

## 周波数可変ギガヘルツ光周波数コムを用いた 超高分解スペクトル計測システムの研究

Study of High-Resolution Spectroscopy  
using Frequency Tunable Gigahertz Optical Frequency Comb

塩田 達俊

Tatsutoshi SHIODA

周波数軸上に精密に等しい間隔にピークが整列した光周波数コムと周波数掃引可能な単側波帯(SSB: Single-Sideband)光変調器により高分解分光システムを開発した。本システムは1 MHzの精度と絶対周波数で波長走査できる光周波数コムを光源と、ヘテロダイン検波による検出部を備える。その精度は、波長安定化した種光としての周波数安定化光源とSSB光変調器により保証される。光検出部では、光周波数コムを構成する個々のピーク強度は光ヘテロダイン検波により検出する。また、計測できる周波数範囲は光周波数コムの広い帯域を利用することができる。実験では1 MHz線幅の光共振器と $H^{13}C^{14}N$ ガスを用いて実証実験を行った。

High-resolution spectroscopy based on a Single-SideBand (SSB) optical modulator combined with an optical frequency comb was proposed. A frequency tunable comb was developed with a spectral resolution of less than 1 MHz on the absolute frequency axis ensured by the combination of the SSB optical modulator and frequency-locked laser diode. Also, the measurement frequency range was determined by the frequency band of an optical frequency comb, in which the peak intensity was individually measured by the optical heterodyne detection method. The performance was experimentally confirmed using a 1-MHz-width resonator and a  $H^{13}C^{14}N$  gas cell.

### はじめに

高分解分光により気体の吸収スペクトルを詳細に計測することは、周波数標準化技術を始めとして大気化学や宇宙科学などの発展に有効である<sup>[1, 2]</sup>。例えば、アセチレンやシアン化水素ガスなどの微細な吸収線は普遍的な絶対周波数を与えるので、波長1.5  $\mu\text{m}$ 帯の光通信技術の周波数標準として利用されている<sup>[3]</sup>。さらに、kHzからGHzの狭線幅なスペクトル形状を解析することは、物質のエネルギー構造の分析や同定などに有効である<sup>[1, 2]</sup>。従って、絶対周波数を保証し、かつ高分解なスペクトル解析器を開発することが望まれている。

一方、Rbやヨウ素の可視光吸収線を利用した周波数安定化技術が開発されている<sup>[4, 5]</sup>。この技術は、光周波数の

精度が $10^{-9}$ 程度に安定化されたRb安定化レーザーと非線形周波数変換技術などを用いて、1.5  $\mu\text{m}$ 光通信波長帯へ適用できる<sup>[6-7]</sup>。しかし、近年まで周波数可変光源を用いたスペクトル計測において光源の周波数計測を連続的に行うことが困難であることから、飽和吸収によるスペクトルの中心周波数の精密測定など、離散的なスペクトル計測に留まっていた<sup>[8, 9]</sup>。ところが、周波数安定化したモードロックレーザー発生技術の進歩から、これを元に周波数可変連続光の周波数を常時モニターして、スペクトル計測する方式も報告されている<sup>[10-14]</sup>。これらの研究は単一周波数光源を試料に照射するのみであるため高い信号帯雑音(S/N)比を得ることができる。これらのシステムには専門的な調整を要することや全体として高価になることが問題であるうえに、広い帯域を得ることは容易ではない<sup>[13]</sup>。

一方、光変調器は10 Hz程度の精度で光周波数を比較的容易に掃引することができる<sup>[14]</sup>。それゆえ、著者はSSB光変調器を光周波数シフターとして利用した高分解分光を提案してきた<sup>[15]</sup>。本システムは周波数安定化光源を用いて絶対周波数を保証して、1 MHz程度の分解能を実証した。単一周波数レーザーを光源としてSSB光変調器で掃引すると、簡単に高分解な掃引ができるものの、周波数範囲は10 GHzレンジに限られる。ところが、光周波数コムを導入すると、計測可能な周波数範囲は各段に広げられる。過去の論文でも、7 THzを超える周波数計測範囲を得られている<sup>[16]</sup>。フェムト秒レーザーは広帯域な光周波数コム光源として知られている。さらに、繰返し周波数が若干異なる二つの光周波数コム(フェムト秒レーザー)を用いたデュアルコム分光法と言われる分光法も提案されている<sup>[17]</sup>。片方の光周波数コムだけを試料に入射し、他方のコム光と合波・受光してヘテロダインビート信号をデジタルで観測してフーリエ変換すると、マイクロ波領域でスペクトルが観測される。光周波数は、光源を高精度に安定化制御して、マイクロ波周波数から求められる。この手法は、極めて簡単な受光系で計測することができる。ところが、2台のよく制御されたフェムト秒レーザー光源の準備は簡単ではない。また、繰返し周波数間隔(100 MHz)によりサンプリング間隔が制限され、特別な機構を追加せずには、より高分解な分光は困難である。一方、著者は光位相変調器と光周波数コムを用いた分光システムの提案も行っている<sup>[14]</sup>。同システムで、絶対周波数を保証したテラヘルツに及ぶ広帯域計測が可能となる。しかし、光位相変調器が発生する周波数軸上の左右に現れる複数の側波帯を切り落とすための周波数可変フィルタを別途用意する必要が生じるなどの問題点が存在する。

本報告では、10 GHz間隔の光周波数コムとSSB光変調器を用いた分光システムを紹介する。本システムでは、半導体レーザーの周波数安定化による絶対周波数が保証される<sup>[15]</sup>。制御手順として、(1)SSB光変調器によって光周波数コムのピークを一斉に掃引しながら、(2)光ヘテロダイン検波により光周波数コムがもつ個々のピーク強度を検出する。ヘ

テロダイン検波では、測定対象となるピークの周辺に参照光である局部発生光の光周波数を設定するが、その周波数精度は測定するスペクトルに影響しない特徴をもつ。提案システムの原理確認実験として、透過スペクトル線幅が1 MHz前後の光共振器とH<sup>13</sup>C<sup>14</sup>Nガスを用いて、3 THz(1530 nm~1560 nm)以上の計測範囲で1 MHzの分解能が得られることを確認した。

### 分光システムの動作原理

実験系の動作原理をFigure 1に表す。本システムは、主に光周波数コム発生器、SSB光変調器、波長可変レーザーで構成される。光周波数コム発生器は、直線状の光導波路を備えたLiNbO<sub>3</sub>結晶の両端に高反射率膜を備えた共振器型の構造を持つ<sup>[18]</sup>。分光分解能は、光源の周波数安定性とSSB光変調器を駆動するマイクロ波の周波数精度により決まる。このシステムの特徴は、光周波数コムを構成する全てのピーク周波数を一括で掃引ことができ、さらにその精度がヘテロダイン検波の局部発生光となる波長可変レーザーの周波数安定性に依存しない点にある。そして、今回は光周波数コムの掃引範囲(comb scan <1>)をコム間隔の半分となる様に設定した。その理由は、もし半分以上の周波数掃引を行った場合に、局部

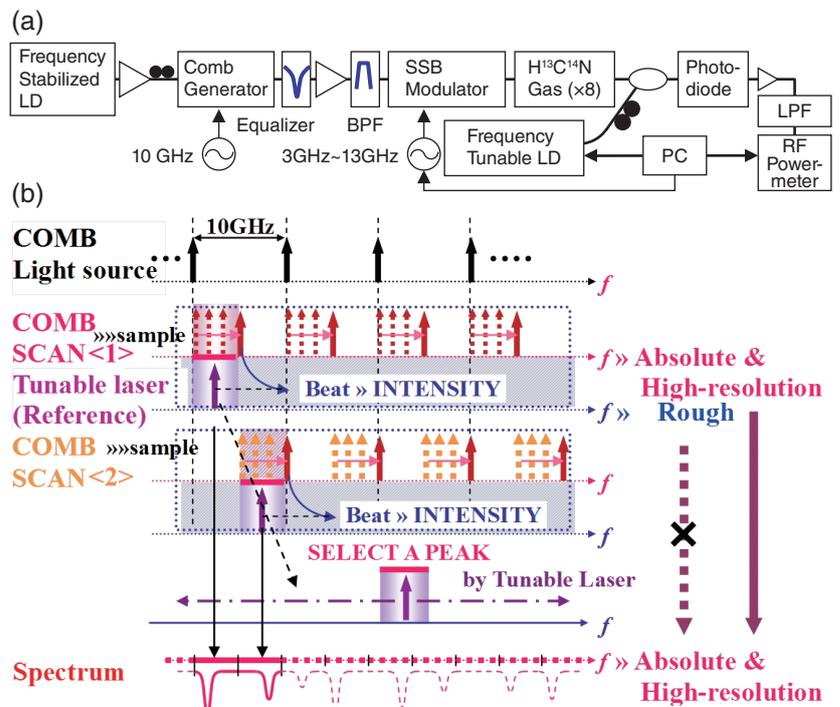


Figure 1 Schematic of measurement principle. (a) The experimental setup of the proposed system is shown above. (b) The operation principle is shown schematically below. The light source, i.e., a 10 GHz comb, is scanned by a SSB modulator and coupled with the reference tunable laser light to generate heterodyne beat signals, whose power is proportional to the comb tooth intensity through a sample. The absolute frequency is not ensured by the reference light but by the comb light.

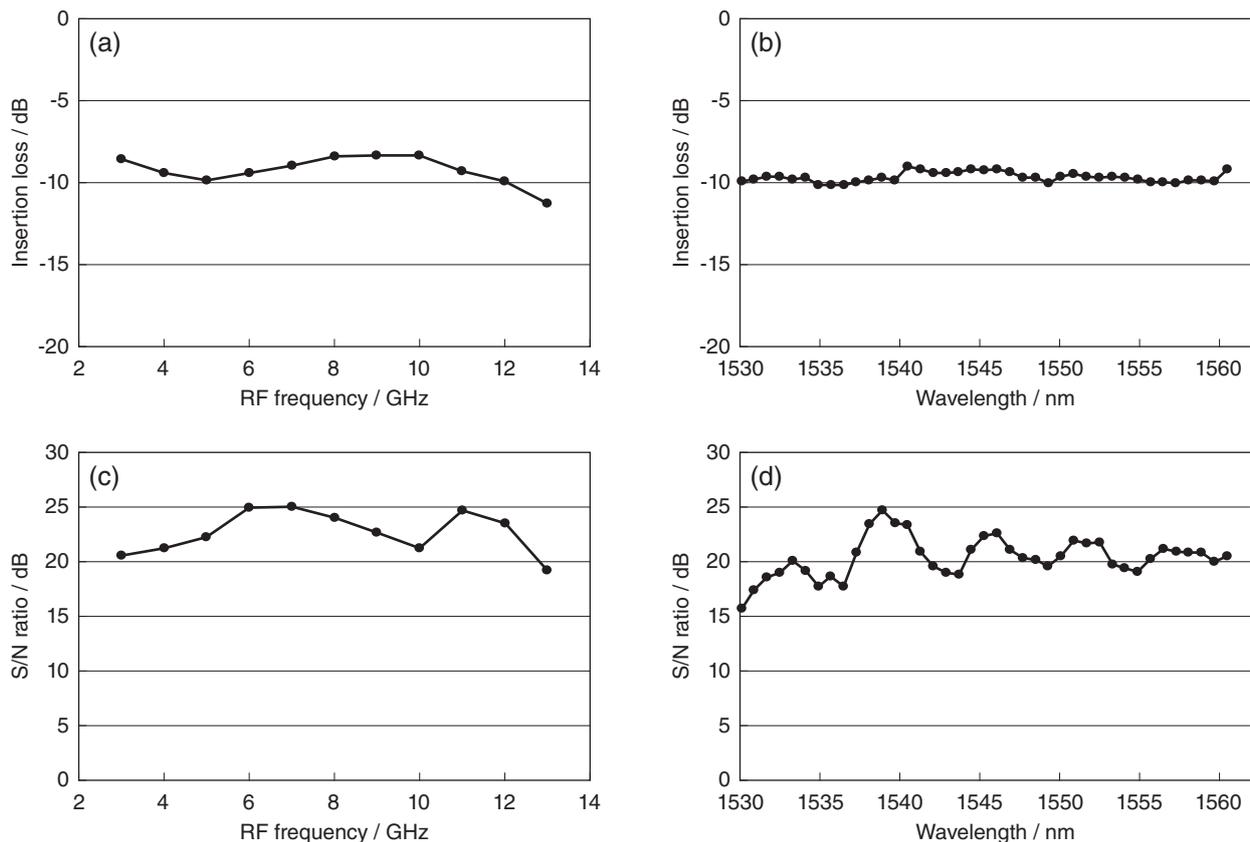


Figure 2 (a) Insertion loss and (c) S/N of the SSB optical modulator against input RF frequency. (b) Insertion loss and (d) S/N of the SSB optical modulator against input optical wavelength.

発生光と得られるヘテロダイン信号の隣接ピークによるクロストークが生じるためである。ここで、ヘテロダイン参照用の局部発生光の周波数を光周波数コムの1つのピークが一回で掃引する周波数帯域のほぼ中央付近になる様に設定した。1度の光周波数コムの周波数掃引により、コム間隔の半分のデータが取得される。他方の半分の周波数掃引 (comb scan (2)) については、局部発生光の周波数をその周波数領域のほぼ中央に再設定して同様にデータを取得する。この様に自動的に局部発生光の光周波数を繰り返し掃引すると、分光分解能を維持して光周波数コム帯域全体のスペクトルを計測することが可能となる。

### SSB光変調器の特性

動作原理を確認するために、SSB光変調器<sup>[15]</sup>の損失とS/N比が駆動マイクロ波と入力光周波数に依存しないことが必要である。そこで、S/N比を+1次側波帯の光強度と、入射光を含み二番目に強い側波帯の光強度との比と定義した。入射光の光周波数を1548.97 nmとしたときの、損失とS/N比のマイクロ波周波数依存性をFigure 2(a)と

(c)に示す。損失は、3 GHzから13 GHzのマイクロ波周波数範囲で約-10 dB程度であった。S/N比は同様の周波数範囲で、19 dB程度維持されることが分かった。一方、損失とS/N比を光周波数に対してプロットした結果をそれぞれFigure 2(b)と(d)に示す。このとき、マイクロ波周波数を8 GHzとした。1530 nmから1560 nmの波長(光通信分野ではCバンド帯と呼ばれる)に相当する光周波数帯域で損失は約-10 dB程度、S/N比は15 dB以上が確認された。Figure 3はSSB光変調器で5 GHz周波数シフト

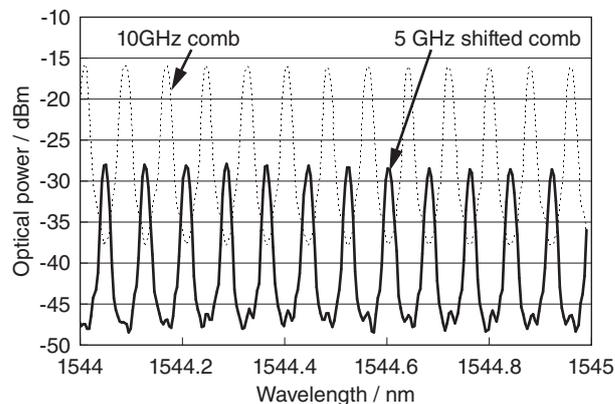


Figure 3 Input (dashed line) and output (solid line) spectra of 5 GHz driven SSB optical modulator driven by 5 GHz RF signal.

する前後での光周波数コムのスペクトルを拡大したスペクトルであり、全てのピークが同様に周波数シフトされている様子がわかる。

## 実験方法

Figure 1(a)に示したシステムで実験を試みた。光源の光周波数を193.36956938 THzとして、アセチレンガスの吸収線にキロヘルツ精度で周波数安定化した。光源のスペクトル線幅を遅延自己ヘテロダイン検波法により測定<sup>[19]</sup>したところ、約100 kHzであった<sup>[20]</sup>。出力光を光増幅器で増幅したのち10.004800 GHzのマイクロ波で駆動された光周波数コム発生器に入射した。ここで、発生した光周波数コムのピークの絶対周波数は数キロヘルツで制御されている。光周波数コムの帯域の末端では-55 dBmという低い強度になるが、周波数可変のスペクトル等価器により波長帯域10 nmに渡って3 dB以下に平坦化し、可変帯域等価フィルター (BPF: Band-pass filter) で同様の10 nm波長帯域を切り出した。これにより、光周波数コムの1ピークあたりの強度を-35 dBm以上に維持した。最終的には、光周波数コムの帯域を I)1530–1533 nm, II)1533–1543 nm, III)1543–1553 nm, IV)1553–1560 nmという10 nmごと4つの周波数帯に分割し測定した。切出した光はSSB光変調器に入射し、マイクロ波により3 GHzから13 GHzの間で周波数シフトを受ける。周波数シフトを受けた光は試料を透過し、局部発生光である波長可変レーザー (光パワー: +5 dBm, 設定波長: 1520 nm ~ 1620 nm) と合波して25 GHz帯域の高速フォトダイオードで検出した。フォトダイオードから出力される電気のヘテロダイン(ビート)信号を、カオフ周波数6.25 GHzの低域透過フィルター (LPF: Low-pass filter) によって帯域制限することで、隣接ピークの7.5 GHzヘテロダイン検波信号によるS/Nを最小限に抑えた。

## 結果と考察

### ダイナミックレンジ

BPFによる10 nmの帯域制限と光増幅により、当初-54 dBであった光周波数コムのピーク強度は、測定周波数範囲で-35 dBm以上に向上した。Figure 4はフォトダイオードで観測されたヘテロダイン検波信号強度と入力光強度の関係であり、システムのダイナミックレンジを与える。増幅された光強度はダイナミックレンジを20 dB程度とすることが分かった。一方、最小検出限界とヘテロダイ

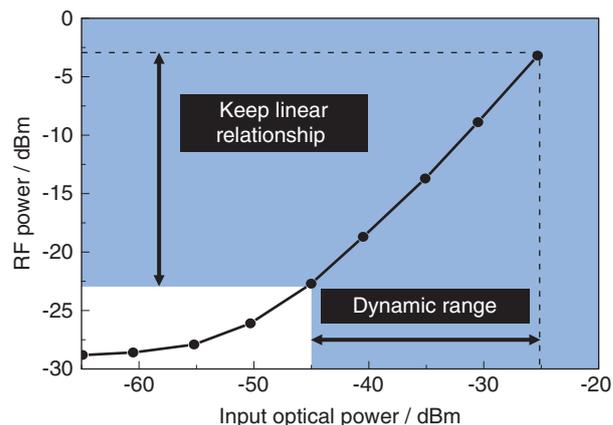


Figure 4 RF power against the input optical power of the tooth in the comb. The gray zone represents the dynamic range, in which a linear relationship is maintained between RF power and input optical power.

ン検波信号の上限で決まるダイナミックレンジは局部発生光の光強度を増幅することで改善できることもわかった。ここで、最小検出限界とはフォトダイオードの後段に設置したマイクロ波増幅器の白色雑音で決まる。

### 1MHz分光分解能

提案したシステムの分解能を実験的に証明するために、1 MHzの光共振器を試料として作製した。その光共振器は、Figure 5(a)の様に反射率87%の鏡で6.2 mの光ファイバーを挟んだ構造にした。光共振器の光応答特性を安定させるために、周辺の温度安定性を $\pm 0.025$  K以下に

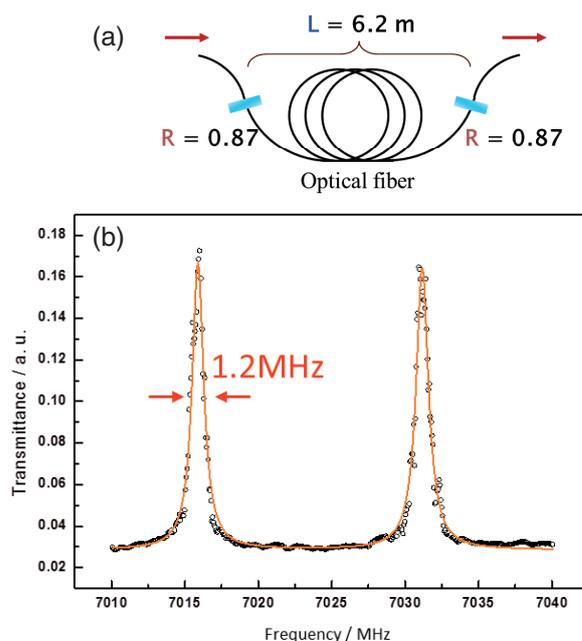


Figure 5 (a)Structure of 1 MHz width resonator. The 6.2 m optical fiber was sandwiched between mirrors of 0.87 reflectance. (b)Transmission spectrum of 1 MHz width resonator. The experimental data (circle) are fitted by a Lorentz function (solid curve).

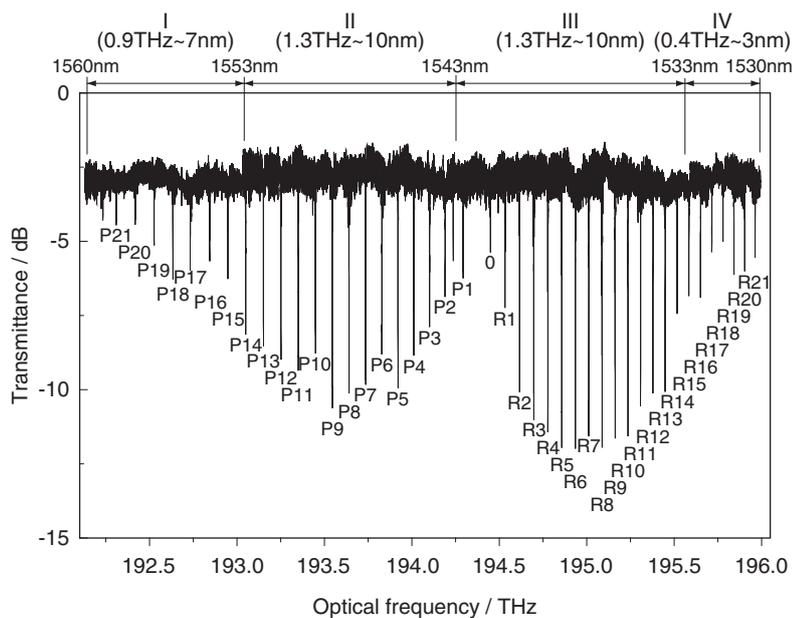


Figure 6 Observed spectrum of H<sup>13</sup>C<sup>14</sup>N gas. The measurement frequency range was divided to four sections to increase the comb peak intensity, which was helpful in realizing the low-intensity regions in the comb spectrum.

抑圧した。測定された典型的なスペクトルをFigure 6に示す。横軸はSSB光変調器を駆動するマイクロ波周波数である。200 msのサンプリング時間間隔で、周波数間隔60 kHzで掃引した。その結果、7018 MHzと7034 MHzで2本のピークが観測された。これは光共振器の透過ピークが繰返し現れる透過スペクトルの一部が観測されたと考えられる。20回繰返して測定した結果、平均1.2 MHzのスペクトルの線幅の標準偏差は0.19 MHzであった。さらに、自由スペクトル領域(FSR)は、平均16 MHz、標準偏差1.1MHzであった。不確かさは試料を構成する光ファイバー光学長の揺らぎによるもので温度に非常に敏感であると考えられる。この事実から、1 MHz以下の分光分解能で測れる可能性が示されたと考えている。

#### 4THz測定周波数範囲

提案手法の測定範囲をH<sup>13</sup>C<sup>14</sup>Nガス(回転、振動遷移P枝、R枝)を用いて確認した。長さ15 cmのガス管に10 Torrのガスを封入したガスセルを4つ直列に接続し、鏡で反射してダブルパスを得る構造を作製し、これを試料とした。試料を透過した光周波数コムは局部発生用の波長可変レーザー光と合波して、25 GHz帯域のフォトダイオードで検波した。フォトダイオードの信号光強度はマルチメータでA/D変換した後、コンピュータでデータ取得した。コンピュータは同時にSSB光変調器を駆動するマイクロ波信号発生器と波長可変レーザーも同期して制御している。試料の吸収線幅が約1 GHzであることを考慮して、

マイクロ波信号発生器の周波数掃引間隔は100 MHzとした。波長可変レーザーの発振周波数は100 MHz程度時間と共に変動するが、その不安定性は実験結果の分光分解能に影響しない。それは、測定の分光分解能を決定する光周波数コムの間隔約10 GHzより十分小さいからである。それ故に、周波数計測の必要としないことが本システムの利点の一つである。4 THzの範囲でH<sup>13</sup>C<sup>14</sup>Nガスの吸収スペクトルを測定した結果をFigure 6に示す。P枝とR枝の21本の吸収線が、約1GHzの線幅<sup>[3]</sup>で観測された。ベースラインの変動は主に用いた共振器型の光コム発生器の不安定性によるものである。従って、その変動は光源の強度も同時に測定して差し引くことで圧縮できると考えられる。周

波数軸の確からしさをP枝の3番目のピークから解析した。20回の独立した測定から、そのピークの中心周波数の平均値は194101327.5 MHzとなり、その標準偏差は1.8 MHzであった。標準偏差には前記の光周波数コム発生器による縦軸の強度変動の影響は含まれているはずであるが、少なくとも1 MHz程度で横軸の周波数軸が保証できるといえよう。

#### まとめ

SSB光変調器と光周波数コムを用いた高分解分光システムを提案した。光周波数コムを構成するピーク強度は独立にヘテロダイン検波法を用いて計測して、計測範囲3.9 THz (1530~1560 nm)をH<sup>13</sup>C<sup>14</sup>Nガスを測定試料として確認した。本システムは約1 MHzまたはそれ以上の分光分解能と絶対周波数計測を可能とする。

#### 謝辞

本研究の遂行にあたり、多大なるご支援とご協力を頂いた東京農工大学大学院工学研究院黒川隆志名誉教授に厚く御礼申し上げます。

## 参考文献

- [1] H. Sasada and K. Yamada, "Calibration lines of HCN in the 1.5- $\mu\text{m}$  region", *Appl. Opt.*, **29**, 3535(1990).
- [2] S. Kinugawa and H. Sasada, "Wavenumber measurement of the 1.5- $\mu\text{m}$  band of acetylene by semiconductor laser spectrometer", *Jpn. J. Appl. Phys.*, **29**, 611(1990).
- [3] W. C. Swann, and S. L. Gilbert, "Line centers, pressure shift, and pressure broadening of 1530-1560 nm hydrogen cyanide wavelength calibration lines", *J. Opt. Soc. Am.*, **B 22**, 1749(2005).
- [4] G. P. Barwood, P. Gill, and W. R. C. Rowley, "Frequency measurements on optically narrowed Rb-stabilised laser diodes at 780 nm and 795 nm", *Appl. Phys.*, **B 53**, 142(1991).
- [5] P. A. Jungner, S. Swartz, M. Eickhoff, Y. Jun, J. L. Hall, and S. Waltman, "Absolute frequency of the molecular iodine transition R(56)32-0 near 532 nm", *IEEE Trans. Instrum. Meas.*, **44**, 151(1995).
- [6] A. Onae, T. Ikegami, K. Sugiyama, F.-L. Hong, K. Minoshima, H. Matsumoto, K. Nakagawa, M. Yoshida, and S. Harada, "Optical frequency link between an acetylene stabilized laser at 1542 nm and an Rb stabilized laser at 778 nm using a two-color mode-locked fiber laser", *Opt. Commun.*, **183**, 181(2000).
- [7] K. Nakagawa, M. de Labachellerie, Y. Awaji, and M. Kourogi, "Accurate optical frequency atlas of the 1.5- $\mu\text{m}$  bands of acetylene", *J. Opt. Soc. Am.*, **B 13**, 2708(1996).
- [8] H. S. Moon, W.-K. Lee, and H.-S. Suh, "Absolute-frequency measurement of an acetylene-stabilized laser locked to the P(16) transition of  $^{13}\text{C}_2\text{H}_2$  using an optical-frequency comb", *IEEE Trans. Instrum. Meas.*, **56**, 509(2007).
- [9] J. Jiang, J. E. Bernard, A. A. Madej, A. Czajkowski, S. Drissler, and D. J. Jones, "Measurement of acetylene-d absorption lines with a self-referenced fiber laser frequency comb", *J. Opt. Soc. Am.*, **B 24**, 2727(2007).
- [10] J. D. Jost, J. L. Hall, and J. Ye, "Continuously tunable, precise, single frequency optical signal generator", *Opt. Express*, **10**, 515(2002).
- [11] T. R. Schibli, K. Minoshima, F.-L. Hong, H. Inaba, Y. Bitou, A. Onae, and H. Matsumoto, "Phase-locked widely tunable optical single-frequency generator based on a femtosecond comb", *Opt. Lett.*, **30**, 2323(2005).
- [12] K. M. T. Yamada, A. Onae, F.-L. Hong, H. Inaba, H. Matsumoto, Y. Nakajima, F. Ito, and T. Shimizu, "High precision line profile measurements on  $^{13}\text{C}$  acetylene using a near infrared frequency comb spectrometer", *J. Mol. Spectrosc.*, **249**, 95(2008).
- [13] P. Del'Haye, O. Arcizet, M. L. Gorodetsky, R. Holzwarth, and T. J. Kippenberg, "Frequency comb assisted diode laser spectroscopy for measurement of microcavity dispersion", *Nat. Photon.*, **3**, 529(2009).
- [14] T. Shioda, T. Mori, T. Sugimoto, T. Yosuke, and T. Kurokawa, "High-resolution spectroscopy based on optical phase modulator and optical frequency comb", *Opt. Commun.*, **282**, 2909(2009).
- [15] T. Shioda, T. Mori, T. Sugimoto, Y. Tanaka, and T. Kurokawa, "1 MHz-resolution spectroscopy based on light frequency sweeping using a single-sideband optical modulator", *Jpn. J. Appl. Phys.*, **46**, 3626(2007).
- [16] T. Saitoh, S. Mattori, S. Kinugawa, K. Miyagi, A. Taniguchi, M. Kourogi, and M. Ohtsu, "Modulation characteristic of waveguide-type optical frequency comb generator", *IEEE J. Lightwave Technol.*, **16**, 824(1998).
- [17] I. Coddington, W. C. Swann, and N. R. Newbury, "Coherent multiheterodyne spectroscopy using stabilized optical frequency combs", *Phys. Rev. Lett.*, **100**, 013902(2008).
- [18] M. Kourogi, T. Enami, and M. Ohtsu, "A monolithic optical frequency comb generator", *IEEE Photon. Technol. Lett.*, **6**, 214(1994).
- [19] T. Okoshi, K. Kikuchi, and A. Nakayama, "Novel method for high resolution measurement of laser output spectrum", *Electron. Lett.*, **16**, 630(1980).
- [20] M. S. Taubman and J. L. Hall, "Cancellation of laser dither modulation from optical frequency standards", *Opt. Lett.*, **25**, 311(2000).



塩田 達俊

Tatsutoshi SHIODA

埼玉大学大学院 理工学研究科  
准教授  
博士 (工学)