

光源としての光コム(1) ～テラヘルツ領域～

安井 武史^{a,b}

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

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

(2013年 3月26日受領, 2013年 5月21日受理)

Optical frequency comb for light source (1) ～terahertz region～

Takeshi YASUI^{a,b}

^aInstitute of Technology and Science, The University of Tokushima
2-1, Minami-Josanjima, Tokushima, Tokushima 770-8506, Japan

^bGraduate School of Engineering Science, Osaka University
1-3, Machikaneyama, Toyonaka, Osaka 560-8531, Japan

(Received March 26, 2013; Accepted May 21, 2013)

Since frequency comb in optical and terahertz (THz) regions enables us to coherently link the frequency among microwave, optical, and THz regions, it is possible to transfer the frequency uncertainty in a microwave frequency standard to THz region. In this article, we review a potential of such the coherent frequency link from the viewpoint of optical-comb-based light source in THz region. One hand, a THz frequency synthesizer to generate continuously tunable, single-frequency CW-THz wave was demonstrated by photomixing of an accurately tunable CW laser and a tightly fixed CW laser in the optical frequency region, phase-locked to two independent optical combs. On the other hand, the fine-structured spectrum of a THz comb has been observed using asynchronous-optical-sampling THz time-domain spectroscopy with an extended time window covering multiple THz pulses. Demonstration of spectroscopic applications indicated that the observed THz comb mode can be used as a precise and accurate frequency marker for broadband THz spectroscopy. These methods enable frequency calibration of the THz spectrum based on a microwave frequency standard.

Keywords: optical comb, terahertz comb, asynchronous optical sampling, multi frequency heterodyning

1. はじめに

テラヘルツ領域 (THz 領域: 周波数 0.1~10 THz, 波長 30 μm ~3000 μm , 波数 3.3~333 cm^{-1}) は, 光波と電波の境界に位置し, 元々は遠赤外領域と呼ばれていた電磁波領域である. 遠赤外領域と呼ばれていた時代には, 一般にインコヒーレントな熱光源と熱型検出器が分光計測に用いられていたが, 光源の低輝度性と検出器の熱ノイズの為, 寒剤を用いた極低温計測が求められ, その利用が大きく制限されていた. しかし, 近年のレーザー技術や光デバイス技術の進展により, コヒーレントな電磁波の発生及び検出が室温環境で可能になり, THz 波への改名と相俟って, この電磁波領域の研究開発が加速している¹⁾. THz 波

は, 光波と電波の両方の性質を有するユニークな電磁波であり, 具体的には, 良好な物質透過性, 低散乱性, コヒーレントビーム, 極低エネルギー・非侵襲性, 超短パルス, 広帯域スペクトル, 分光計測やイメージング計測が可能, といった特徴を有している. 物質との相互作用という観点では, イオン分極と配向分極の混在する電磁波領域であることから, この領域特有の興味深い現象が観測される. 具体的には, 固体中の光学フォノン散乱やプラズマ周波数, イオン分極・配向分極などの誘電性, 分子・固体中の各種振動や分子間相互作用など興味深い物性が存在している¹⁾. このようなことから, THz 分光法が, 物質分析やセンシングの新しい手段として注目されている.

現在よく用いられている THz 分光法は, 広帯域 THz

波 (THz パルス) を用いた THz 時間領域分光法 (THz-TDS)²⁾ と波長可変 CW-THz 波を用いた THz 周波数領域分光法 (THz-FDS)³⁾ に大別できる. THz-TDS では, 機械式時間遅延走査を用いたポンプ・プローブ法によりモノサイクル THz パルスの電場時間波形を取得し, それをフーリエ変換することにより振幅と位相のフーリエ・スペクトルを得る. THz-TDS を用いると広帯域スペクトルを一度に取得できるが, スペクトル分解能向上と測定時間短縮がトレードオフの関係にある上に (高いスペクトル分解能を得るには長いステージ移動が必要となるため測定時間が長くなる), 時間遅延走査ステージの移動量を基準にスペクトルの目盛り付けを行うため高精度な分光計測が困難であった (THz-TDS でよく用いられるステップモーター駆動式ステージの位置決め精度は概して低い). 一方, THz-FDS では, 2 台の波長可変・近赤外 CW レーザーの光周波数差が THz オーダーとなるように設定し, この両者の光ビートをフォトミキサーで自由空間に取り出すことにより CW-THz 波を発生させる. さらに, 一方の近赤外 CW レーザーの波長をチューニングすることにより, 波長可変 CW-THz 波を得ることが出来る. この手法により, THz-TDS よりも高いスペクトル分解能を得ることが出来るものの, 連続チューニング範囲は THz-TDS のスペクトル範囲に比べてかなり狭くなる. さらに, フォトミキシングに用いる近赤外 CW レーザーは一般にフリーランニング (非制御) 状態で用いるため, 得られるスペクトル分解能と精度は制限される. また, いずれの手法においても, 周波数スケールが周波数標準で保証されていないため, 同一サンプルを異なる THz 分光計で計測した場合, 装置毎に THz スペクトル波形が異なるといった問題が発生している. このような現状は, THz 分光センシングを産業応用分野で幅広く展開していく上で足かせとなる可能性がある.

THz 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, スペクトルの周波数スケールと周波数標準とを比較しその不確かさを評価する必要がある, その手段として光領域⁴⁾ や THz 領域⁵⁾ の周波数コム概念が有効である. すなわち, 従来の THz 分光法に対して, 光コムや THz コムを導入することにより, マイクロ波周波数標準に対するトレーサビリティが担保され, 分光性能を大幅に向上することが可能になる. 本稿では, 光コムを基準とした THz シンセサイザー^{6,7)} と THz コムを基準とした THz コム分光法^{8,9)} を解説する.

2. 周波数コムを用いたコヒーレント周波数リンク

周波数コムを用いたコヒーレント周波数リンクの概念図を図 1 に示す⁵⁾. 現在, 時間 (周波数) の定義は, マイクロ波帯のセシウム原子時計に基づいている. 一方, 光波領域のフェムト秒モード同期レーザー光は, 光周波数領域に

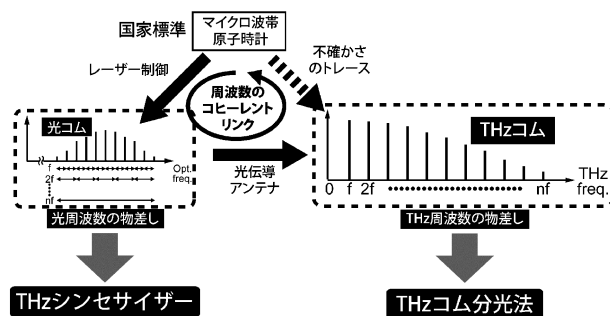


図 1 周波数コムを用いたコヒーレント周波数リンク.

おいて多数の安定な光周波数モード列がモード同期周波数の間隔で櫛 (コム) の歯状に並んだ超離散マルチ・スペクトル構造 (光コム) を有している⁴⁾. この光コムを光伝導アンテナ (あるいは非線形光学結晶) に入射すると, 同じ周波数間隔を保ったまま, 光コムが THz 領域までダウン・コンバートされ, THz 領域の周波数コム (THz コム) が生成される¹⁰⁾. 光コムや THz コムは, 広い周波数選択性・非常に高いスペクトル純度・絶対周波数校正・周波数通倍機能・単純性といった特徴を有しているため, 『周波数の超精密物差し』として利用できる. ここで重要なのは, レーザー制御や光伝導アンテナがコヒーレントな過程に基づいているため, 光コムや THz コムを『周波数リンク』として利用でき, マイクロ波領域-光波領域-THz 領域の周波数をコヒーレントにリンクすることが可能となることである. したがって, 現在の時間 (周波数) 標準であるマイクロ波原子時計を基準としてフェムト秒モード同期レーザーを安定化制御することにより, マイクロ波や光波領域における充実した周波数標準群の不確かさを THz 領域に分配でき, SI 基本単位の 1 つである時間 (秒) にトレーサブルな THz 分光法が実現できる.

3. 光コム参照型 THz シンセサイザー

光コムを構成する各モードは周波数のみならず強度・位相までも安定な高品質信号源であるが, モード 1 つ当たりの出力はそのまま利用するには極めて低く, 隣のモードとの分離も難しい. ここで, 高出力・周波数可変・単一周波数の CW レーザー光を光コムにモード同期すれば, マイクロ波原子時計の不確かさで絶対周波数が付与された光シンセサイザーが可能になる¹¹⁾. さらに, THz オーダーの光周波数差を有する 2 台の光シンセサイザーを準備し, 両者をフォトミキシングして CW-THz 波を発生させれば, マイクロ波原子時計に位相同期した THz シンセサイザーが実現できる^{6,7)}.

3.1 原理

まず, 図 2(a) に示すように, 2 台の CW レーザー光を 1 台の光コム (コム間隔 f_{rep} , キャリヤ・エンベロープ・オフセット周波数 f_{ceo}) の異なるモード (m_1, m_2) に位相

同期し、フォトミキシングによってCW-THz波を発生する場合を考える¹²⁾。それぞれのCWレーザー光の光周波数(f_{opt1}, f_{opt1})は、以下のように表せる。

$$f_{opt1} = f_{ceo} + m_1 f_{rep} + f_{beat1} \quad (1)$$

$$f_{opt2} = f_{ceo} + m_2 f_{rep} + f_{beat2} \quad (2)$$

ここで、 f_{beat1} および f_{beat2} は、コムモードとCWレーザー光のビート周波数である。このようにして、光コムに位相同期した2台のCWレーザー光をフォトミキシングすることによって発生させたCW-THz波の周波数 f_{THz} は以下の式で与えられる。

$$\begin{aligned} f_{THz} &= f_{opt2} - f_{opt1} = (m_2 - m_1)f_{rep} - (f_{beat2} - f_{beat1}) \\ &= \Delta m \cdot f_{rep} - (f_{beat2} - f_{beat1}) \end{aligned} \quad (3)$$

この手法では、フォトミキシングの過程で f_{ceo} が相殺されるので、 f_{ceo} の制御は不要となる。 f_{THz} を連続チューニングする場合、位相同期を保ちながら m_1 や m_2 をスイッチするのは容易でないので、2台のCWレーザーの位相同期を保った状態で f_{rep} を変化させた方が現実的である。この場合のチューニングレンジ Δf_{THz} は、以下の式で表せる。

$$\Delta f_{THz} = \Delta m \cdot \Delta f_{rep} \quad (4)$$

ここで、 Δf_{rep} は f_{rep} の最大可変範囲であり、通常は f_{rep} のたかだか1%程度である。例えば、 $f_{rep} = 50$ MHzで

$f_{THz} = 1$ THzの場合、 $\Delta m = 20,000$ および $\Delta f_{rep} = 0.5$ MHzとなるので、 Δf_{THz} は10 GHzに留まる。これは、 f_{rep} の変化によりアコーディオンのように変化する光コムに対して位相同期された2台のCWレーザー光の光周波数は、お互い同様な(コモンな)変化を示し、実際の光周波数変化の大部分が相殺されるためである。

このような連続チューニング範囲の制限を解消するため、2台の光コムに対して2台のCWレーザー光を位相同期することにより、2台の独立した光シンセサイザーを構築し、これをフォトミキシングすることによりCW-THz波を発生させる手法が提案されている[図2(b)]^{6,7)}。この場合の2台の光シンセサイザーの光周波数(f_{opt1}, f_{opt1})は以下の式で与えられる。

$$f_{opt1} = f_{ceo1} + m_1 f_{rep1} + f_{beat1} \quad (5)$$

$$f_{opt2} = f_{ceo2} + m_2 f_{rep2} + f_{beat2} \quad (6)$$

この場合のCW-THz波の絶対周波数 f_{THz} は、以下のように表せる。

$$\begin{aligned} f_{THz} &= f_{opt2} - f_{opt1} = (f_{ceo2} + m_2 f_{rep2} + f_{beat2}) \\ &\quad - (f_{ceo1} + m_1 f_{rep1} + f_{beat1}) \end{aligned} \quad (7)$$

一方、 f_{opt1} を固定し、 f_{opt2} の f_{rep2} を Δf_{rep2} だけ可変させてCW-THz波を発生させる場合の連続チューニング範囲は、以下のように表せる。

$$\Delta f_{THz} = m_2 \cdot \Delta f_{rep2} \quad (8)$$

通常、 m_2 は Δm より2桁以上大きい値を取る所以、 Δf_{THz} は1 THz以上に達し、広帯域THzシンセサイザーが実現できる。

3.2 実験装置

実験装置を図3に示す。まず、波長1542 nmで動作する2台の光シンセサイザーを構築した。波長固定用の光シンセサイザー①は分布帰還型CWファイバーレーザーとErファイバーコム¹³⁾から構成されており(平均パワー=7.3 mW, $f_{ceo1} = 10,683,000$ Hz, $m_1 = 3,889,264$, $f_{rep1} = 49,985,129.0$ Hz, $f_{beat1} = -21,384,000$ Hz, $f_{opt1} =$

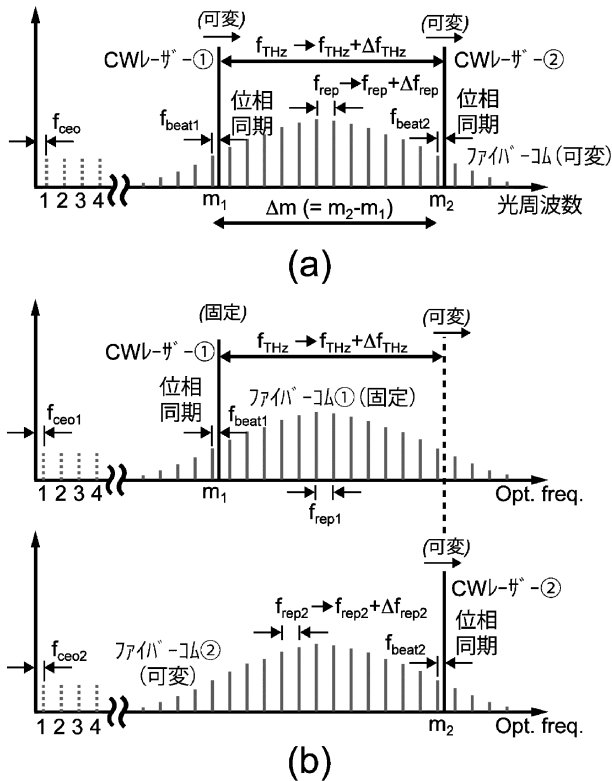


図2 光コム参照型THzシンセサイザー。(a)シングル光コム参照型と(b)デュアル光コム参照型。

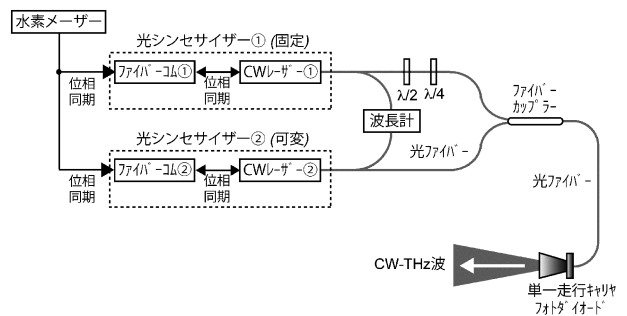


図3 デュアル光コム参照型THzシンセサイザー装置。 $\lambda/2$:1/2波長板, $\lambda/4$:1/4波長板。

194,405,352,052,056 Hz), 波長可変の光シンセサイザ②は外部共振器型半導体レーザーと別の Er ファイバークムから成る (平均パワー=9.4 mW, $f_{\text{ceo}2}=10,683,000$ Hz, $m_2=3,811,224$, $f_{\text{rep}2}=50,971,884.1$ Hz, $f_{\text{beat}2}=69,960,000$ Hz, $f_{\text{opt}2}=194,265,348,650,138$ Hz). 波長可変用光シンセサイザ②は, 990 GHz の範囲で光周波数を連続チューニング可能なことを確認している¹¹⁾. $f_{\text{ceo}1}$, $f_{\text{ceo}2}$, $f_{\text{rep}1}$, $f_{\text{rep}2}$, $f_{\text{beat}1}$, $f_{\text{beat}2}$ は全て, マイクロ波周波数標準(水素メーザー)から周波数合成された参照信号に位相同期されており, m_1 と m_2 は波長計で決定した. 2 台の光シンセサイザからの出力光は, 偏光調整後, ファイバークップリングされ, フォトミキサーに入射される. 今回は, 単一走行キャリア・フォトダイオード (F バンド: 周波数範囲 0.09–0.14 THz)¹⁴⁾ をフォトミキサーに用いることにより, サブ THz 帯の CW-THz 波 (平均パワー 250 μ W) を発生させた.

3.3 実験結果

まず, THz コム参照型スペクトラム・アナライザ^{15,16)} を用いて, CW-THz 波のスペクトル波形を観測し

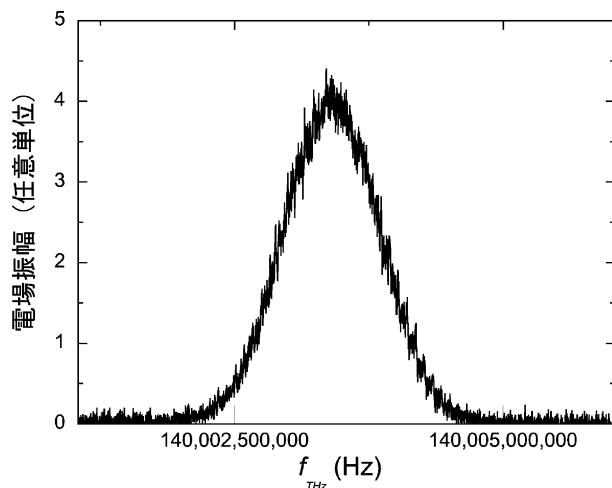


図4 140 GHz 帯 CW-THz 波のスペクトル波形.

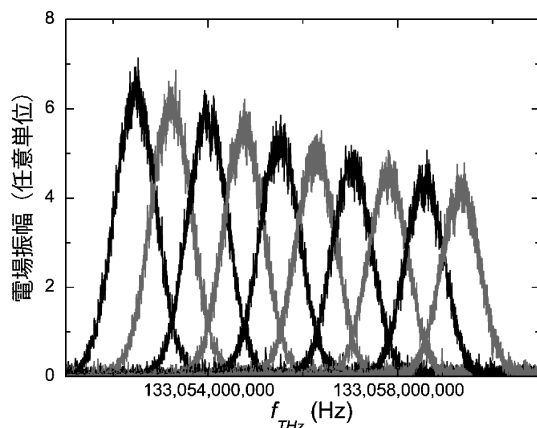


図5 CW-THz 波のチューニング特性.

た結果を図4に示す. ガウス形状のスペクトル波形が観測され, そのスペクトル幅はカーブフィッティング結果から 0.63 MHz であった. 一方, その中心周波数は式(7)に各パラメーターを導入することにより, 140,003,403,918 Hz であると決定された. ここで重要なのは, 2 台の光シンセサイザがマイクロ波周波数標準に位相同期しているため, CW-THz 波の絶対周波数が 12 桁の不確かさで決定できていることである.

次に, $f_{\text{rep}2}$ を 0.2 Hz 刻みで変化させることにより, 0.133 THz 付近の CW-THz 波のステップ・チューニングを行った. 図5は, その様子を THz コム参照型スペクトラム・アナライザで計測した結果を示している. $f_{\text{rep}2}$ を 0.2 Hz というわずかな刻みで変化させているにも関わらず, 大きな m_2 値 (= 3,811,408) のため, f_{THz} が 762,281.6 Hz 刻みで変化している様子が確認される. 信号スペクトルの強度が右肩下がりになっているのは, THz コム参照型スペクトラム・アナライザで用いている高利得カレント・プリアンプの周波数特性によるものである. 更に, 1 GHz を超える連続チューニングの様子を, リアルタイム・モニタリングすることにも成功している⁷⁾. THz シンセサイザの連続チューニング範囲は, 波長可変光シンセサイザ②の周波数可変範囲とフォトミキサーの周波数応答帯域によって制限されるが, 今回のシステムは後者によって実質的に決まっている. しかし, 更に広帯域なフォトミキサー (例えば, 光伝導アンテナ) を用いると¹⁷⁾, 波長可変光シンセサイザ②のフルスペックを活かした 1 THz 連続チューニングが可能になると期待される.

4. THz コム分光

THz コムは, 等しい周波数間隔で位相が同期した多数の CW-THz 波の集合体と見なすことが出来るので, THz パルスの広帯域スペクトル特性と CW-THz 波の狭スペクトル線幅特性を併せ持つ. さらに, レーザ光のモード同期周波数をマイクロ波周波数標準と位相同期することで, THz コムを構成する各周波数モードの絶対周波数を確定させることができる. したがって, この THz コムを THz 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』を併せ持つ THz 分光計が可能になる.

4.1 光コムと THz コム

フェムト秒モード同期レーザーから出力されるレーザー光は, 時間領域において非常に安定した高繰返しの超短光パルス列 (モード同期周波数= f_1) を示す (図6). 一方, フーリエ変換の関係にある周波数領域では, あるオフセット周波数 (= ν_m) を中心として多数の安定な光周波数モード列がモード同期周波数 (= f_1) の間隔で規則的に櫛 (コム) の歯状で並んだ光コム (= $\nu_m \pm n f_1$) となる. このよ

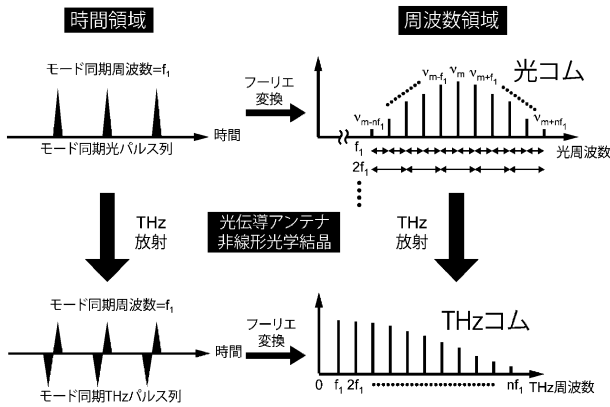


図6 光コムと THz コム.

うなフェムト秒レーザー光を THz 発生用光伝導アンテナ (または非線形光学結晶) に入射すると、時間領域では、フェムト秒レーザー光に同期した THz 領域のモード同期パルス列 (モード同期周波数 = f_1) が自由空間に放射される。一方、周波数領域における THz 放射は、光伝導アンテナを介した光コムの超広帯域復調 (光整流) と見なすことができる。すなわち、光周波数コムのオフセット周波数成分 ($=v_m$) がカットされ、光コム全体が同じモード間隔を保ったまま低周波数側へダウン・コンバートされることになる。その結果、モード同期周波数の基本波成分 ($=f_1$) と多数の高調波成分 ($=2f_1, 3f_1, \dots, nf_1$) が等間隔で立ち並んだ周波数コムが THz 領域に生成される (THz コム)¹⁰⁾。したがって、現在の時間 (周波数) 標準であるマイクロ波原子時計を基準としてモード同期周波数を安定化制御することにより、THz コムを『THz 周波数の超精密物差し』として利用できる。また、THz コムは、キャリア・エンベロップ・オフセット周波数フリーな高調波コムであるので、モード同期周波数の制御のみで各 THz コム・モードの絶対周波数を決定できる。

4.2 時間窓拡張型 ASOPS-THz-TDS

THz パルスを用いたフーリエ変換分光法である 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 THz パルスの電場時間波形を取得する [図 7(a)]。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 7(b)]。一方、もし THz 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 THz パルスから構成された THz パルス列の電場時間波形を観測することが可能になる [図 7(c)]。THz 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、THz パルス列を構成するパルス

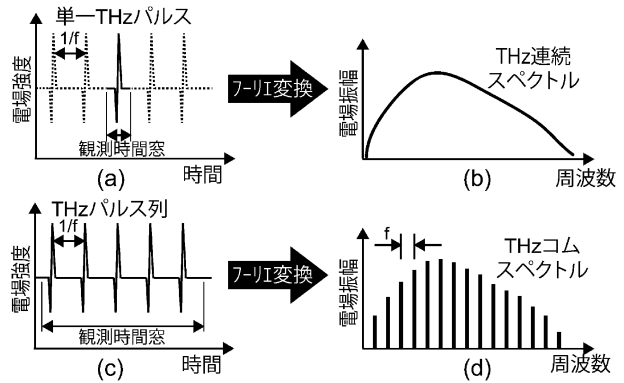


図7 単一 THz パルスの (a) 電場時間波形と (b) フーリエ・スペクトル (THz 連続スペクトル) および THz パルス列の (c) 電場時間波形と (d) フーリエ・スペクトル (THz コム・スペクトル)。

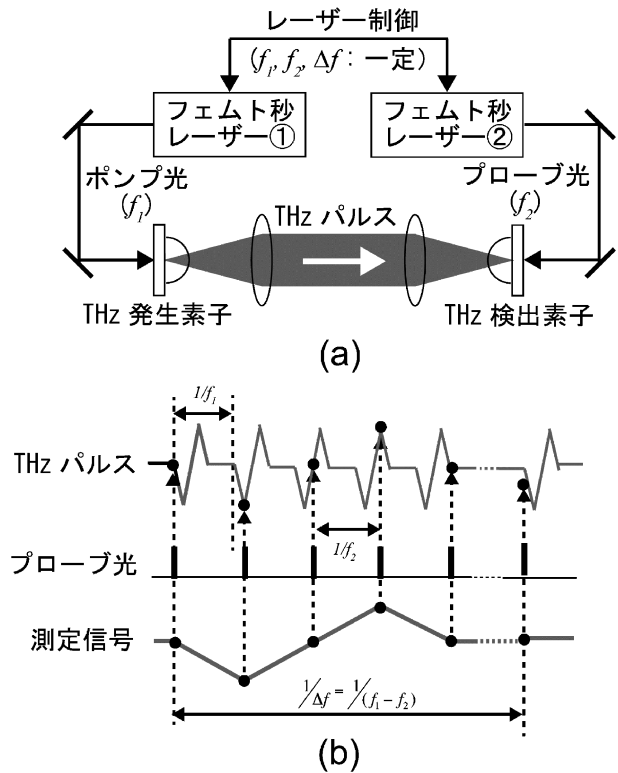


図8 非同期光サンプリング式 THz 時間領域分光法. (a) 装置構成と (b) THz 検出素子におけるタイミングチャート.

数が増えるにつれて変調が深くなる [図 7(d)]。その結果、THz コムの超微細構造スペクトルの観測が可能になる。しかし、従来の THz-TDS で THz 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 10 m 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、我々が着目したのが非同期光サンプリング法 (ASOPS 法) である¹⁸⁻²⁰⁾。ASOPS 法では、2 台のフェムト秒レーザーのモード同期周波数 (f_1, f_2) および両者の

オフセット周波数 ($=\Delta f=f_2-f_1$) を、マイクロ波周波数標準に位相同期するように制御する [図8(a)]. 各々のレーザー光を THz 発生用ポンプ光と THz 検出用プローブ光に用いると、パルス周期がわずかに異なるので、THz パルス (モード同期周波数 f_1) とプローブ光 (モード同期周波数 f_2) が THz 検出素子で重なるタイミングがパルス毎に自動的にずれていき、高速サンプリングされる [図8(b)]. その結果、サブピコ秒オーダーの THz 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. マイクロ秒オーダーまで時間スケールが拡大された THz パルス時間波形は、汎用オシロスコープで実時間測定できるので、もはや機械式時間遅延ステージが不要となる. その結果、測定時間窓に関する制限が解消され、任意の数の THz パルス列の電場時間波形が取得できる^{8,9)}.

4.3 実験装置

図9は、実験装置を示している. 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_1) をルビジウム周波数標準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). 両レーザー光を非線形光学結晶で SHG 光に波長変換した後、THz 発生及び検出用の光伝導アンテナ (PCA) にそれぞれ入射される. THz 発生用 PCA ①から放射された THz パルスは、自由空間を伝搬した後、THz 検出用 PCA ②に入射される. また、両レーザー光の一部は、和周波発生 (SFG) 相互相関計に導かれ、発生した SFG 信

号を測定の時間原点信号として用いる. THz 検出用 PCA からの電流信号は、カレント・プリアンプで増幅された後、その時間波形をデジタイザーで取り込む.

4.4 実験結果

図10(a)は、測定時間窓40 ns で取得した電場時間波形を示しており、パルス周期4 ns で10連の THz パルス列が確認できる. 従来の THz-TDS で同様な時間波形を取得するためには、6 m に及ぶ機械式時間遅延走査が必要になる. 図10(b)は、1 番目の THz パルスのメインピーク付近 (1505 ps~1520 ps) を拡大した電場時間波形であり、サブピコ秒オーダーの詳細な THz 電場の時間変化が確認できる. 次に、図10(a)の10連 THz 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取得した振幅スペクトル (灰色) が図10(c)である. スペクトル波形の内部がベ

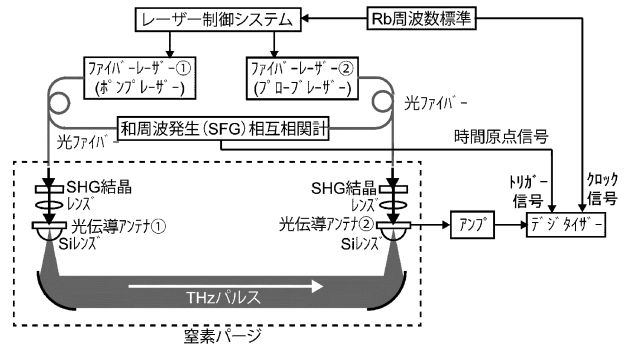


図9 THz コム分光装置. SHG 結晶: 第2高調波発生結晶, Si レンズ: シリコン・レンズ. Rb 周波数標準: ルビジウム周波数標準.

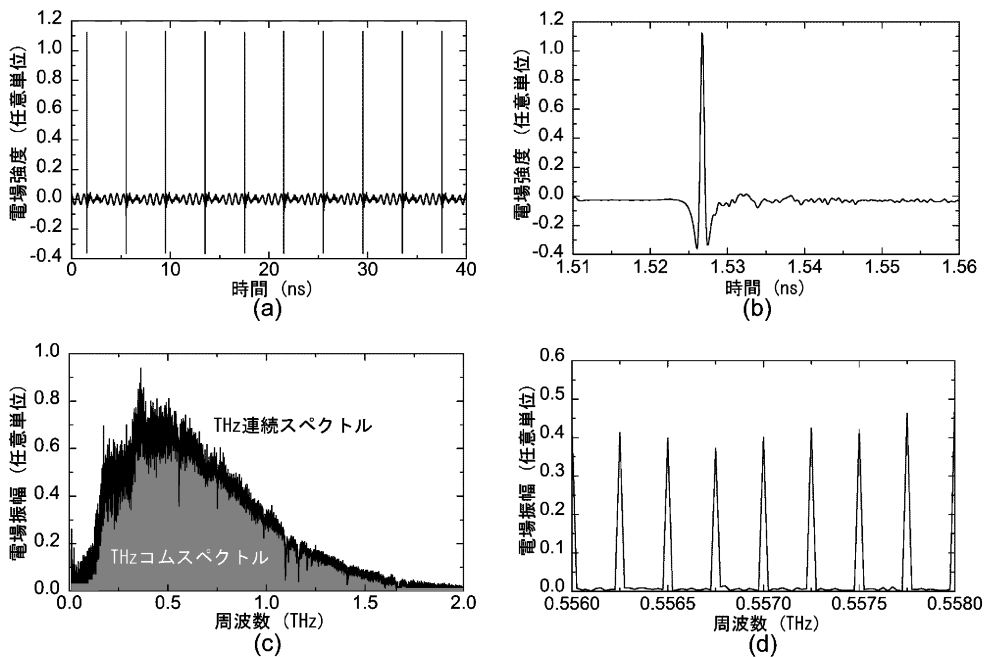


図10 (a)10連 THz パルス列と(b)第1 THz パルスの電場時間波形. (c)THzコムスペクトルとTHz連続スペクトルの比較. (d)拡大された THz コム・モードのスペクトル波形 (0.4 THz 付近).

タに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。比較のため、単一THzパルスの電場時間波形（測定時間窓=4 ns）をフーリエ変換することによって得られたTHz連続スペクトル（黒色）も図10(c)に示す。THzコムのスペクトル包絡線（灰色）とTHz連続スペクトル（黒色）の形状は良く一致しており、このことはレーザー間およびパルス間におけるタイミング・ジッターの影響なく、THzパルス列の電場時間波形を精度良く測定できていることを示している。さらに、THz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10(d)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、THzコムを用いた分光センシングの有用性を確認するため、結晶構造における格子振動由来のTHz指紋スペクトルを示す糖類の分光計測を行った例を示す。医薬品や農薬の多くは、各種の結晶構造に由来する特徴的なTHz指紋スペクトルを示す上に、結晶性変化（結晶多形など）もスペクトルに敏感に反映されることから、薬品類の新しい分析手段としてTHz分光が期待されている。ここでは、糖類（D-マルトースまたはラクトース）25 mgをホワイトポリエチレン粉末75 mgと混合し、錠剤（直径10 mm、厚さ1 mm）にしたものをサンプルに用いた。図11(a)は、マルトース錠剤を透過後の振幅スペクトル（灰

色）を示している。比較のため、参照錠剤（ホワイトポリエチレン粉末100 mg）透過後の振幅スペクトル（黒色）も合わせて示している。両者の比較から、1.1 THz付近に吸収が確認できる。図11(b)は、ラクトース錠剤および参照錠剤を透過後の振幅スペクトルの比較（灰色および黒色）を示しており、0.5 THz付近と1.4 THz付近の吸収が確認できる。これらの吸収線は、先行研究²¹⁾で報告されたTHz指紋スペクトルと良く一致している。

次に、気体分子の分光計測を行った例を示す。THz領域は、気体分子の回転遷移に伴う様々な吸収線が現れる特徴的な周波数帯でもあり、大気環境分析等での利用が期待されている。THz領域にひしめきあうように存在している様々な気体分子を詳細に識別し定量するために、極めて高いスペクトル確度とスペクトル分解能を有し、THz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。水蒸気は、回転遷移に伴う吸収線をTHz領域に示すことが知られているが、 $1_{10} \rightarrow 1_{01}$ 遷移による吸収線（周波数0.557 THz）を計測した。水蒸気と窒素の混合気体をガスセル（全長=500 mm、直径=40 mm）に封入し、それぞれの圧力を1.5 kPaおよび17 kPaに設定した。この圧力条件下における水蒸気の圧力拡がり線幅は1.5 GHz程度である。図12(a)は、水蒸気封入ガスセルを透過後の振幅スペクトルを示しており、0.557 THz付近にシャープなスペクトル・ディップが確認できる。また、図12(b)は吸収スペクトルを算出し、ローレンツ関数によるカーブフィッティングを行った結果を示して

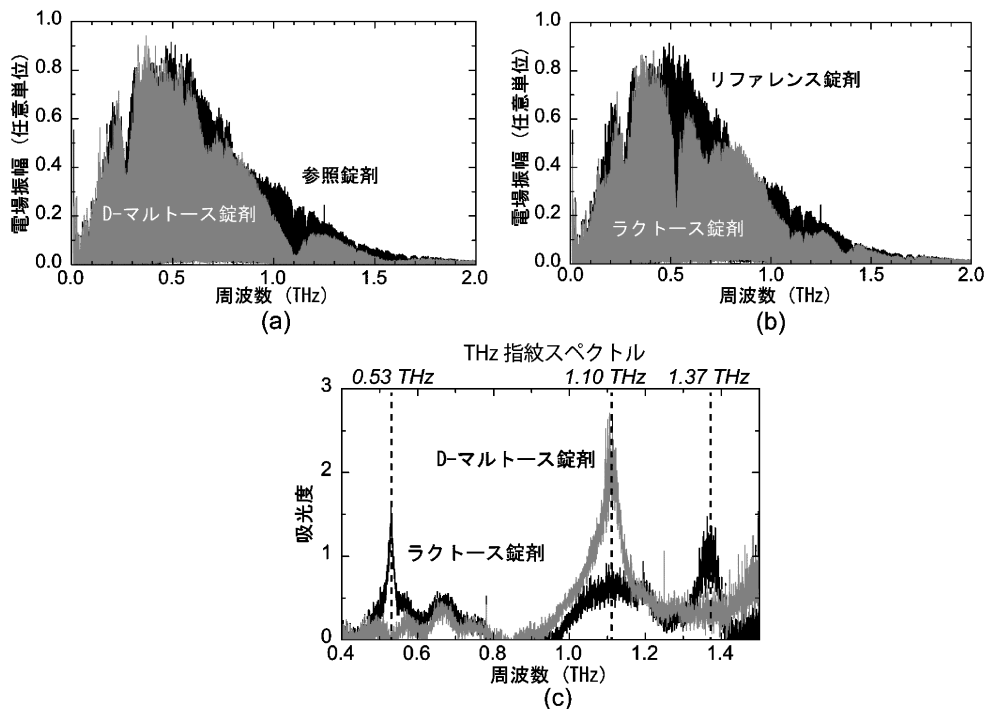


図11 (a) D-マルトースと(b)ラクトースの錠剤サンプルを透過後の振幅スペクトル。(c)吸収スペクトル。

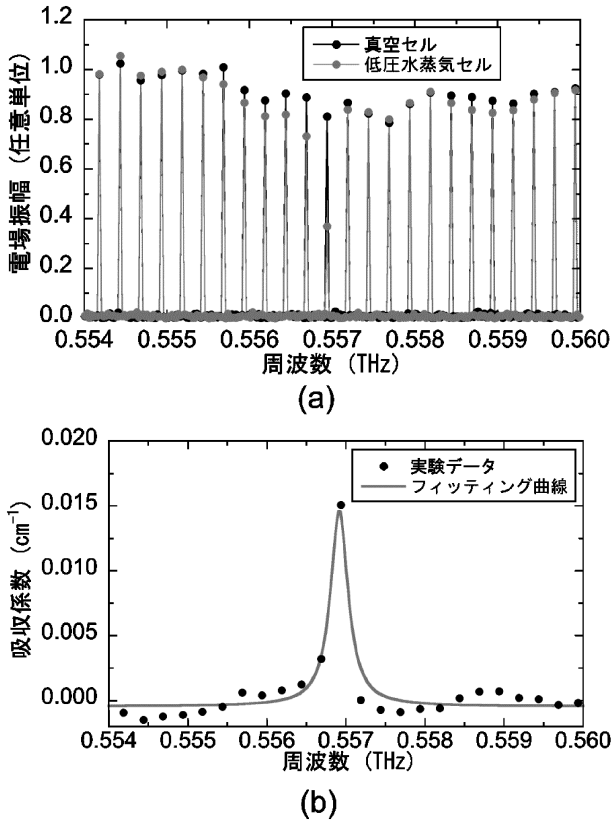


図12 低圧水蒸気 (圧力拡がり線幅1.5 GHz) を透過後の(a) 振幅スペクトルと(b)吸収スペクトル。

いる。カーブフィッティングにより求められたスペクトル線幅は1.5 GHzであり、予測される圧力拡がり線幅と良く一致している。また、観測された吸収線の中心周波数は0.556935999 THzであり、こちらも文献値(=0.556936002 THz)²²⁾と良く一致している。

5. THz コムのギャップレス化

図12に示したように、THz コムを THz 分光計測の周波数目盛としてそのまま利用すると、離散スペクトル分布のため、実用的なスペクトル分解能はコム・モード間隔 (=モード同期周波数) に等しくなる。一方、コム・モード間隔に対して、コム・モード線幅は極めて狭い。したがって、コム・モード間隔でなく、コム・モード線幅を THz 分光計測に利用することが出来れば、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、THz コムのギャップレス化が必要になる²³⁾。

5.1 原理

THz コムのモード線幅を活かした分光を行うためには、THz コムの間隙部分を補間するように、THz コム・モードを横ずらしする必要がある (図13)。THz 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。厳密に言うと、モード同期周波数の変化量と THz コム・モードの次数の積によって、THz コム・モードの周波数走査量が決まる。したがって、

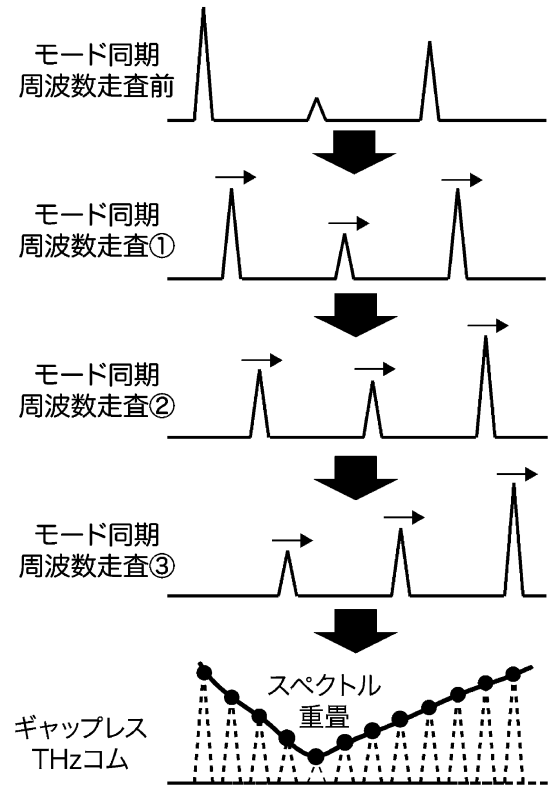


図13 THz コムのギャップレス化

THz コム・モードをモード線幅間隔で逐次走査しながら THz 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、間隙部分の無い超微細テラヘルツ・スペクトル (ギャップレス THz コム) を得ることが可能になる。この手法は、狭線幅・単一モード CW-THz 波を広帯域・連続チューニングするのと等価であるので、スペクトル分解能はコム・モード線幅に等しくなる。

5.2 実験結果

THz コム分光装置 (図9) のデュアル・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、THz 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。その時の THz コム・スペクトルを図14(a)に示す。図10(d)同様、ギャップ有り THz コムのスペクトルが確認できる。次に、 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 THz コム・スペクトルを重ね合わせて表示したグラフが図14(b)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、コム・モードの次数が大きいため [図14(b)では、約1,600]、THz 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14(a)で観測された THz コムのギャップが、図14(b)では完全に補間され、ギャップレスな THz コムが実現されている様子が確認できる。

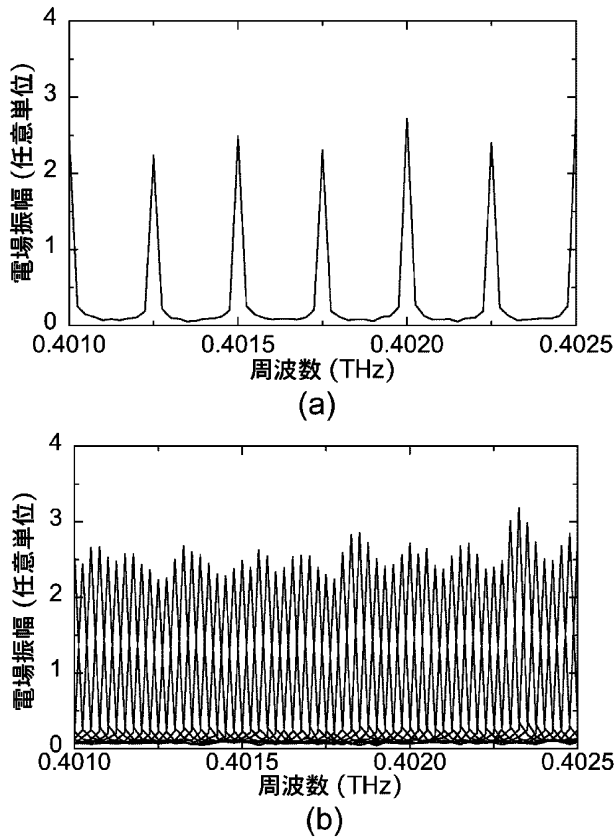


図14 (a)ギャップ有り THz コムと(b)ギャップレス THz コムの振幅スペクトル (サンプル無し)

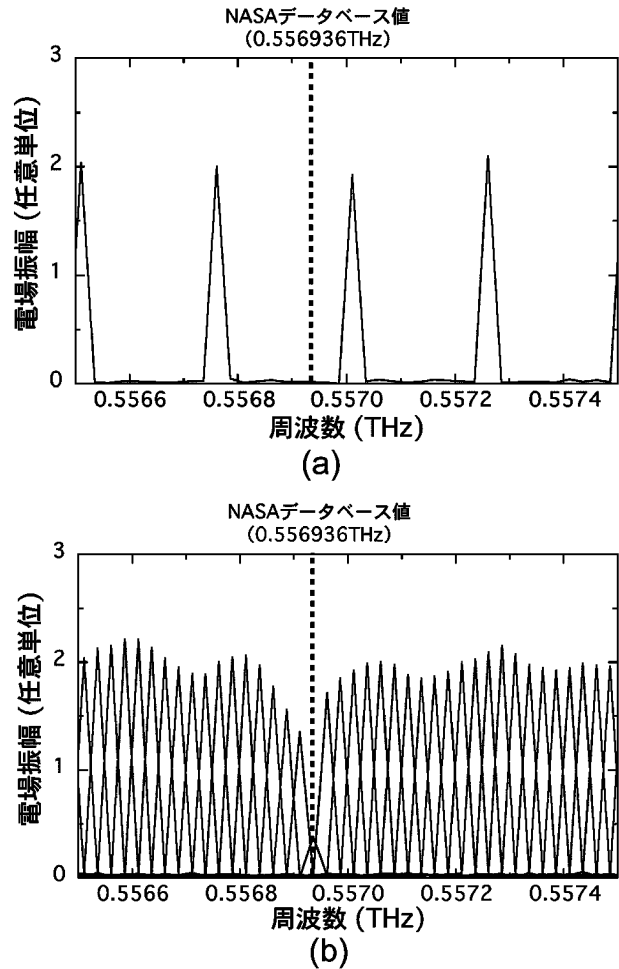


図15 低圧水蒸気 (圧力拡がり線幅 25 MHz) を透過後の振幅スペクトル. (a)ギャップ有り THz コムと(b)ギャップレス THz コム.

最後に、低圧ガス分光への応用例を紹介する．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15(a)は、THz コム・モードを走査しない場合の $1_{10} \rightarrow 1_{01}$ 遷移による吸収線 (周波数0.556 THz) の計測結果である．この吸収線の NASA データベース値も併せて示している²²⁾．250 MHz 間隔で等間隔に分布しているギャップ有り THz コムでは、吸収線幅が狭すぎるため、0.557 THz 付近の吸収線のスペクトル波形が正確に再現できていない．次に、コム・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15(b)に示す．吸収線のスペクトル・ディップが詳細に再現できている様子が確認できる．ローレンツ関数フィッティングで算出された吸収線幅は 23 MHz であり、ガス圧から予測される圧力拡がり線幅の 24 MHz と良く一致している．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)²²⁾ と 10^{-5} の精度で一致している．

6. まとめ

最後に、周波数コムを用いたコヒーレント周波数リンクという観点から、本稿をまとめてみたいと思う．光コム

は、マイクロ波周波数標準の不確かさを、THz 領域や赤外領域を飛び越えて、直接、近赤外・可視領域に持ち込むことを可能にした．また、最近では、非線形波長変換に基づいた赤外コムや紫外コムにより、光コムの波長帯域拡大が進められている．しかし、未だ『周波数コムの THz ギャップ』が存在している．THz コムは、この THz ギャップを解消する手段として期待される．今回紹介した THz コムの周波数帯域は数 THz に留まっていたが、非線形光学結晶を用いた広帯域 THz 発生では170 THz に及ぶスペクトル帯域が報告されており²⁴⁾、将来的に近赤外領域まで THz コムを拡張できる可能性がある．その結果、電波～THz 波～光波という極めてワイドレンジな電磁波領域に共通した『周波数』という物理量を切れ目無く繋ぐことができ、各電磁波領域の境界を超えて、周波数を同一精度で論じることが可能になる．これにより、THz 領域においても、確かな信頼性に基づいた周波数トレーサビリティの確立を可能にする．このことは、分光計測のみならず、無線通信を始めとした THz 応用産業を国内外に幅広く普及させていくことに貢献するであろう．

謝辞

本講座で紹介したデータは、大阪大学・荒木勉教授、産業技術総合研究所・稲場肇博士、電気通信大学・美濃島薫教授、日本マイクロ光器・横山修子博士、仏リトラル・コート・ド・パール大学・Francis Hindle 博士との共同研究の成果であり、ここに深く感謝の意を表す。また、本講座で紹介した研究の一部は、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。

参考文献

- 1) テラヘルツテクノロジーフォーラム：テラヘルツ技術総覧 (NGT コーポレーション, 東京, 2007).
- 2) D. H. Auston and K. P. Cheung: *J. Opt. Soc. Am. B* **2**, pp. 606 (1985).
- 3) A. S. Pine, R. D. Suenram, E. R. Brown, and K. A. McIntosh: *J. Mol. Spectrosc.* **175**, 37 (1996).
- 4) Th. Udem, R. Holzwarth, and T. W. Hänsch: *Nature* **416**, 233 (2002).
- 5) T. Yasui, S. Yokoyama, H. Inaba, K. Minoshima, T. Nagatsuma, and T. Araki: *IEEE J. Selected Topics in Quantum Electron.* **17**, 191 (2011).
- 6) T. Yasui, H. Takahashi, Y. Iwamoto, H. Inaba, and K. Minoshima: *J. Appl. Phys.* **107**, 033111 (2010).
- 7) T. Yasui, H. Takahashi, K. Kawamoto, Y. Iwamoto, K. Arai, T. Araki, H. Inaba, and K. Minoshima: *Opt. Express* **19**, 4428 (2011).
- 8) 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: *レーザー研究* **40**, 513(2012).
- 9) Y.-D. Hsieh, Y. Iyonaga, Y. Sakaguchi, S. Yokoyama, H. Inaba, K. Minoshima, F. Hindle, Y. Takahashi, M. Yoshimura, Y. Mori, T. Araki, and T. Yasui: *IEEE Trans. Terahertz Sci. Tech.* **3**, pp. 322-330 (2013).
- 10) T. Yasui, Y. Kabetani, E. Saneyoshi, S. Yokoyama, and T. Araki: *Appl. Phys. Lett.* **88**, 241104 (2006).
- 11) H. Takahashi, Y. Nakajima, H. Inaba, and K. Minoshima: in *Conference on Lasers and Electro-Optics 2009*, Technical Digest (CD) (Optical Society of America, 2009), paper CTuK4.
- 12) Q. Quraishi, M. Griebel, T. Kleine-Ostmann, and R. Bratschitsch: *Opt. Lett.* **30**, 3231 (2005).
- 13) H. Inaba, Y. Daimon, F.-L. Hong, A. Onae, K. Minoshima, T. R. Schibli, H. Matsumoto, M. Hirano, T. Okuno, M. Onishi, and M. Nakazawa: *Opt. Express* **14**, 5223 (2006).
- 14) T. Nagatsuma, H. Ito, and T. Ishibashi: *Laser, Photon. Rev.* **3**, 123 (2009).
- 15) S. Yokoyama, R. Nakamura, M. Nose, T. Araki, and T. Yasui: *Opt. Express* **16**, 13052 (2008).
- 16) T. Yasui, R. Nakamura, K. Kawamoto, A. Ihara, Y. Fujimoto, S. Yokoyama, H. Inaba, K. Minoshima, T. Nagatsuma, and T. Araki: *Opt. Express* **17**, 17034 (2009).
- 17) S. Matsuura, M. Tani, and K. Sakai: *Appl. Phys. Lett.* **70**, 559 (1997).
- 18) T. Yasui, E. Saneyoshi, and T. Araki: *Appl. Phys. Lett.* **87**, 061101 (2005).
- 19) T. Yasui, M. Nose, A. Ihara, K. Kawamoto, S. Yokoyama, H. Inaba, K. Minoshima, and T. Araki: *Opt. Lett.* **35**, 1689 (2010).
- 20) T. Yasui, K. Kawamoto, Y.-D. Hsieh, Y. Sakaguchi, M. Jewariya, H. Inaba, K. Minoshima, F. Hindle, and T. Araki: *Opt. Express* **20**, 15071 (2012).
- 21) M. Schirmer, M. Fujio, M. Minami, J. Miura, T. Araki, and T. Yasui: *Biomed. Opt. Express* **1**, 354 (2010).
- 22) H. M. Pickett, R. L. Poynter, E. A. Cohen, M. L. Delitsky, J. C. Pearson, and H. S. P. Muller: *J. Quant. Spectrosc. Radiat. Transfer* **60**, 883 (1998).
- 23) T. Yasui, Y.-D. Hsieh, Y. Iyonaga, Y. Sakaguchi, S. Yokoyama, H. Inaba, K. Minoshima, F. Hindle, and T. Araki: "Gapless dual-comb spectroscopy in terahertz region," arXiv:1303.5799 (2013).
- 24) M. Ashida, R. Akai, H. Shimamoto, I. Katayama, T. Itoh, K. Miyamoto, and H. Ito: in *Conference on Lasers and Electro-Optics 2008*, Technical Digest (CD) (Optical Society of America, 2009), paper CTuX6.

PROFILE



安井武史 (1969年10月6日生)

1997年徳島大学大学院工学研究科博士後期課程修了。博士 (工学)。2013年奈良県立医科大学大学院医学研究科・論文博士, 博士 (医学)。1997年徳島大学サテライト・ベンチャー・ビジネス・ラボラトリー中核的研究機関研究員, 同年通産省工業技術院計量研究所科学技術特別研究員, 1999年大阪大学大学院基礎工学研究科助教を経て, 2010年より徳島大学大学院ソシオテクノサイエンス研究部教授および大阪大学大学院基礎工学研究科招聘教授。2007年および2012年仏ボルドー大学招聘教授, 2010年仏リトラル・コート・ド・パール大学招聘教授。主な研究テーマは, 知的テラヘルツ計測, 非線形光学顕微鏡およびレーザー制御。2006年日本生体医工学会論文賞・阪本賞, 2009年応用物理学会光学論文賞, 同年日本機械学会船井賞, 同年日本塗装技術協会賞編集委員長賞, 2013年レーザー学会業績賞 (論文賞) を受賞。応用物理学会, 日本機械学会, 日本生体医工学会, レーザー学会, 電子情報通信学会, OSA 各会員。