11(a) (b) に示す。

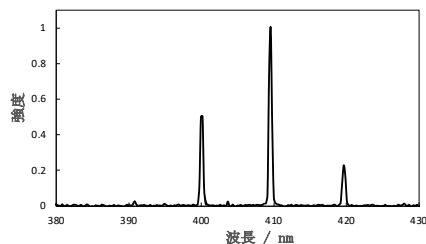


図 10. SHG スペクトル

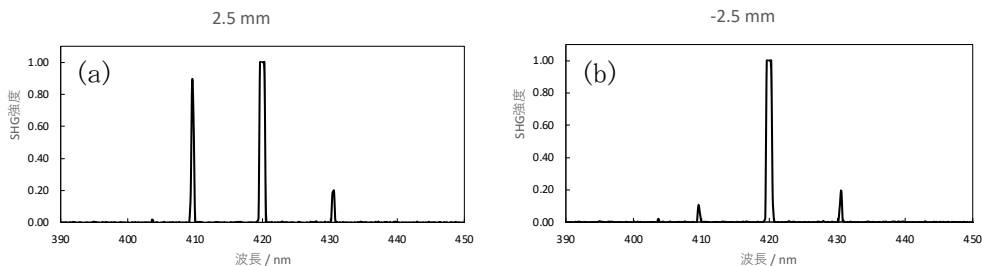


図 11. 位相差の負荷による光ヘテロダイン信号の強度変化(a) 2.5 mm、(b) -2.5 mm

中心波長 820 nm の場合、410 nm にみられるスペクトルが光ヘテロダイン信号に該当し、通過するプリズムの厚さによって光ヘテロダイン信号強度に強弱がみられることが分かった。この結果をもとに、プリズムを連続的に動かしながら SHG 信号強度の計測を行った。中心波長 820 nm での、410 nm の信号強度 ( $I_{410}$ ) に対する 400 nm の信号強度 ( $I_{400}$ ) の強度比 ( $I_{410}/I_{400}$ ) と、 $I_{400}$  に対する 430 nm の信号強度 ( $I_{430}$ ) の強度比 ( $I_{430}/I_{400}$ ) の変化を図 12 に示す。図 12 より、 $I_{430}/I_{400}$  の強

度比が変化していないことを確認できる。一方、ヘテロダイン信号 ( $I_{410}/I_{400}$ ) は正弦的な変化をしていることが分かる。よって、本実験系で位相差の測定が可能であることを示すことに成功した。

また、実験で得られた結果の妥当性を確かめるために、中心波長 820 nm の場合にガラスプリズムを通過時の  $\Delta\phi$  について計算を行った。ガラスプリズ

表 1. 石英厚さに対する位相変化

石英(厚さ)	$\Delta\phi$
28 mm	-14.6
30.5 mm	-16.0
33 mm	-17.3

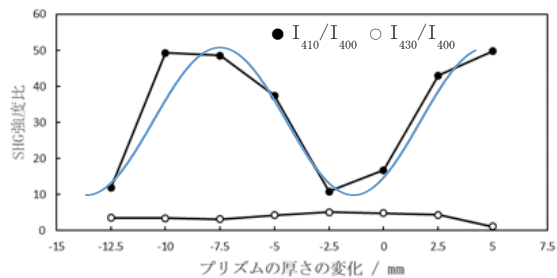


図 12. プリズムの厚さの変化に対する光ヘテロダイン信号の変化

ムの厚さが 28, 30.5, 33 mm のときの結果を表 1 に示す。この結果から位相を  $2\pi$  ずらすのに必要なプリズムの移動距離が 12.014 mm であることが分かる。この結果をもとに作成した  $\cos$  関数を図 12 に重ねている。これから、実験結果と計算結果の位相周期が一致していることを確認できた。



5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計1件（うち査読付論文 1件/うち国際共著 0件/うちオープンアクセス 1件）

1. 著者名 Shin-ichi Zaitzu, Takao Tsuchiya	4. 巻 8
2. 論文標題 A Molecularly Modulated Mode-Locked Laser	5. 発行年 2018年
3. 雑誌名 Scientific Reports	6. 最初と最後の頁 12175
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1038/s41598-018-30743-9	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスとしている（また、その予定である）	国際共著 -

〔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 竹山新悟、財津慎一、加地範匡
2. 発表標題 干渉型非線形自己相関法を用いた超高繰り返し超短光パルス列の時間波形評価
3. 学会等名 第80回応用物理学会秋季学術講演会
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 谷口溪一、財津慎一、加地範匡
2. 発表標題 共振器位相整合四光波混合による連続発振ラマンサイドバンドの観測
3. 学会等名 レーザー学会学術講演会第40回年次大会
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 Shin-ichi Zaitzu
2. 発表標題 Cavity-Enhanced Coherent Anti-Stokes Raman Spectroscopy for Realtime Trace Gas Analysis
3. 学会等名 SciX 2018（招待講演）（国際学会）
4. 発表年 2018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
---------	---------