

論文の内容の要旨

論文題目 オフセットフリー光周波数コムの開発と
 固体精密分光への応用

氏 名 中村 卓磨

2000 年に革新的な光計測技術として誕生した光周波数コムはモード同期レーザーの精密制御によってもたらされる[1]。モード同期レーザーは繰り返し周波数 f_{rep} 毎に等間隔なパルス列を発生し、光周波数領域では f_{rep} 毎に等間隔な櫛状のスペクトルを持つ。この櫛構造を仮想的にゼロ周波数まで拡張した際の余りをオフセット周波数 f_0 と呼ぶ。この二つのパラメータ(自由度)を用いて、モード同期レーザーの発振周波数 f_{comb} は $f_{\text{comb}}=f_0+n\times f_{\text{rep}}$ と表せる (n は整数)。光周波数 f_{comb} を構成する f_0, f_{rep} がエレクトロニクスによる制御が可能なマイクロ波領域であったため、光周波数 f_{comb} が自由に制御可能になった。このことから制御されたモード同期レーザーは“光のものさし”と呼ばれる程、安定で信頼のおける光基準、すなわち“光周波数コム”となった。

光周波数コムは光源の開発と共に応用範囲を広げてきた。Er ファイバーコムによる一週間を超える長時間動作の実現は光原子時計を現実的に動作可能なアプリケーションにした[2,3]。また、10 W を超える高出力を実現出来る Yb ファイバーコムの誕生[4]は、光周波数コムの波長変換をより豊かなものにし、例えば CW レーザーの存在しない VUV 領域での精密分光を可能にした[5,6]。10-GHz Ti:Sapphire コムに代表される高繰り返しコムの発展[7]は、系外惑星探索等の天文分野[8]まで光周波数コムの裾野を広げる事に繋がっている。

私はコムの応用をさらに広げるために、コムをもっと簡単に扱いやすいものにする必要があると考えた。その一つが Offset-free コムである[9]。Offset-free コムは差周波発生をベースとしたコムであり、オフセット周波数 f_0 は受動的にキャンセルされる。このことからコムの式はさらに簡略化でき、 $f_{\text{comb}}=n\times f_{\text{rep}}$ とたった一つのパラメータで表せる。従来の Offset-free コムの大半は中赤外領域のコムを得る過程で副次的に生まれたもので、その性質の積極的活用は十分ではなかった[10]。原因としては、出力が弱いことと、高感度検出が難しい中赤外光である事が挙げられる。この問題を解決したのが私の開発した 1 μm 帯での Offset-free コムである。1 μm で発生させることで、高感度での検出や、Yb ファイバーアン

プでの増幅(1 W 超)を可能にした。このことから、Offset-free コムの光基準である CW レーザーへの高精度同期を初めて実現し、Offset-free コムが高精度コムになりうる事を実証できた[11]。

上記の Offset-free コムの開発により、煩雑なコム制御の簡略化が出来た。一方、残りの自由度である繰り返し周波数 f_{rep} は依然として、高度な制御系が必要になる。従来の方として、EOM(電気光学変調器)を用いた制御が主流であった[12]。しかし EOM は機械的共振により帯域を制限されることから、これを避けるために制御系が複雑になる事が多い。私はこれを解決するため、機械的共振の発生しない全く新しい光路長制御デバイスとして MOM(磁気光学変調器)を開発した。この変調器は円偏光におけるファラデー効果を利用している。ファラデー効果による光路長の変化は非常に小さいという欠点を持つが、私はスパンファイバーと呼ばれる磁場感度を持ちながら円偏光を保持するファイバー[13]によって、相互作用長を長くすることでこの問題を解決した。この MOM を用い、Yb ファイバーレーザーを光基準に高精度同期を行った。結果、機械共振を伴わない広帯域な制御が実現できた [14]。また、別の光路長変調デバイスとしてピエゾ素子が挙げられる。ピエゾ素子は様々なレーザーに簡便に組み込むことが出来る反射型のデバイスである一方、素子の機械的共振による帯域の制限は EOM よりも格段に厳しく、一般的には kHz レベルであった。そこで、私はピエゾ素子の複雑な機械的共振を取り除く数々のアイデアを生み出し、最終的に DC-500 kHz までフラットな周波数応答特性をもつピエゾシステムを開発する事に成功した。私はこのシステムを実際の制御に用い、ピエゾ素子として世界最高の実効帯域 500 kHz を実現できた[15]。開発した MOM またはピエゾ素子を用いる事によって、簡便かつ広帯域な繰り返し周波数 f_{rep} の制御を実現する事が出来た。

Offset-free コムを中心としたこれらの光源開発により、従来のファイバーコムよりも格段に扱いやすい光源を実現できた。これを土台にして、従来光源では扱いの難しい複雑な系である固体の物性測定へコムの応用を広げる事を目指した。従来のコムの応用の一つとして、比較的単純な系である原子の絶対周波数測定が挙げられる[16]。これは、原子のある遷移の中心値一点を定量的に評価するための応用であった。一方で複雑な系である固体へ応用を広げる事を考える。固体を測定する上で最も興味深い現象の一つとして、多体の相互作用が挙げられる。そういったものを測定するには遷移の中心値一点に限らず、そこにカップルした複雑な相互作用を定量的に評価する新たな手法が求められる。そこで私は絶対周波数測定を以前の“一点の測定”から“線の測定”へ拡張する事を考えた。すなわち、絶対周波数測定の発展系として、「絶対周波数スペクトル測定」を行い、そのスペクトル形状から新しい物理情報を取り出すという試みである。

上記の事を実現するための手段として、コムに同期した CW レーザーを絶対周波数を担保したまま広帯域に掃引する手法を用いた。従来のコムでこの様なシステムを開発している例が数件存在する[17-19]。しかし、通常のコムを用いた場合、二つのパラメータ f_0, f_{rep} の制御がお互いにクロストークを発生させるため、広帯域に繰り返し周波数を掃引しながら

らオフセット周波数の安定化を保つ必要がある事や、モードナンバーの特定がなる事から、システムが複雑になってしまう。一方で、私の開発し Offset-free コムは、オフセット周波数 f_0 が常にゼロに担保されているため、繰り返し周波数 f_{rep} を変化可能な最大限までスキャン範囲を拡大する事が出来、モードナンバーの特定も単純になる。つまり絶対周波数スペクトルを測定するのに最適なツールが本研究で開発した Offset-free コムであると言える。私は 1150 nm 付近の波長帯において 0.6 GHz 範囲で絶対周波数が担保されたまま CW レーザーを掃引する事に成功した。掃引範囲の最大値は共振器長変化に用いるピエゾ素子で制限される。本研究の構成では 3 GHz 程度帯域の絶対周波数スペクトルの取得が可能になる見積もりである。

このシステムを測定対象として固体であるダイヤモンドの NV (Nitrogen Vacancy) センターを選んだ。ダイヤモンドの NV センターは量子キュービット[20]や、生体イメージング[21]等、非常に幅広い分野に応用されている。特に量子キュービット応用においては、NV センター同士をエンタングルさせるために、NV 間の相互相関の測定が重要である [22]。また、本研究ではダイヤモンドの NV センターの絶対周波数を測定する事でダイヤモンドが固体周波数標準になり得るか探究するという事も重要な目的である。本研究で開発したシステムを用いて、ダイヤモンド NV センターの PLE(Photo Luminescence Emission)スペクトルの測定を行い、多体相互作用が顕著に表れた複雑なスペクトル形状を取得する事に成功した。一方で、スペクトルにおける周波数の絶対値の決定や、定量的な物理量を得るまでには至らなかった。この理由として、測定した NV センターの個数があまりに膨大(3000 個程度の見積もり)であったため、得られた複雑なスペクトルの解析が困難であった事が挙げられる。最後に私の研究を総括する。Offset-free コムと新しい繰り返し周波数制御の手法の実現により、非常に扱いやすい光周波数コムが実現できた。Offset-free コムに最も適した応用の一つとして固体の絶対周波数スペクトルの測定という固体物性への新しい応用を示し、それが実際に実現可能なシステムである事を実証した。また、このシステムを用いてダイヤモンド NV センターの分光を行い、固体特有の多体相互作用が反映されたスペクトルの取得に成功した。これらの結果は光周波数コムによる固体物性応用の新しい一步を踏み出すものであると考えている。

【参考文献】

- [1] S. A. Diddams, *et al.*, Phys. Rev. Lett. **84**, 5102–5105 (2000).
- [2] B. R. Washburn, *et al.*, Opt. Lett. **29**, 250–252 (2004).
- [3] H. Inaba, *et al.*, Opt Express **14**, 5223–5231 (2006).
- [4] T. R. Schibli, *et al.*, Nat. Photonics **2**, 355–359 (2008).
- [5] A. Cingöz, *et al.*, Nature **482**, 68–71 (2012).
- [6] A. Ozawa and Y. Kobayashi, Phys. Rev. A **87**, 22507 (2013).
- [7] A. Bartels, *et al.*, Science (80-.). **326**, 681–681 (2009).
- [8] T. Steinmetz, *et al.*, Science **321**, 1335–1337 (2008).

- [9] M. Zimmermann, *et al.*, Opt. Lett. **29**, 310–312 (2004).
- [10] C. Ern, *et al.*, Opt. Lett. **32**, 1138–1140 (2007).
- [11] T. Nakamura, *et al.*, Opt. Express **23**, 19376–19381 (2015).
- [12] D. D. Hudson, *et al.*, Opt. Lett. **30**, 2948–2950 (2005).
- [13] H. Huang, Appl. Opt. **36**, 6968 (1997).
- [14] T. Nakamura, *et al.*, Opt. Express **25**, 4994 (2017).
- [15] T. Nakamura, *et al.*, CLEO/Europe-EQEC Conference (2017)
- [16] T. Udem, *et al.*, Phys. Rev. Lett. **82**, 3568–3571 (1999).
- [17] J. D. Jost, *et al.* Opt. Express **10**, 515 (2002).
- [18] T. R. Schibli, *et al.*, Opt. Lett. **30**, 2323 (2005).
- [19] A. K. Mills, *et al.*, J. Opt. Soc. Am. B **26**, 1276 (2009).
- [20] N. Bar-Gill, *et al.*, Nat. Commun. **4**, 1743 (2013).
- [21] D. Le Sage, *et al.*, Nature **496**, 486–489 (2014).
- [22] F. Dolde, *et al.*, " Nat. Phys. **9**, 139–143 (2013).