

研究課題別評価書

1. 研究課題名

原子時計精度での超高分解能レーザー分光計測

2. 氏名

御園 雅俊

3. 研究のねらい

多原子分子の超高分解能レーザー分光による精密計測の重要性が高まっている。たとえば、環境ホルモン等による環境汚染が深刻な社会問題となっているが、多くの汚染物質については、その光化学的な研究はなされてはおらず、分解のメカニズムは未だ不明である。

このような環境汚染物質や生体分子の光化学的な性質を研究するためには、それらの物質の基礎となる基本的な多原子分子の分光学的性質を研究することがきわめて重要である。多原子分子の電子励起状態間の相互作用や解離のダイナミクスは、励起準位の微小なシフトや広がり、分裂等として現れるため、高分解能レーザー分光によってこれらを精密に計測する必要がある。

このような微小な効果の精密な計測において重要となるのが、優れた精度を持つ光波長の目盛、すなわち、波長標準(周波数標準)である。従来の波長標準データ集(アトラス)の分解能はドップラー効果によって制限されており、スペクトル線幅は数百MHz(相対精度 10^{-6})と広いため、高分解能スペクトルの解析には不十分であった。このため、我々は、精度約 3 MHz(相対精度 10^{-8})をもつアトラスを作成した。これは従来のアトラスの精度を2桁向上させたもので、現在では、海外、国内を問わず、高分解能分子分光の研究者に広く利用されている。しかしながら、多原子分子の電子励起状態におけるダイナミクスを詳細に研究するためには、1 MHz以下の極微小なシフトや広がり、分裂等をも測定する必要があり、このアトラスでもまだ不十分である。

一方で、現在、光周波数コムを利用した周波数標準の研究が進められている。この光周波数コムを利用すれば、優れた精度を持つ分光計測の目盛が得られ、高精度な分子スペクトル測定を行うことができる。

本研究では、光周波数コムと高分解能な分子分光法を組み合わせた分光システムを開発し、これを利用して分子の高分解能レーザー分光計測を行うことを目標とした。

4. 研究成果

本研究では、高精度な光周波数の目盛である光周波数コム、高分解能分子分光システムであるドップラーフリー2光子吸収分光システム、それらを組み合わせた光シンセサイザーの開発を行った。これらについて順に述べる。

(1) 高精度な光周波数の目盛 - 光周波数コムの開発

光周波数コムを光周波数の目盛として活用できることは、そのスペクトルを考えるとよく理解で

きる。光周波数コム出力光のスペクトルを図 1 に模式的に示す。光周波数コムは、この図のように一定間隔で並んだモードからなるので、これらのモードを光周波数の目盛として利用することができる。このためには、モードの間隔 (f_{rep}) と、オフセット周波数 (f_{CEO}) を安定化する必要がある。この安定化の基準として、GPS衛星に搭

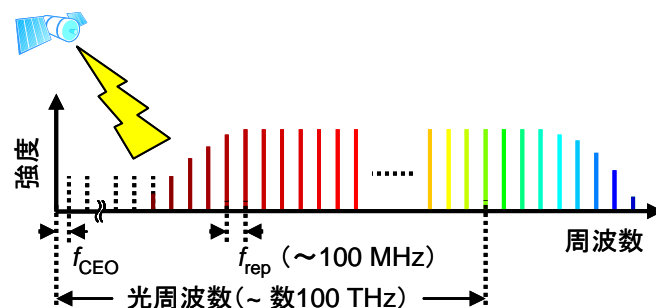


図1. 光周波数コムのスペクトル

載されたセシウム原子時計を利用した。これによって、原子時計から光周波数の精確な目盛を安価に得ることができる。

光周波数コムは、超短パルスレーザー、フォトニック結晶ファイバー、自己参照システムからなる。まず、超短パルスレーザーを独自に開発した。超短パルスレーザーのスペクトルをみると、繰り返し周波数に等しい間隔でモードが並んでおり、これを光周波数コムとして利用できる。しかしながら、レーザー出力そのままでは、スペクトルの広がり狭いので、これを広げる必要がある。このためにフォトニック結晶ファイバーを利用した。超短パルス光をフォトニック結晶ファイバーに通すと、モード間隔が一定のままスペクトルが広がっていく。このようにして、1 オクターブ以上にわたって広がった光周波数コムを得ることに成功した。

製作した光周波数コムの全景を図 2 に示す。写真奥が独自に開発したチタンサファイアレーザーで、パルス幅約 20 fs、繰り返し周波数 100 MHz である。光周波数コムでは周波数安定度が問題となるため、安定性に配慮した設計とした。とくに、レーザー共振器中には利得媒質であるチタンサファイア結晶以外の光学部品を設置せず、分散補償のためにチャープミラーを使用した。また、利得媒質であるチタンサファイア結晶やそのマウントを温度制御に配慮した設計とし、光学部品のマウントを振動の影響を受けにくい設計とした。写真中ほどにフォトニック結晶ファイバー、写真手前に光周波数コムを安定化するための自己参照システムが設置されている。実際の運用においては、これらの部分にもカバーを取り付けている。

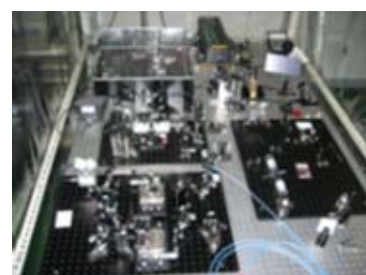


図2. 開発した光周波数コム

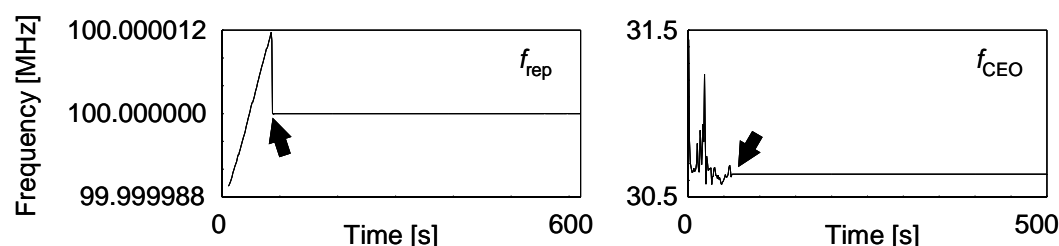


図3. f_{rep} と f_{CEO} の時間変化

製作した光周波数コム f_{rep} と f_{CEO} を安定化した際の時間変化を図 3 に示す。いずれも、安定化開始前は周波数が変動しているが、安定化開始後は周波数の変化が抑えられていることが分かる。以上に示したように、光周波数コムを製作し、その安定化に成功した。

(2) 超高分解能レーザー分光システム - ドップラーフリー2光子吸収分光システム

気体分子の分光においては、その運動に起因するドップラー効果によってスペクトル幅が広がってしまい、分解能に制限が生じる。本研究では、この制限を受けず、量子力学的限界まで分解能を高めることのできる、ドップラーフリー2光子吸収分光システムを開発した。製作したシステムを図 4 に示す。

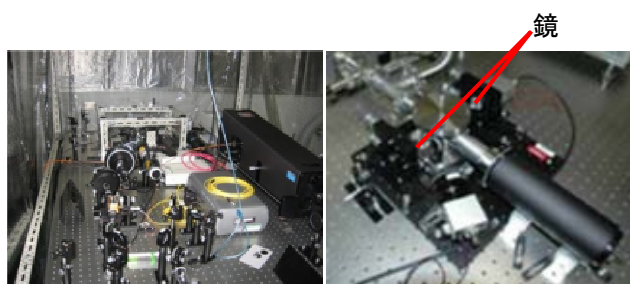


図4. ドップラーフリー2光子吸収分光システム。
(a) 全景 (b) 光共振器周辺

この分光法では、2枚の鏡で構成された光共振器内でレーザー光を往復させることによってドップラー効果を相殺する。測定の際には常に共鳴条件が保たれる必要があるため、これを行う安定化システムを製作した。この光共振器内の光強度と、システムで生成される誤差信号を図 5 に示す。この誤差信号を、光共振器を構成する鏡の1つに取り付けたピ

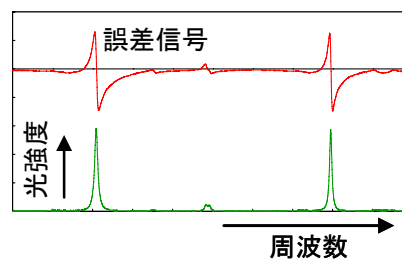


図5. ドップラーフリー2光子吸収分光システムの光共振器内の光強度と誤差信号

エゾ素子に帰還することによって、常に共鳴条件を保つことに成功した。以上述べたように、ドップラーフリー2光子吸収分光システムの開発に成功した。

(3) 光シンセサイザーの開発

光シンセサイザーは、光周波数コムを利用して、レーザー分光用の光源の周波数を制御するシステムである。上に述べたように、製作した光周波数コムの各モードの周波数は安定化されている。この各モードを光周波数の基準として、分光光源の周波数を掃引する。

このためには、光周波数コムの出力光と分光光源の出力光の周波数差を制御すれば良い。これらの光を重ねて測定するとビートが観測されるので、このビート周波数(f_{beat})を制御する。本研究においては、図 6 に示すように、このビートの測定に成功した。

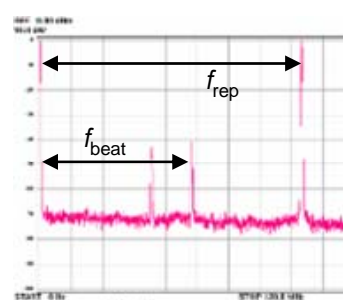


図6. 光周波数コムと分光光源とのビート

さらに、光シンセサイザーを広い周波数範囲にわたって掃引する際、 f_{beat} が 0 , $f_{\text{rep}}/2$, f_{rep} 付近となると、ビート成分をフィルターで取り出すことができなくなる(図 7(a))。本研究では、音響光学変調器を利用して分光光源の周波数をシフトさせるシステムを開発

した。これによって、 f_{beat} の値によらずビート成分をフィルターで取り出すことができるようになった(図 7(b))。

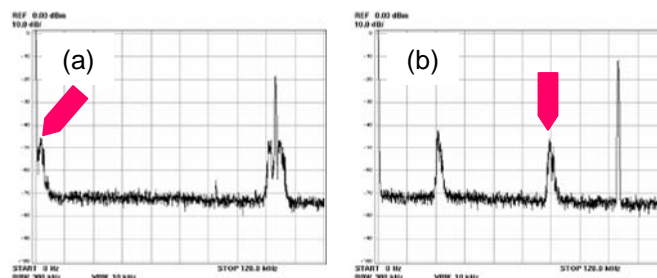


図7. 光周波数コムと分光光源とのビート。(a) $f_{\text{beat}} \sim 0$ の場合。(b) 音響光学変調器で周波数シフトさせた場合。

5. 自己評価

本研究の目的は、光周波数コムを利用した超高分解能分光計測システムを製作すること、および、それを使用して実際に分子分光を行うことである。

まず、分光計測システムの製作については、光周波数コムおよびドップラーフリー2光子吸収分光システムの開発に成功し、両者を組み合わせた光シンセサイザーの完成にあと一歩のところまで迫ることができた。これを完成させるために、原理的な問題は既にあるといえるが、電氣的・機械的雑音の除去を地道に続けていく必要がある。

分光計測システムを完成させることができなかったため、分子分光を行うことができなかった点は残念であった。しかし、細部に至るまで準備は済ませてあり、光シンセサイザーが完成次第、すぐに分子分光を行える体制は整っている。

また、研究期間中に、光周波数コムの研究に中心的な役割を果たした J. L. Hall と T. W. Haensch の両氏にノーベル物理学賞が与えられた。このためもあってか、比較的地味な分野であった精密分光法の研究が脚光を浴び、競争が激化することになった。この中にあって、本研究は、多原子分子の高分解能分光へ向けたシステム開発として、独自性を打ち出すことに成功したと考えている。

6. 研究総括の見解

多原子分子の分光学的研究は、環境問題や生命科学の基礎として極めて重要である。本研究は、ますます高精度化する分光計測に必要な優れた精度の波長目盛を持つ安定化した光周波数コムの実現を狙う。さらに、この光周波数コムと2光子吸収分光を組み合わせた超高分解能分光システムの実現をも狙う。主たる成果は次の2点である。

- ①GPS 衛星に搭載されたセシウム原子時計を利用したきわめて安定性の高い光周波数コムを完成させ1オクターブ以上にわたって周波数同定が可能な装置開発に成功した。
- ②光周波数コムとのドッキングを前提としたドップラーフリー2光子吸収分光システムを作成し、誤差信号による制御方法により、ドップラーフリー計測を可能とする共鳴条件を安定して維持することに成功した。

本研究の基本部分がそれぞれ完成したことは評価できる。研究成果は1件の原著論文にまとめられ、10件の学会発表で公表された。

今後、①安定化した周波数コムと②ドップラーフリー2光子吸収分光システムとのドッキングにより、さまざまな多原子分子の精密スペクトルの測定が可能となり、ダイナミクス解析の応用例が発表されることが期待される。GPSに搭載した原子時計を利用して手軽に高精度を得るというユニークな発想は実現しており、重要性がますます高くなる超高分解能レーザー分光の普及の促進に資するだろう。幅広い分野に応用可能な計測基盤技術として大きな貢献が期待できる。

7. 主な論文等

(A) さきがけの個人研究者が主導で得られた成果

- (1) 論文(原著論文)発表 なし
- (2) 特許出願 なし
- (3) 学会発表

口頭発表(国際)

- ・ M. Misono, M. Okubo, K. Dairiki, “Development of a system for high resolution spectroscopy with an optical frequency comb,” International Symposium on Molecular Spectroscopy 61st Meeting, (The Ohio State University, USA), 2006.

口頭発表(国内)

- ・ 御園雅俊, “超高分解レーザー分光のための光周波数コムの開発,” 九重分光学会関連夏季セミナー2005, 2005.
- ・ 御園雅俊, 大久保光士, 大力研介, “光周波数コムを利用した超高分解能レーザー分光システムの開発 II,” 第六回 分子分光研究会, 2006.
- ・ 御園雅俊, “光周波数コムを利用した二光子吸収分光システムの開発,” 平成 18 年度日本分光学会九州支部研究会, 2007.

ポスター発表(国内)

- ・ M. Misono, T. Todo and T. Kohmoto, “Stabilization of a single frequency light source in visible region by using optical frequency comb,” 平成 19 年度 日本分光学会年次講演会, 2007

(B) その他の主な成果

- (1) 論文(原著論文)発表

論文(国際)

- ・ M. Okubo, J. Wang, M. Baba, M. Misono, S. Kasahara and H. Kato, “Doppler-free two-photon excitation spectroscopy and the Zeeman effects of the S_1 $^1B_{1u}(v_{21}=1) \leftarrow S_0$ $^1A_g(v=0)$ band of naphthalene-d₈,” Journal of Chemical Physics, Vol. 122, No. 14, 144303 (2005).

(2)特許出願

なし