

光周波数コムを用いた高精度レーザー分光計の開発

渡邊 直登

周波数軸上に等間隔に並んだ櫛(comb)の歯状のスペクトルを持つ光周波数コムはレーザー周波数の広帯域な光周波数基準として開発された。光周波数コムを用いたレーザー分光計は、このような光コムの特徴を活かすことで、従来の分光計の周波数精度や分解能などの性能を著しく向上することが可能である。そのため、今後の精密分光技術の発展に重要な役割を果たすことが期待されている。本研究では光周波数コムを用いた高精度なレーザー分光計の開発を行い、非線形分光への発展と高精度分光の実現の2点の分光応用について研究を行った。

本研究では、初めに繰り返し周波数(325 MHz)が高いモード同期 Er ファイバーリングレーザーによる光周波数コムを開発した。モード同期 Er ファイバーリングレーザーによる光周波数コムは、メンテナンスが簡便で長期安定動作することなどから実用性に優れている。しかしながら繰り返し周波数は、一般的に 50~250 MHz 程度となるためモード次数の決定やビート信号の検出などの点で不利な点が残っている。また、繰り返し周波数が高いモード同期 Er ファイバーリングレーザーの周波数を自己参照法で安定化させる(光周波数コム)ためには、より高い出力パワーが必要となる。そのため本研究では、高強度なパワーを出力可能な2段の Er 添加光ファイバー増幅器(EDFA)を自作し、安定的に動作可能な高繰り返し周波数の光周波数コムを実現した。また、本研究のモード同期 Er ファイバーリングレーザーによる光周波数コムは、我々が知る中で最も高い繰り返し周波数を達成している。

本研究で行った1つ目の分光応用は、光周波数コムを用いた分光の非線形分光への拡張についてである。我々は、非線形分光の中でも特に2つの周波数の相関の有無を二次元プロットに示して調べる二次元相関分光に着目している。光周波数コムを用いた二次元相関分光は2017年9月に S. T. Cumdiff ら[1]により Rb 原子の同位体を区別することで初めて実証されたが、二次元相関分光の利点を特に発揮する分子ではまだ実現されていない。そのため我々は、光周波数コムを用いた分子の二次元相関分光の実現を目指している。我々は、二次元相関分光を分子の二重共鳴を利用して実現することを想定している。二重共鳴分光とは、準位を共有する2組の遷移間の飽和信号を観測する方法であり、複雑な分子の吸収線から特定の遷移のみを選択的に検出できる方法である。この方法の検出側の CW レーザー光(プローブ光)を光周波数コム光源(デュアルコム分光)に置き換えることで、高速かつ簡便に準位が検出可能になることを期待している。本研究では、この分光計を実現するために問題となる微弱な二重共鳴信号の高感度検出について取り組んだ。初めに、デュアルコム分光計の高感度測定を実現するために、繰り返し周波数(6.25 GHz)が高い電気光学変調器(EOM)型光周波数コムを用いたデュアルコム分光計を開発した。本手法は、高繰り返し周波数による感度向上に加え、デュアルコム分光計の実現を複雑化し

ている光位相同期の部分も不要とする手法である。本研究では、実際にアセチレン分子($^{12}\text{C}_2\text{H}_2$)の $\nu_1+\nu_3$ 振動バンドの観測を行い、12 ms の積算時間で 0.4 % の測定感度を達成した。この結果から、従来の Er ファイバー光周波数コムと比較して短時間で高感度測定が可能であることを確かめられた。次に、二重共鳴信号強度の評価や感度向上のために、開発した高繰り返し周波数の Er ファイバー光周波数コムを基準に光位相同期された 2 台の CW レーザーによるアセチレン分子($^{13}\text{C}_2\text{H}_2$)の二重共鳴分光を行った。その結果、 $\nu_1+\nu_2+\nu_4+\nu_5$ 振動バンドの P(10)の吸収線に現れる $\nu_1+\nu_3$ 振動バンドの P(10)の二重共鳴信号として 0.01%の信号が得られた。また、光周波数コムを基準に安定化することで積算時間の向上が可能となり、測定可能な感度として $1 \times 10^{-6} @ 100$ ms を達成した。

2 つ目の分光応用として、 ^{87}Rb 原子の Rydberg 準位の高精度分光を示した。主量子数が大きい Rydberg 状態に励起された中性原子は数 μm 以上に離れた原子間でも強い相関を持つことから、量子情報研究で注目されている。我々の研究室でも、Rydberg 状態に励起された ^{87}Rb 原子を用いた量子シミュレーションの実現に向けて研究を進めている。本研究では、広帯域なスペクトル範囲を高精度 ($< 12 \text{ kHz} @ 480 \text{ nm}, 1 \text{ s}$) に発生可能な光周波数シンセサイザーを開発し、 ^{87}Rb 原子の Rydberg 準位の初めての直接周波数測定を実現した。本研究の測定精度は 250 kHz 以下を達成し、従来の周波数精度[2]より 3 倍ほど精度を向上することができた。また、本研究で決定した主量子数 $n > 60$ の準位の報告も初めての結果である。

参考文献

- [1] B. Lomsadze, and S. T. Cundiff, *Science* **357**, 1389-1391 (2017).
- [2] M. Mack, F. Karlewski, H. Hattermann, S. Höckh, F. Jessen, D. Cano, and J. Fortágh, *Phys. Rev. A* **83**, 052515 (2011).