慶應義塾大学学術情報リポジトリ
Keio Associated Repository of Academic resouces

| | |
|---|---|
| Title | 高分解能と広帯域を併せ持つコム直接分光の開発 |
| Sub Title | High-resolution broadband direct comb spectroscopy |
| Author | 長谷川, 太郎(Hasegawa, Taro) |
| Publisher | |
| Publication year | 2024 |
| Jtitle | 科学研究費補助金研究成果報告書 (2023. ) |
| JaLC DOI | |
| Abstract | 光周波数コムを直接分光の光源とするレーザー分光法(以後コム直接分光)は、広帯域・高精度・高速な赤外分光法である。本研究ではこれらの特徴に加え、「高分解能」の特徴を兼ね備えたコム直接分光法の確立を目指す。<br>本研究ではコム直接分光で高い分解能を達成するため、モード間隔が非常に狭い光周波数コムを開発した。一方、高速測定のためには繰り返し周波数が高い光周波数コムも必要である。本研究で、インターリービング法を新しく開発するとともに、より簡便に同等の光周波数コムが得られる高調波モード同期法を開発した。<br>The laser spectroscopy method utilizing an optical frequency comb directly as the light source (hereafter referred to as "direct comb spectroscopy") is a broadband, high-precision, and high-speed infrared spectroscopy technique. In this study, in addition to these features, direct comb spectroscopy with the characteristic of "high resolution" is developed.<br><br>To achieve high resolution in direct comb spectroscopy, we developed an optical frequency comb with very narrow mode spacing. On the other hand, for high-speed measurements, optical frequency combs with high repetition frequencies are also required. In this study, a new interleaving method is developed, and a simpler harmonic mode synchronization method to obtain equivalent optical frequency combs has been developed as well. |
| Notes | 研究種目：基盤研究 (C) (一般)<br>研究期間：2021～2023<br>課題番号：21K04930<br>研究分野：レーザー分光学 |
| Genre | Research Paper |
| URL | https://koara.lib.keio.ac.jp/xoonips/modules/xoonips/detail.php?koara_id=KAKEN_21K04930seika |

慶應義塾大学学術情報リポジトリ(KOARA)に掲載されているコンテンツの著作権は、それぞれの著作者、学会または出版社/発行者に帰属し、その権利は著作権法によって保護されています。引用にあたっては、著作権法を遵守してご利用ください。

The copyrights of content available on the KeiO Associated Repository of Academic resources (KOARA) belong to the respective authors, academic societies, or publishers/issuers, and these rights are protected by the Japanese Copyright Act. When quoting the content, please follow the Japanese copyright act.

様　式　Ｃ－１９、Ｆ－１９－１、Ｚ－１９　（共通）

# 科学研究費助成事業　　研究成果報告書

令和　６ 年　 ５ 月　 ２ 日現在

機関番号：３２６１２
研究種目：基盤研究(C)（一般）
研究期間：2021～2023
課題番号：２１Ｋ０４９３０

研究課題名（和文）高分解能と広帯域を併せ持つコム直接分光の開発

研究課題名（英文）High-resolution broadband direct comb spectroscopy

研究代表者
長谷川　太郎（Hasegawa, Taro）

慶應義塾大学・理工学部（矢上）・講師

研究者番号：８０２８９３０５

交付決定額（研究期間全体）：（直接経費）　　3,200,000円

研究成果の概要（和文）：光周波数コムを直接分光の光源とするレーザー分光法(以後コム直接分光)は、広帯域・高精度・高速な赤外分光法である。本研究ではこれらの特徴に加え、「高分解能」の特徴を兼ね備えたコム直接分光法の確立を目指す。
本研究ではコム直接分光で高い分解能を達成するため、モード間隔が非常に狭い光周波数コムを開発した。一方、高速測定のためには繰り返し周波数が高い光周波数コムも必要である。本研究で、インターリービング法を新しく開発するとともに、より簡便に同等の光周波数コムが得られる高調波モード同期法を開発した。

研究成果の学術的意義や社会的意義
本研究では波長分解能が非常に高い赤外線分光法へつながる基本的な手法や光源の開発に成功した。この成果により、従来と比較して高速かつ精密な赤外線分光が可能となる。
赤外線分光は大気中の温室効果ガス(メタンなど)の定量的評価に有用である。本研究の成果を大気中のリモートセンシングに応用すれば、例えば温室効果ガスの密度だけでなく、温度・圧力・同位体比などの網羅的な情報が得られる可能性がある。また、将来においては、詳細な分光情報が未知の他の複雑な分子(フロン・環境ホルモン・カーボンフラーレンなど)の分光情報を網羅的に得ることも可能になる。

研究成果の概要（英文）：The laser spectroscopy method utilizing an optical frequency comb directly as the light source (hereafter referred to as "direct comb spectroscopy") is a broadband, high-precision, and high-speed infrared spectroscopy technique. In this study, in addition to these features, direct comb spectroscopy with the characteristic of "high resolution" is developed.

To achieve high resolution in direct comb spectroscopy, we developed an optical frequency comb with very narrow mode spacing. On the other hand, for high-speed measurements, optical frequency combs with high repetition frequencies are also required. In this study, a new interleaving method is developed, and a simpler harmonic mode synchronization method to obtain equivalent optical frequency combs has been developed as well.

研究分野：レーザー分光学

キーワード：光周波数コム　高分解能分光　ヘテロダイン分光

※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、研究者個人に帰属します。

１．研究開始当初の背景

赤外線領域の分光情報には分子内の振動・回転準位に関する情報が豊富に含まれており、量子化学・環境リモートセンシング・星間物質の探索などの分野で重要である。従来は、FT-IR が広帯域赤外分光の代表であったが、近年は新しいレーザー光源である**光周波数コム**(以下 コム と記述する)を使用した分光法が注目されている。

コムの開発直後から、発振周波数が等間隔・広帯域に分布しているというコムの特性を利用して、コムを直接分光用光源として使用する新しい分光法(コム直接分光)が研究されている。デュアルコム分光・2 次元イメージング分光・コム-CW ヘテロダイン分光など、いくつかの手法が研究されている。コム直接分光は広帯域な分光法ではあるが、高分解能であるとは言えない。コム直接分光で記録される分光データ点間隔(周波数分解能)は通常は 50~200 MHz である。この程度の分解能では線幅が細いスペクトル(例えば二重共鳴分光で観測されるスペクトルは線幅が 1 MHz 以下程度)を見つけられない。また、この分解能は赤外領域のメタン分子スペクトル線幅と同程度である。したがって、分子の吸収スペクトル線に対して測定点が 2, 3 点しかない。このため、スペクトル形状の解析には不十分である。スペクトル線の形状は分光学的に重要な物理を含んでいるだけでなく、環境リモートセンシングにおいても重要である。すなわち、吸収スペクトル線の形状を精密に解析すると、分子の温度情報や気体圧力の情報が得られるので、例えば温室効果ガスの発生源の特定など、温室効果ガスの大気中でのダイナミクスに関する重要な知見が得られる。このような理由から、より高い分解能が望ましい。

コム直接分光の分解能を向上させるため、研究代表者はコムのモード間隔を整数分の 1 に狭める方法を開発した。本研究開始時点では、モード間隔を 1/256 にできており、分解能を 260 kHz にまで高分解能化できている [Taro Hasegawa, Opt. Express, **28,** 32837 (2020)]。これは現在、世界最高のコム直接分光の分解能である。

２．研究の目的

上記の背景を踏まえ、本研究の目的を次の 2 つとした。

(1) コム直接分光によるメタン分子の非線形分光

研究代表者が開発した高分解能コム直接分光法の実証を目的として、スペクトル線幅が細い吸収スペクトル線を測定する。そのようなスペクトル線は、非線形分光の 1 つである近赤外-中赤外二重共鳴分光で得られる。分光対象としてはメタン分子を選択する。メタンは二酸化炭素と並んで重要な温室効果ガスであるため、コム直接分光による大気中でのダイナミクスの解明は非常に重要な知見となる。二重共鳴分光ではスペクトル線幅が非常に狭くなる(1 MHz 以下)ので、高分解能コム直接分光法が有用になる。

(2) 広帯域かつ高分解能なコム直接分光法の開発

現状の分光法ではコム直接分光の広帯域性が失われているので、広帯域かつ高分解能なコム直接分光法を開発する。広帯域分光法としてはデュアルコム分光法を想定している。高分解能分光のためには、モード間隔が狭いコムが必要であるが、モード間隔を狭くする代償として、感度が低くなるという問題点がある。(1)の目的では、帯域を狭くすることでこの問題を克服しているが、(2)の目的では、モード間隔が狭いコムとモード間隔が広いコムを併用することで広帯域かつ高分解能なコム直接分光の開発を目指している。

３．研究の方法

(1) コム直接分光によるメタン分子の非線形分光

高分解能コム直接分光法として連続波-コム直接分光法で、メタン分子の近赤外-中赤外二重共鳴分光を行う。中赤外光としては、波長 1550 nm の連続発振レーザーと波長 1064 nm の連続発振レーザーの差周波発生によって得た波長 3.3 μm の光源を用いる。波長 3.3 μm の中赤外光はメタンの$\nu_3$振動バンドと共鳴する。近赤外光として、波長 1645 nm のコムを使う。電気光学変調によりコムのモード間隔を狭くすることで、高分解能を実現する。高分解能になる代償として測定時間が長くなる問題点が予想されるが、本研究で採用する連続波-コム直接分光法では、周波数帯域の制限により、測定時間の高速化が見込める。

(2) 広帯域かつ高分解能なコム直接分光法の開発

現状のデュアルコム分光法では、わずかにモード間隔が異なる 2 つのコムを使用する。一方のコム(シグナルコム)を分光対象分子に吸収させて、シグナルコムに分子の分光信号を書き込む。この分光情報を、もう一方のコム(ローカルコム)とのヘテロダイン信号によりスペクトル線を得る。このとき、信号雑音比を考慮すると、ローカルコムのモード間隔は広い方が良いはずである。その理由は、コムのモード間隔を広くすると、コムのモード 1 つあたりの光パワーが多くなるためである。本研究ではそれを行う準備として、次の 2 つの研究を行う。

①高繰り返し(広いモード間隔)のコムの実現
本研究で使用するコムはモード同期ファイバーレーザーで構成されている。このコムは、本研究のように高精度の周波数精度を必要とする研究には適しているが、反面モード間隔を広くとることが難しい。そこで、本研究では従来のモード同期ファイバーレーザーのモード間隔を逓倍する手法を 2 通り試みる。1 つはインターリビング法、もう 1 つは高調波モード同期を使う方法である。

②2 つのコムの位相同期のための連続発振レーザーの開発
デュアルコム分光ではシグナルコムとローカルコムの位相同期が必要である。このため、連続発振レーザー1 つを準備し、2 つのコムをその連続発振レーザーに対して位相同期をとる。この連続発振レーザーの絶対周波数を高い精度で安定化しておく必要がある。このため、連続発振レーザーの製作・周波数安定化を行う。

4．研究成果
(1) コム直接分光によるメタン分子の非線形分光
① 連続発振レーザーによるメタンの二重共鳴スペクトル観測
本研究で行うメタンの二重共鳴分光では、波長 3.3 μm の連続発振レーザーの中赤外光と、波長 1645 nm のコムの近赤外光を使う。光学系のアライメントやメタンの圧力などの最適化のために、近赤外光として連続発振レーザーを使って二重共鳴スペクトル線を観測した。光学系のセルの長さは 1.5 m で、セル中を光が 2 往復する。メタン圧力 1 Pa としたとき、二重共鳴スペクトル線を観測できた(図 1)。このスペクトル線が最も強く観測されるよう、光学系の調整およびメタンの圧力の調整を行った。

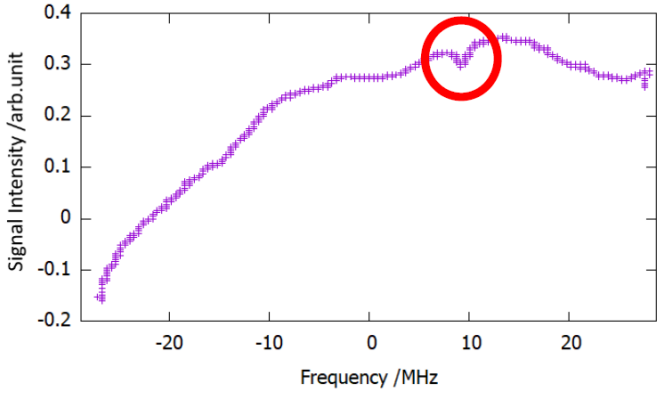

図 1: メタン二重共鳴スペクトル線の観測例。赤丸で示した部分が二重共鳴スペクトル線を表す。

② コムのモード高密度化
研究開始時点でコムのモード間隔を 260 kHz まで狭くすることができていたが、さらに 160 kHz まで狭くすることに成功した。メタンの二重共鳴スペクトル線の線幅は数 100 kHz 程度なので、より分解能を向上させられる。

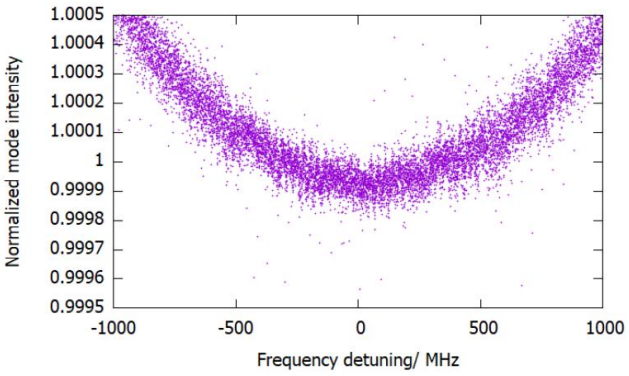

図 2: コム直接分光による二重共鳴スペクトル線の観測例。

③コム直接分光による二重共鳴スペクトル線の観測
上記①②の成果より、コムを近赤外光として使った二重共鳴スペクトル線の観測を試みた。①の結果から、約 20000 程度の信号雑音比で観測する必要があることが分かった。1 回の測定は約 $10^{-5}$ 秒で終了するが、それを何度も繰り返すことで信号雑音比の向上を目指した。約 4000 万回の測定(約 10 分の測定)を 12 回繰り返して平均化することで、信号雑音比は約 10000 となった(図 2)。このため、まだ二重共鳴スペクトル線の観測には至っていない。現状では、測定回数をこれ以上増やしても信号雑音比の向上が得られなかった。その原因は、使用しているアナログ-ディジタル変換ボードの精度・コンピューターでの計算精度が考えられる。今後、これらの点を改良すれば、二重共鳴スペクトル線の観測が可能であると期待できる。

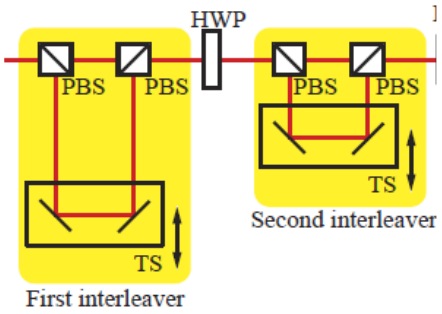

図 3: インターリービングの例。左から来たパルスが、パルス間隔の半分だけ遅延して再度結合することで、パルスの繰り返し周波数を早くしている。

(2) 広帯域かつ高分解能なコム直接分光法の開発
① インターリービング法によるコムのモード間隔逓倍化
コムのモード間隔は、光パルスの繰り返し周波数と

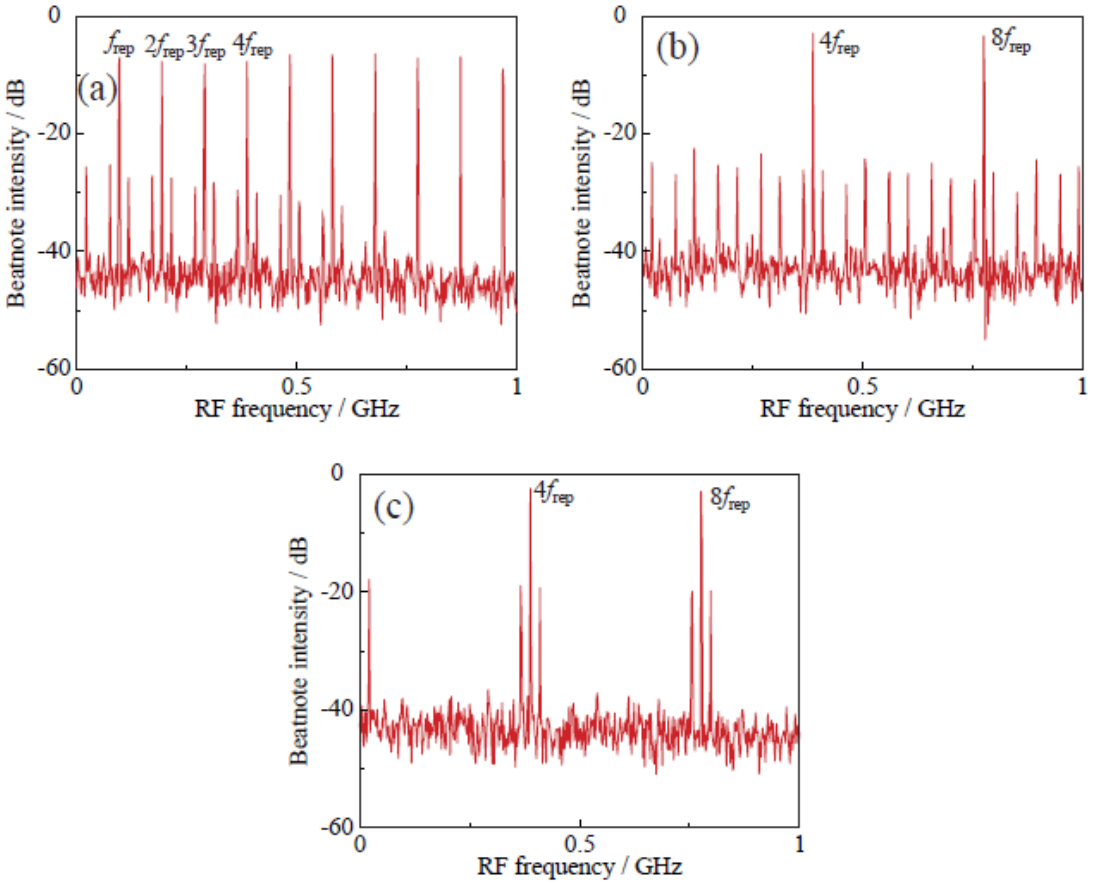


図 4: インターリービングによりパルス間隔を 4 倍にした例。(a)はインターリービング前のパルス間隔を表し、(b)はインターリービング後に位相補正をしない場合のパルス間隔、(c)がさらに位相補正を施した場合のパルス間隔を表す。コムのモードは frep の整数倍のスペクトル線の間にあるスペクトル線で表されている。

一致する。これを逆に利用すると、パルス繰り返し周波数を速くすれば、コムのモード間隔を広げられることになる。インターリービング法では、図 3 のようにパルスとパルスの間に別のパルスを挟み込むことで、モード間隔を逓倍する方法である。この方法により、100 MHz 程度のコムのモード間隔を 4 倍にできた(図 4、Opt. Express, **30,** 19090-19099 (2022))。また、その過程で、パルスの高速な偏光制御が必要であり、このため、電気光学変調を使用するが、その際にパルスの群速度遅延を補正しなければならないことが分かった。そのための遅延光路を挿入することで、高速偏光制御ができるようになった(Opt. Express, **29,** 38477-38487 (2021))。

②高調波モード同期によるモード間隔逓倍化

本研究で使用しているモード同期ファイバーレーザーのコムは、動作条件を調整するとパルス繰り返し周波数が逓倍化することが知られている。これを高調波モード同期という。通常のモード同期(基本モード同期)では、1 つのパルスがレーザー共振器内を周回するので、パルス間隔は 1 つのパルスが共振器を 1 周する時間である。一方、高調波モード同期では複数のパルスが同時に共振器内を周回する。このため、パルス間隔が短くなる。本研究では、高調波モード同期の光パルスのモード間隔を測定し、広いモード間隔を持つコムとして活用できるか、について検証する。

高調波モード同期はレーザー共振器内にある波長板などを微調整すれば実現できる(図 5)。このコムのモード間隔を測定すると、モード間隔がパルス繰り返し周波数と一致していないことが分かった。即ち、高調波モード同期レーザーのモード間隔は、基本モード同期レーザーのモード間隔と同じで、逓倍されていないことが明らかとなった。これは、インターリービング法でも同様の現象が観測されたが、インターリービング法では位相補正をすることでモード間隔を逓倍化することに成功した。本研究では、高調波モード同期のパルス間の位

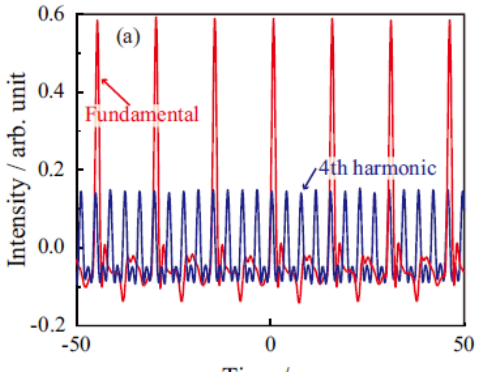


図 5: 4 倍高調波モード同期のパルス(青)と基本モード同期のパルス(赤)。

相を詳細に調べて、パルス間の位相相関の変調によりモード間隔逓倍化が実現していないことが分かった(Opt. Express, **32,** 8092-8100 (2024))。このため、インターリービング法と同様に位相補正によるモード間隔逓倍化の実現に期待が持てる。高調波モード同期によりパルス間隔逓倍化が可能になれば、インターリービング法よりもより簡便に広いモード間隔のコムが得られる。

③2 つのコムの位相同期のための連続発振レーザーの開発

デュアルコム分光のためには、2 台のコムの位相同期が必要である。2 台のコムの直接の位相同期は難しいため、1 つの連続発振レーザーを仲介として、2 台のコムの位相同期をおこなう。この連続発振レーザーとして、外部共振器型半導体レーザー(波長 1560 nm)を製作した。このレーザーを基準にコムの位相同期がとれるだけでなく、このレーザーの第 2 次高調波(波長 780 nm)にルビジウム原子の吸収スペクトル線がある。この吸収スペクトル線の飽和吸収スペクトルにレーザーの波長を安定化すれば、連続発振レーザーの発振周波数を安定させられ、かつ、絶対周波数のキャリブレーションも可能である。安定化の方法として、いままで様々な方法が考案されているが、本研究では変調や磁場を必要としない新しい方法として、サニャック干渉計を使った方法を試みた。その結果、1 MHz 以下の精度でレーザー周波数を安定化することができた(J. Opt. Soc. Am. B, **40,** 667-672 (2023))。

５．主な発表論文等

〔雑誌論文〕　計4件（うち査読付論文　4件／うち国際共著　0件／うちオープンアクセス　4件）

| | |
|---|---|
| １．著者名<br>Hasegawa Taro | ４．巻<br>32 |
| ２．論文標題<br>Phase structure of harmonically mode-locked optical frequency combs | ５．発行年<br>2024年 |
| ３．雑誌名<br>Optics Express | ６．最初と最後の頁<br>8092～8092 |
| 掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子）<br>10.1364/OE.516634 | 査読の有無<br>有 |
| オープンアクセス<br>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<br>－ |

| | |
|---|---|
| １．著者名<br>Taro Hasegawa | ４．巻<br>40 |
| ２．論文標題<br>Evaluation of the Sagnac-loop laser frequency stabilization to sub-Doppler spectral lines | ５．発行年<br>2023年 |
| ３．雑誌名<br>Journal of the Optical Society of America B | ６．最初と最後の頁<br>667-672 |
| 掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子）<br>10.1364/JOSAB.482223 | 査読の有無<br>有 |
| オープンアクセス<br>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<br>－ |

| | |
|---|---|
| １．著者名<br>Taiki Kageyama and Taro Hasegawa | ４．巻<br>30 |
| ２．論文標題<br>Mode spacing multiplication of optical frequency combs without power loss | ５．発行年<br>2022年 |
| ３．雑誌名<br>Optics Express | ６．最初と最後の頁<br>19090-19099 |
| 掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子）<br>10.1364/OE.459554 | 査読の有無<br>有 |
| オープンアクセス<br>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<br>－ |

| | |
|---|---|
| １．著者名<br>Kageyama Taiki, Hasegawa Taro | ４．巻<br>29 |
| ２．論文標題<br>Fast polarization control for optical frequency combs | ５．発行年<br>2021年 |
| ３．雑誌名<br>Optics Express | ６．最初と最後の頁<br>38477～38487 |
| 掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子）<br>10.1364/OE.439346 | 査読の有無<br>有 |
| オープンアクセス<br>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<br>－ |

〔学会発表〕　計7件（うち招待講演　0件／うち国際学会　2件）

| |
|---|
| 1．発表者名<br>長谷川太郎 |
| 2．発表標題<br>サニャック分光レーザー周波数安定化の長期安定度改善 |
| 3．学会等名<br>日本物理学会2024年春季大会 |
| 4．発表年<br>2024年 |

| |
|---|
| 1．発表者名<br>Taro Hasegawa |
| 2．発表標題<br>Mode spacing of harmonic mode-locked optical frequency combs |
| 3．学会等名<br>Optica Sensing Congress（国際学会） |
| 4．発表年<br>2023年 |

| |
|---|
| 1．発表者名<br>長谷川太郎 |
| 2．発表標題<br>高調波モード同期光周波数コムのモード間隔 |
| 3．学会等名<br>日本物理学会第78回年次大会 |
| 4．発表年<br>2023年 |

| |
|---|
| 1．発表者名<br>長谷川太郎 |
| 2．発表標題<br>サニャック分光による周波数安定化レーザーの評価 |
| 3．学会等名<br>日本物理学会2023年春季大会 |
| 4．発表年<br>2023年 |

１．発表者名
Taro Hasegawa, Taiki Kageyama

２．発表標題
Mode-spacing multiplication of optical frequency combs without power loss

３．学会等名
Pacific Rim Conference on Lasers and Electro-Optics 2022（国際学会）

４．発表年
2022年

１．発表者名
蔭山大起、長谷川太郎

２．発表標題
光周波数コムの高速偏光変調

３．学会等名
日本物理学会2021年秋季大会

４．発表年
2021年

１．発表者名
蔭山大起、長谷川太郎

２．発表標題
パワー損失の無い光周波数コムのモード間隔逓倍化

３．学会等名
日本物理学会第77回年次大会

４．発表年
2022年

〔図書〕　計0件

〔産業財産権〕

〔その他〕

―

６．研究組織

| | 氏名<br>（ローマ字氏名）<br>（研究者番号） | 所属研究機関・部局・職<br>（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 |
| --- | --- |