

ギャップレスなテラヘルツ周波数コムの生成と 低圧ガス分光への応用

安井 武史^{*, **, †}・謝 宜達^{*}・弥永 祐樹^{*}・坂口 良幸^{*}
横山 修子^{*, ***, †}・稲場 肇^{****}・美濃島 薫^{****}・荒木 勉^{*}

Generation of Gapless Terahertz Frequency Comb and Application for Low-Pressure Gas Spectroscopy

Takeshi YASUI^{*, **, †}, Yi-Da HSIEH^{*}, Yuki IYONAGA^{*}, Yoshiyuki SAKAGUCHI^{*}, Shuko YOKOYAMA^{*, ***, †}, Hajime INABA^{***}, Kaoru MINOSHIMA^{****} and Tsutomu ARAKI^{*}

Terahertz frequency comb gives a precise and accurate frequency marker to broad terahertz spectrum because it is phase-locked to a microwave frequency standard via laser control. However, frequency gaps between two adjacent modes in terahertz comb limit spectral resolution to frequency intervals between them even though each Terahertz comb mode has sufficiently narrow linewidth. In this paper, we achieved gapless Terahertz comb by tuning mode-locked frequencies in dual fiber lasers used for generation and detection of Terahertz comb and fully interpolating frequency gaps between Terahertz comb modes. Experimental result of low-pressure water vapor spectroscopy with the gapless Terahertz comb clearly indicated that the spectral resolution is enhanced up to the linewidth of each comb mode.

Key words: terahertz, frequency comb, frequency metrology, femtosecond laser, laser control

近年のレーザー技術や超高速デバイス技術の進展に伴い、テラヘルツ領域（周波数 0.1~10 THz、波長 30~3000 μm ）の研究開発（テラヘルツ・テクノロジー）が加速している。このようなテラヘルツ・テクノロジーを牽引しているのが、テラヘルツ分光センシングである。しかし、従来のテラヘルツ分光計では周波数スケールの整合性が装置間で取れていないため、同一サンプルを異なるテラヘルツ分光計で計測した場合、装置ごとにテラヘルツ・スペクトル波形が異なるといった問題が発生する可能性がある。このような問題は、テラヘルツ分光センシングを国内外の産業応用分野で幅広く展開していく上で足かせとなる。テラヘルツ分光センシングが常に普遍的な分析能力を発揮するためには、取得スペクトルの周波数スケールが国家周波数

標準にトレーサブルであることが望まれる。

フェムト秒パルスレーザー光を光伝導アンテナ（PCA）や非線形光学結晶に照射すると、モード同期周波数の逆数に等しい周期のモード同期テラヘルツ・パルス列が時間領域で発生する。このようなモード同期テラヘルツ・パルス列は、フーリエ変換の関係にある周波数領域では、非常に安定した多数の周波数モード列がモード同期周波数間隔で櫛の歯状に立ち並んだ超離散マルチスペクトル構造を示す。このようなスペクトル構造をテラヘルツ・コムとよぶ^{1,2)}。テラヘルツ・コムは、多数の CW テラヘルツ波の集合体と見なすことができるので、テラヘルツ・パルスの広帯域スペクトル特性と CW テラヘルツ波の狭スペクトル線幅を併せもつ。さらに、レーザー制御により、テラヘル

*大阪大学大学院基礎工学研究科（〒560-8531 豊中市待兼山町 1-3）

**徳島大学大学院ソシオテクノサイエンス研究部（〒770-8506 徳島市南常三島 2-1）

***日本マイクロ光器（〒610-1104 京都市西京区大枝中山町 2-20）

****産業技術総合研究所計測標準研究部門（〒305-8563 つくば市梅園 1-1-1）

†E-mail: yasui@me.tokushima-u.ac.jp

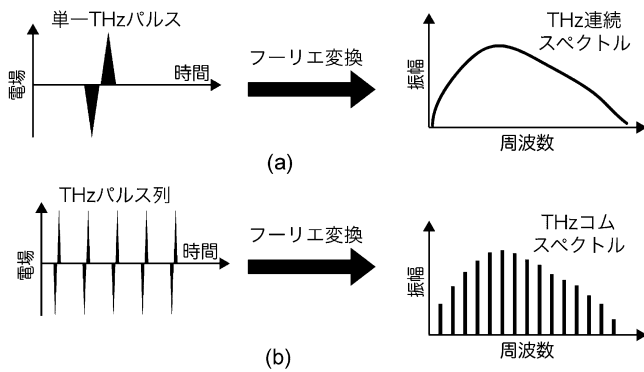


図1 (a) 単一テラヘルツ・パルス, および (b) テラヘルツ・パルス列の電場時間波形 (左側) と振幅スペクトル (右側).

ツ・コムを構成する各周波数モードの絶対周波数をマイクロ波周波数標準に位相同期できる。したがって、このテラヘルツ・コムをテラヘルツ分光計測における周波数目盛りとして利用できると、「高精度」「高分解能」「広帯域スペクトル」を同時に実現可能と考えられる。われわれは、これまでに多周波ヘテロダイン光伝導検出法^{1,3)}や時間窓拡張型非同期光サンプリング式テラヘルツ時間領域分光法 (ASOPS-THz-TDS: asynchronous-optical-sampling terahertz time-domain spectroscopy)⁴⁾を用いて、テラヘルツ・コムの観測を行ってきた。このようなテラヘルツ・コムをテラヘルツ・スペクトルの周波数目盛りとしてそのまま利用すると、コム・モード間隔に等しいスペクトル分解能が得られる。一方、コム・モードに対して、コム・モード線幅はきわめて狭い。したがって、コム・モード間隔でなく、コム・モード線幅をテラヘルツ分光計測に利用することができれば、スペクトル分解能をさらに向上することが可能になる。そのためには、コム・モード間隔 (レーザーモード同期周波数) の走査によって、テラヘルツ・コム・モードの間隙部分 (ギャップ) を補間する必要がある。本論文では、ギャップレス・テラヘルツ・コムの生成と低圧ガス分光への応用について解説する。

1. 測定原理

テラヘルツ・パルスを用いた代表的なテラヘルツ分光法であるテラヘルツ時間領域分光法 (THz-TDS) では、時間遅延走査用機械ステージの移動ストロークの制限から、通常、単一のテラヘルツ・パルスの電場時間波形を取得する (図1 (a) 左側)。この電場時間波形をフーリエ変換することにより、振幅および位相のフーリエ・スペクトルを取得することが可能になるが、単一パルス現象のフーリエ変換によって取得されたスペクトルは連続スペクトルとなり、周波数コム構造は観測されない (図1 (a) 右側)。一方、

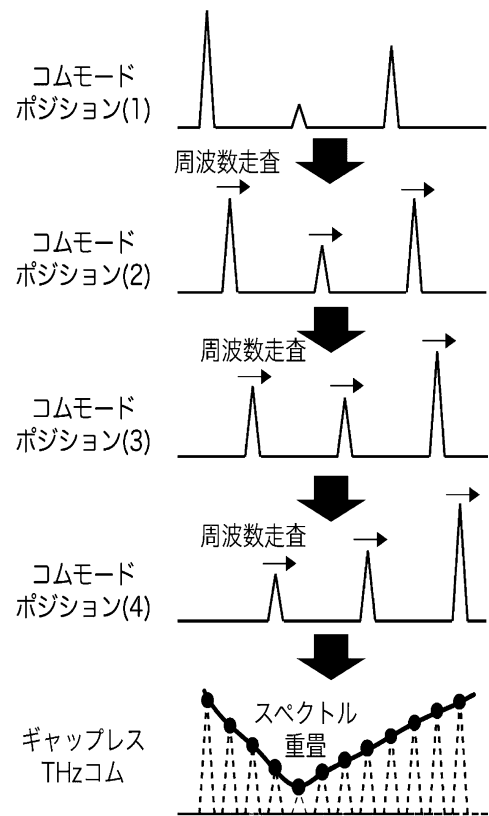


図2 テラヘルツ・コム・モードの周波数走査によるギャップレス・テラヘルツ・コムの生成.

もしテラヘルツ電場時間波形の測定時間窓をパルス周期よりも十分に大きくすることができれば、複数のテラヘルツ・パルスから構成されたテラヘルツ・パルス列の電場時間波形が観測されるであろう (図1 (b) 左側)。テラヘルツ・パルス列のような繰り返し現象のフーリエ変換では、周波数領域ではパルス周期の逆数、すなわちレーザー・モード同期周波数の間隔でスペクトル変調がかかり、テラヘルツ・パルス列を構成するパルス数が増えるにつれて変調が深くなる (図1 (b) 右側)。その結果、テラヘルツ・コムの超微細スペクトル構造の観測が可能になる。

このようにして観測されたテラヘルツ・コム・モード・スペクトルは、レーザー・モード同期周波数に等しいコム・モード間隔と、測定時間窓の逆数に等しいコム・モード線幅を有している。このテラヘルツ・コム・モードを分光計測の周波数目盛りとしてそのまま利用すると、コム・モードの離散分布構造のため、スペクトル分解能はモード同期周波数に等しくなる。一方、コム・モード線幅はコム・モード間隔よりも十分に狭いため、このコム・モード線幅をテラヘルツ分光計測に利用できると、テラヘルツ分光のさらなる高分解能化が期待できる。そのためには、テラヘルツ・コム・モードの間隙部分を補間するように、テラヘルツ・コム・モードを横ずらしする必要がある (図

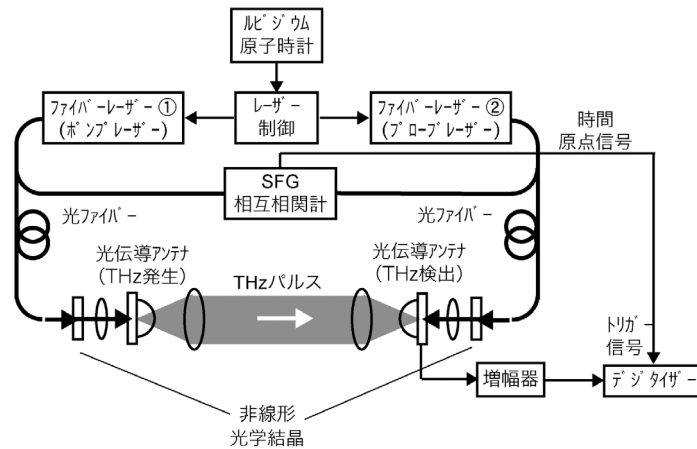


図3 実験装置.

2). テラヘルツ・コム・モードの周波数走査はレーザー・モード同期周波数を変化させることにより可能である. 厳密にいうと, モード同期周波数の変化量とテラヘルツ・コム・モードの次数の積によって, テラヘルツ・コム・モードの周波数走査量が決まる. したがって, テラヘルツ・コム・モードをモード線幅間隔で逐次走査しながらテラヘルツ・スペクトルを取得し, それらを最終的に重ねることにより, 間隙部分のない超微細テラヘルツ・スペクトル(ギャップレス・テラヘルツ・コム)を得ることが可能になる. この手法は, 狭線幅シングル・モードCWテラヘルツ波を広帯域・連続チューニングするのと等価であると考えられるので, スペクトル分解能はコム・モード線幅に等しくなるであろう.

2. 実験装置

従来のTHz-TDS装置でテラヘルツ・パルス列の電場時間波形を取得するためには, 数メートルから数十メートルの機械ステージを用いた時間遅延走査が必要となり, 現実的に実現不可能である. そこで, モード同期周波数がわずかに異なるように安定化制御された2台のフェムト秒レーザーを, テラヘルツ・パルスの発生および検出にそれぞれ用いることにより, 機械式時間遅延走査が不要なASOPS-THz-TDS⁵⁾を用いた, デュアル・フェムト秒ファイバーレーザー(平均パワー500 mW, 中心波長1550 nm, パルス幅50 fs)のモード同期周波数(f_1, f_2)をルビジウム原子時計に位相同期することにより, モード同期周波数がわずかに異なるように制御する($f_1 = 250,000,000$ Hz, $f_2 = 250,000,050$ Hz, $\Delta f = f_2 - f_1 = 50$ Hz)(図3). 両レーザー光を非線形光学結晶で波長変換した後, テラヘルツ発生および検出用PCAを用いてTHz-TDS光学系を構築した. ここで, テラヘルツ・パルスとプローブ光のパルス周期はわ

ずかに異なるので, 両者がテラヘルツ検出用PCAで重なるタイミングがパルスごとに自動的にずれていき, 高速サンプリングされる. その結果, サブピコ秒オーダーのテラヘルツ・パルス電場時間波形の時間スケールを, 任意の時間スケール拡大率($= f_1/\Delta f$)で拡大できる. 時間スケールがRF領域まで拡大された電流信号がテラヘルツ検出用PCAから出力されるので, 電流電圧変換後, その時間波形を高速ディジタイザーで取得した.

3. 実験結果

図4(a)は, 測定時間窓40 nsで取得した10連テラヘルツ・パルス列の電場時間波形をフーリエ変換することによって得られた振幅スペクトルを示している. スペクトル波形の内部が黒く塗り潰されているのは, 実際には1万本にも及ぶ周波数モード列がモード同期周波数間隔で整然と分布しているからである. テラヘルツ・コム・スペクトルの内部構造を確認するため, 0.4 THz付近の周波数レンジを拡大して示したのが図4(b)である. 線幅25 MHzの周波数モード列が, 250 MHzの周波数間隔で分布している様子が確認できる. 周波数間隔はレーザー・モード同期周波数によって決定されており, 線幅は測定時間窓の逆数によって決まっている.

次に, デュアル・ファイバーレーザーのモード同期周波数を変化させることによって, テラヘルツ・コム・モードを周波数走査した. 走査開始に先立ち, $f_1 = 250,000,049$ Hz, $f_2 = 250,000,099$ Hz, $\Delta f = 50$ Hzに設定した. そして, Δf を一定に保ちながら, f_1 と f_2 を15,625 Hz刻みで走査することを10回繰り返した. そのようにして得られた10個のテラヘルツ・コム・スペクトルを重ね合わせて表示したグラフが図4(c)である. この場合, 1回当たりの f_1 走査量は0.00625% ($= 15,625$ Hz / $250,000,049$ Hz)であるが, コ

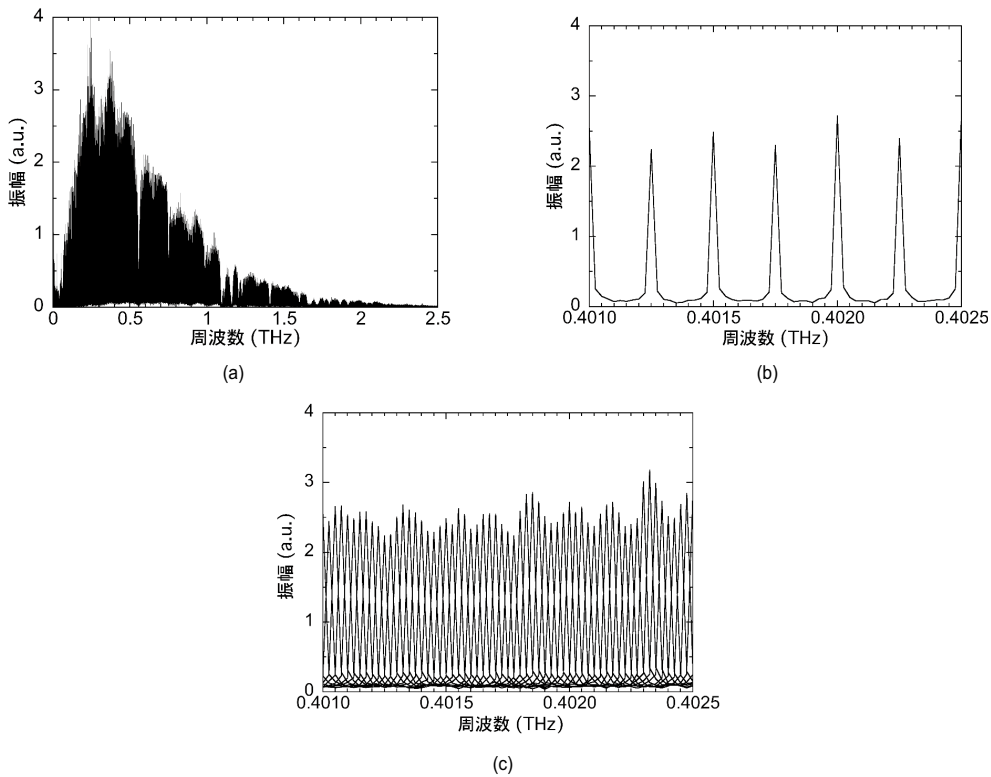


図4 (a) テラヘルツ・コム全体のスペクトル, (b) ギャップありテラヘルツ・コム (コム・モード走査なし), および (c) ギャップレス・テラヘルツ・コム (コム・モード走査あり).

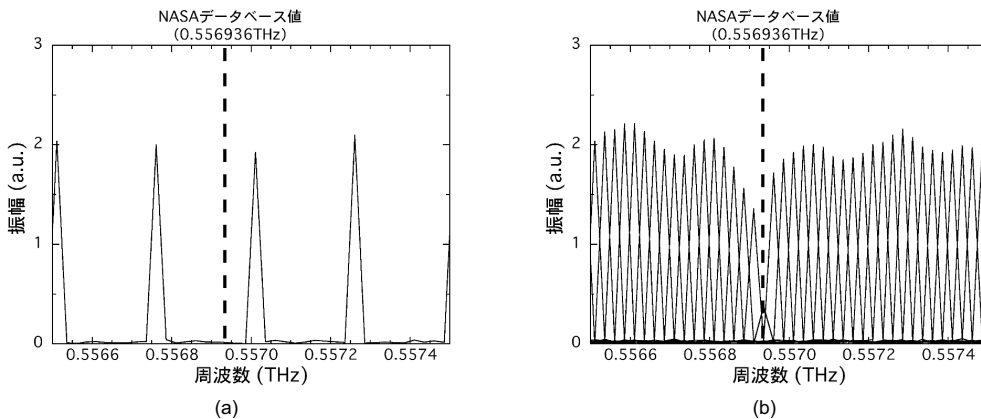


図5 低圧水蒸気の吸収線スペクトル. (a) ギャップありテラヘルツ・コム (コム・モード走査なし), (b) ギャップレス・テラヘルツ・コム (コム・モード走査あり).

ム・モードの次数が大きいため (図4 (c) では約1,600), テラヘルツ・コム間隔の10% (= 25 MHz) に相当する周波数走査が実現できている. その結果, 図4 (b) で観測されたテラヘルツ・コムのギャップが, 図4 (c) では完全に補間され, ギャップレスなテラヘルツ・コムが実現されている様子が確認できる.

最後に, 低圧ガス分光への応用例を紹介する. テラヘルツ領域は, 構成原子数の少ない気体分子の吸収線スペクトルが現れる特徴的な周波数帯でもあるが, テラヘルツ領域

にひしめきあうように存在しているさまざまな気体分子を詳細に識別し定量するためには, きわめて高いスペクトル精度とスペクトル分解能を有し, テラヘルツ領域をフルカバー可能な分光法が望まれている. ここでは, 低圧状態の水蒸気をサンプルに用いて, ガス分析における本手法の有用性を評価した. 水蒸気と窒素の混合ガスを, ガスセル (長さ 500 mm, 直径 40 mm) に封入し, 水蒸気の分圧を 10 Pa に設定した. 図5 (a) は, テラヘルツ・コム・モードを走査しない場合の 0.557 THz 付近の吸収スペクトル

(回転遷移 $1_{10} \rightarrow 1_{01}$) を示している。比較のため、この吸収線の NASA データベース値も併せて示している⁶⁾。250 MHz 間隔で等間隔に分布しているテラヘルツ・コム・モードのみでは、0.557 THz 付近の吸収線のスペクトル波形が詳細に再現できていない。次に、上述と同じ条件で、モード線幅 (25 MHz) 刻みでテラヘルツ・コム・モードの周波数走査を行った結果を図 5 (b) に示す。吸収線のスペクトル波形が詳細に再現できている様子が確認できる。観測された吸収線の線幅は 23 MHz であり、ガス圧から予測される圧力広がり線幅の 24 MHz とよく一致している。また、吸収スペクトルの中心周波数 (0.55693 THz) は、文献値 (0.556936 THz)⁶⁾ と 10^{-5} の確度で一致している。

ルビジウム原子時計に位相同期したギャップレス・テラヘルツ・コムを生成し、低圧ガス分光に応用した。低圧水蒸気を用いたテラヘルツ分光実験より、テラヘルツ・コム・モードの線幅に等しいスペクトル分解能が実現可能であることを確認した。このようなギャップレス・テラヘルツ・コムをテラヘルツ分光計測における周波数目盛りとして利用することにより、「高精度」「高分解能」「広帯域スペクトル」を併せもつ究極のテラヘルツ分光計測が実現できると期待される。

本研究の一部は、(独) 科学技術振興機構 (JST) の研究

成果展開事業【産学共創基礎基盤研究プログラム】、および大阪大学科学教育機器リノベーションセンターの革新的研究教育基盤機器開発整備事業の支援によって行われた。

文 献

- 1) T. Yasui, Y. Kabetani, E. Saneyoshi, S. Yokoyama and T. Araki: "Terahertz frequency comb by multi-frequency-heterodyning photoconductive detection for high-accuracy, high-resolution terahertz spectroscopy," *Appl. Phys. Lett.*, **88** (2006) 241104.
- 2) T. Yasui, S. Yokoyama, H. Inaba, K. Minoshima, T. Nagatsuma and T. Araki: "Terahertz frequency metrology based on frequency comb," *IEEE J. Sel. Top. Quantum Electron.*, **17** (2011) 191-201.
- 3) T. Yasui, M. Nose, A. Ihara, K. Kawamoto, S. Yokoyama, H. Inaba, K. Minoshima and T. Araki: "Fiber-based, hybrid terahertz spectrometer using dual fiber combs," *Opt. Lett.*, **35** (2010) 1689-1691.
- 4) 弥永祐樹, 謝 宜達, 坂口良幸, 横山修子, 稲場 肇, 美濃 島薫, 荒木 勉, 安井武史: "テラヘルツ周波数コムの観測と分光計測への応用", *レーザー研究*, **40** (2012) 513-516.
- 5) T. Yasui, E. Saneyoshi and T. Araki: "Asynchronous optical sampling terahertz time-domain spectroscopy for ultrahigh spectral resolution and rapid data acquisition," *Appl. Phys. Lett.*, **87** (2005) 061101.
- 6) H. M. Pickett, R. L. Poynter, E. A. Cohen, M. L. Delitsky, J. C. Pearson and H. S. P. Muller: "Submillimeter, millimeter, and microwave spectral line catalog," *J. Quant. Spectrosc. Radiat. Transfer*, **60** (1998) 883-890.

(2012 年 4 月 12 日受理)