

(19) 日本国特許庁(JP)

(12) 特許公報(B2)

(11) 特許番号

特許第6298654号  
(P6298654)

(45) 発行日 平成30年3月20日 (2018.3.20)

(24) 登録日 平成30年3月2日 (2018.3.2)

(51) Int. Cl.		F I			
<b>GO 1 J</b>	<b>9/04</b>	<b>(2006.01)</b>	GO 1 J	9/04	
<b>GO 2 F</b>	<b>2/02</b>	<b>(2006.01)</b>	GO 2 F	2/02	
<b>GO 2 F</b>	<b>1/11</b>	<b>(2006.01)</b>	GO 2 F	1/11	5 0 2
<b>GO 1 N</b>	<b>21/27</b>	<b>(2006.01)</b>	GO 1 N	21/27	Z

請求項の数 14 (全 18 頁)

(21) 出願番号 特願2014-39995 (P2014-39995)  
 (22) 出願日 平成26年2月28日 (2014.2.28)  
 (65) 公開番号 特開2017-78569 (P2017-78569A)  
 (43) 公開日 平成29年4月27日 (2017.4.27)  
 審査請求日 平成29年2月24日 (2017.2.24)

(73) 特許権者 504190548  
 国立大学法人埼玉大学  
 埼玉県さいたま市桜区下大久保255  
 (74) 代理人 110000877  
 龍華国際特許業務法人  
 (74) 代理人 100095485  
 弁理士 久保田 千賀志  
 (72) 発明者 塩田 達俊  
 埼玉県さいたま市桜区下大久保255 国立大学法人埼玉大学内  
 審査官 塚本 丈二

最終頁に続く

(54) 【発明の名称】 過渡吸収応答検出装置および過渡吸収応答検出方法

(57) 【特許請求の範囲】

【請求項1】

1 つまたは複数のポンプ光パルスを試料に照射して光励起すると同時に、プローブ光を前記試料に照射 ( i r r a d i a t e ) し、透過光または反射光の振幅および位相の少なくとも一方の時間的変化を測定することにより、前記試料の過渡吸収応答を測定する過渡吸収応答検出装置において、

光周波数コムを発生する光周波数コム源と、

前記光周波数コムを入射し、周波数軸上で、光周波数コムの縦モードの各々に位相変調、または位相変調および振幅変調を行うことで、前記光周波数コムを構成するパルス列の繰返し周波数を増大する光周波数コム変調器と、

前記光周波数コム変調器から出射された、パルス列の繰返し周波数が増大した前記光周波数コムをプローブ光として前記試料に照射するプローブ光照射系と、

前記ポンプ光パルスを、前記光周波数コム源が発生する光周波数コムを構成するあるパルスに同期するタイミングで、前記試料に照射し当該試料を光励起するポンプ光照射系と、

前記試料に照射された前記プローブ光の透過光または反射光を、過渡吸収応答光として前記スペクトル検出器に出射する検出光出射系と、

前記光周波数コム源が発生する光周波数コム、または、前記光周波数コム変調器が出射する光周波数コムに同期する光周波数コムを参照光としてスペクトル検出器に出射し、または当該同期する光周波数コムから参照光を生成し、この参照光をスペクトル検出器に出

射する参照光出射系と、

前記検出光出射系を介して入射した前記プローブ光の透過光または反射光および、前記参照光出射系から入射した参照光から、前記過渡吸収応答光の位相スペクトルまたはさらに振幅スペクトルを検出するスペクトル検出器と、  
を備えたことを特徴とする過渡吸収応答検出装置。

【請求項 2】

請求項 1 に記載の過渡吸収応答検出装置において、  
前記光周波数コム源が、光コム発生器およびコム間隔粗化器を備えていることを特徴とする過渡吸収応答検出装置。

【請求項 3】

請求項 2 に記載の過渡吸収応答検出装置において、  
前記ポンプ光パルスが、前記光コム発生器または前記コム間隔粗化器の出射光パルスから生成されまたは前記出射光パルスから選ばれ、または、  
前記ポンプ光パルスが、前記光コム発生器または前記コム間隔粗化器に同期して動作する光源から生成されることを特徴とする過渡吸収応答検出装置。

【請求項 4】

請求項 2 に記載の過渡吸収応答検出装置において、  
前記参照光出射系が前記光コム発生器、前記コム間隔粗化器または光周波数コム変調器から光周波数コムを入射し、または、前記光コム発生器、前記コム間隔粗化器または光周波数コム変調器に同期して光周波数コムを発生する光源から当該光周波数コムを入射する過渡吸収応答検出装置。

【請求項 5】

請求項 1 に記載の過渡吸収応答検出装置において、  
前記プローブ光照射系、前記検出光出射系および前記参照光出射系のそれぞれに波長変換器が備えられ、  
前記プローブ光照射系および前記検出光出射系のそれぞれに波長変換器が備えられ、  
前記プローブ光照射系および前記参照光出射系のそれぞれに波長変換器が備えられ、または、

前記検出光出射系および前記参照光出射系のそれぞれに波長変換器が備えられ、  
前記参照光は、前記検出光出射系を介して前記スペクトル検出器に入射される過渡吸収応答光の周波数と同期するように前記各波長変換器が調整されている過渡吸収応答検出装置。

【請求項 6】

請求項 1 に記載の過渡吸収応答検出装置において、  
前記前記プローブ光照射系が光強度変調器を備えた過渡吸収応答検出装置。

【請求項 7】

請求項 1 に記載の過渡吸収応答検出装置において、  
前記ポンプ光が前記光コム発生部または前記コム間隔粗化器から生成され、またはパルス発生器から生成されることを特徴とする過渡吸収応答検出装置。

【請求項 8】

請求項 1 に記載の過渡吸収応答検出装置において、  
前記ポンプ光出射系が波長変換器を備えた過渡吸収応答検出装置。

【請求項 9】

請求項 1 に記載の過渡吸収応答検出装置において、  
前記ポンプ光出射系が光強度変調器を備えた過渡吸収応答検出装置。

【請求項 10】

請求項 1 に記載の過渡吸収応答検出装置において、  
前記検出光出射系が光強度変調器を備えた過渡吸収応答検出装置。

【請求項 11】

請求項 1 に記載の過渡吸収応答検出装置において、

10

20

30

40

50

前記参照光出射系は、音響光学変調器を備え、当該音響光学変調器が、前記検出光出射系から取り出された過渡吸収応答光との間でビートを生じさせる周波数（過渡吸収応答光の周波数とわずかに異なる周波数）を有する光周波数コムを参照光として生成し、

前記スペクトル検出器は、前記参照光を入射し前記過渡吸収応答光と前記参照光とのビートを検出することで、前記過渡吸収応答光の位相スペクトルまたはさらに振幅スペクトルを検出する過渡吸収応答検出装置。

【請求項 1 2】

請求項 1 に記載の過渡吸収応答検出装置において、

前記スペクトル検出器の後段に、演算部を含み、

前記演算部は、前記スペクトル検出器により検出されたスペクトルを逆フーリエ変換して光電界ベクトルの時間変動を演算しその演算結果を出力する過渡吸収応答検出装置。

10

【請求項 1 3】

1 つまたは複数のポンプ光パルスを試料に照射して光励起すると同時に、プローブ光を前記試料に照射 ( i r r a d i a t e ) し、透過光または反射光の振幅および位相の少なくとも一方の時間的変化を測定することにより、前記試料の過渡吸収応答を測定する、以下のステップを含む過渡吸収応答検出方法。

光周波数コム発生ステップ：光周波数コム源から光周波数コムを発生する。

光周波数コム変調ステップ：前記光周波数コム発生ステップにおいて発生した前記光周波数コムを、光周波数コム変調器に入射し、周波数軸上で、光周波数コムの縦モードの各々に位相変調、または振幅・位相変調を行うことで、前記光周波数コムを構成するパルス列の繰返し周波数を増大する。

20

プローブ光照射ステップ：前記光周波数コム変調ステップにおいて変調した、パルス列の繰返し周波数が増大した前記光周波数コムをプローブ光として前記試料に照射する。

ポンプ光照射ステップ：光周波数コム発生ステップにおいて前記光周波数コム源が発生する光周波数コムを構成するあるパルスに同期するタイミングで、前記ポンプ光パルスを、前記試料に照射し当該試料を光励起する。

参照光出射ステップ：前記光周波数コム発生ステップにおいて発生した光周波数コムを入射し、当該光周波数コムを参照光としてスペクトル検出器に出射し、または当該光周波数コムから参照光を生成し当該参照光をスペクトル検出器に出射する。

スペクトル検出ステップ：前記プローブ光照射ステップにおいて前記試料に照射された前記プローブ光の透過光または反射光を、検出光出射系を介して入射するとともに、前記参照光出射系から参照光を入射し、これらの入射光から、前記過渡吸収応答光の位相スペクトルまたはさらに振幅スペクトルを検出する。

30

【請求項 1 4】

請求項 1 3 に記載の過渡吸収応答検出方法において、さらに以下のステップを含む過渡吸収応答検出方法。

演算ステップ：前記スペクトル検出ステップにおいて検出されたスペクトルを逆フーリエ変換して光電界ベクトルの時間変動を演算する。

【発明の詳細な説明】

【技術分野】

40

【0001】

本発明は、ポンプ光パルスを試料に照射して当該試料を光励起すると同時に、プローブ光を前記試料に照射し、透過光または反射光の光強度の時間的変化を測定することにより、過渡吸収応答を検出する過渡吸収応答検出装置および過渡吸収応答検出方法に関する。

本発明では、過渡吸収応答の検出（複数の周波数成分についての振幅および位相の少なくとも一方の測定）を、フェムト秒の分解能でかつ 1 回のプローブ光の照射期間内に行うことができる。

【背景技術】

【0002】

試料にポンプ光を照射して当該試料を光励起すると同時に、前記試料にプローブ光を照

50

射し、透過光の光強度の時間的変化を測定することにより、過渡吸収スペクトルを測定することができる。

【0003】

この種の技術として、以下の技術が知られている。

(a) 自己相関法：自己相関関数の計測を行うことで、簡便にパルス幅を計測できる。

(b) FROG法：参照パルスをゲート信号により時間分解計測することで、位相計測ができる（引用文献1参照）。

(c) SPIDER法：周波数をずらした自己位相干渉光を分光計測することで、位相計測ができる（引用文献2参照）。

(d) ポンプ・プローブ法：光路長で時間を走査することで、フェムト秒での時間分解ができる。

(e) パルスシンセサイジング法：25GHz間隔1THz帯域の光周波数コムの振幅・位相制御を行うことで、高速任意波形の生成が容易。

【先行技術文献】

【非特許文献】

【0004】

【非特許文献1】Daniel J. Kane, Rick Trebino, "Single-shot measurement of the intensity and phase of an arbitrary ultrashort pulse by using frequency-resolved optical gating," OPTICS LETTERS 18 (10) pp. 823-825 (1993).

【非特許文献2】C. Iaconis and I. A. Walmsley, "Spectral phase interferometry for direct electric-field reconstruction of ultrashort optical pulses," OPTICS LETTERS 23 (10) pp. 792-794 (1998).

【発明の開示】

【発明が解決しようとする課題】

【0005】

しかし、(a), (b), (d)の技術では、一回のポンプ光の照射により一連の過渡吸収応答を測定することができない。(c)の技術では、位相計測ができるもののフェムト秒の時間分解ができない。

【0006】

図17にポンプ・プローブ法を実施するための過渡吸収応答検出装置の原理図を示す。

図17の過渡吸収応答検出装置9では、光源91から、レーザ光が出射され、レーザ光はプローブ光照射系92からプローブ光PRとして試料SMP Lに照射される。

一方、ポンプ光P(k)は、試料SMP Lに繰り返し照射され、試料SMP Lの過渡吸収応答は、振幅位相検出装置93により検出される。

振幅位相検出装置93は、過渡吸収応答が収束するまでの間に、電気回路の動作速度が遅いため（動作速度が追いつかないため）、複数回の検出をすることができない。

【0007】

したがって、振幅位相検出装置93は光源91からの同期信号に基づく検出タイミングT(1), T(2), T(3), ...でサンプリングを行わざるを得ない。

ここで、図17では、検出タイミングT(k)はポンプ光P(k)よりも $k \times dt$ 遅れるように設定されている。これにより、一回のポンプ光の照射について擬似的に複数回の検出をすることができる。

しかし、特に、不可逆的な過渡吸収応答を検出する場合には、上記の擬似的な複数回の検出すら不可能となる。

本発明の目的は、過渡吸収応答の測定（複数の周波数成分についての振幅および位相の

10

20

30

40

50

少なくとも一方の測定)を、プローブ光の1ショット(一連のパルス照射している狭い時間幅)の期間内に行うことができる過渡吸収応答検出装置および過渡吸収応答検出方法を提供することにある。

【課題を解決するための手段】

【0008】

本発明は、以下を要旨とする。

(1)

1つまたは複数のポンプ光パルス(optical pump pulse (or pulses))を試料に照射して光励起すると同時に、プローブ光を前記試料に照射(irradiate)し、透過光または反射光の振幅および位相の少なくとも一方の時間的変化を測定することにより、前記試料の過渡吸収応答を測定する過渡吸収応答検出装置において、

光周波数コムを発生する光周波数コム源と、

前記光周波数コムを入射し、周波数軸上で、光周波数コムの縦モードの各々に位相変調、または位相変調および振幅変調を行うことで、前記光周波数コムを構成するパルス列の繰返し周波数を増大する光周波数コム変調器と、

前記光周波数コム変調器から出射された、パルス列の繰返し周波数が増大した前記光周波数コムをプローブ光として前記試料に照射するプローブ光照射系と、

前記ポンプ光パルスを、前記光周波数コム源が発生する光周波数コムを構成するあるパルスに同期するタイミングで、前記試料に照射し当該試料を光励起するポンプ光照射系と

、前記試料に照射された前記プローブ光の透過光または反射光を、過渡吸収応答光として前記スペクトル検出器に出射する検出光出射系と、

前記光周波数コム源が発生する光周波数コム、または、

前記光周波数コム変調器が出射する光周波数コム、

に同期する光周波数コムを参照光としてスペクトル検出器に出射し、または当該同期する光周波数コムから参照光を生成し、この参照光をスペクトル検出器に出射する参照光出射系と、

前記検出光出射系を介して入射した前記プローブ光の透過光または反射光および、前記参照光出射系から入射した参照光から、前記過渡吸収応答光の位相スペクトルまたはさらに振幅スペクトルを検出するスペクトル検出器と、  
を備えたことを特徴とする過渡吸収応答検出装置。

【0009】

(2)

(1)に記載の過渡吸収応答検出装置において、

前記光周波数コム源が、光コム発生器およびコム間隔粗化器を備えていることを特徴とする過渡吸収応答検出装置。

【0010】

(3)

(2)に記載の過渡吸収応答検出装置において、

前記ポンプ光パルスが、前記光コム発生器または前記コム間隔粗化器の出射光パルスから生成されまたは前記出射光パルスから選ばれ、または、

前記ポンプ光パルスが、前記光コム発生器または前記コム間隔粗化器に同期して動作する光源から生成されることを特徴とする過渡吸収応答検出装置。

【0011】

(4)

(2)に記載の過渡吸収応答検出装置において、

前記参照光出射系が前記光コム発生器、前記コム間隔粗化器または光周波数コム変調器から光周波数コムを入射し、または、前記光コム発生器、前記コム間隔粗化器または光周波数コム変調器に同期して光周波数コムを発生する光源から当該光周波数コムを入射する

10

20

30

40

50

過渡吸収応答検出装置。

【0012】

(5)

(1)に記載の過渡吸収応答検出装置において、  
前記プローブ光照射系、前記検出光出射系および前記参照光出射系のそれぞれに波長変換器が備えられ、

前記プローブ光照射系および前記検出光出射系のそれぞれに波長変換器が備えられ、  
前記プローブ光照射系および前記参照光出射系のそれぞれに波長変換器が備えられ、または、

前記検出光出射系および前記参照光出射系のそれぞれに波長変換器が備えられ、

前記参照光は、前記検出光出射系を介して前記スペクトル検出器に入射される過渡吸収応答光の周波数と同期するように前記各波長変換器が調整されている過渡吸収応答検出装置。

10

【0013】

(6)

(1)に記載の過渡吸収応答検出装置において、

前記前記プローブ光照射系が光強度変調器を備えた過渡吸収応答検出装置。

【0014】

(7)

(1)に記載の過渡吸収応答検出装置において、

前記ポンプ光が前記光コム発生部または前記コム間隔粗化器から生成され、またはパルス発生器から生成されることを特徴とする過渡吸収応答検出装置。

20

【0015】

(8)

(1)に記載の過渡吸収応答検出装置において、

前記ポンプ光出射系が波長変換器を備えた過渡吸収応答検出装置。

【0016】

(9)

(1)に記載の過渡吸収応答検出装置において、

前記ポンプ光出射系が光強度変調器を備えた過渡吸収応答検出装置。

30

【0017】

(10)

(1)に記載の過渡吸収応答検出装置において、

前記検出光出射系が光強度変調器を備えた過渡吸収応答検出装置。

【0018】

(11)

(1)に記載の過渡吸収応答検出装置において、

前記参照光出射系は、音響光学変調器を備え、当該音響光学変調器が、前記検出光出射系から取り出された過渡吸収応答光との間でビートを生じさせる周波数(過渡吸収応答光の周波数とわずかに異なる周波数)を有する光周波数コムを参照光として生成し、

前記スペクトル検出器は、前記参照光を入射し前記過渡吸収応答光と前記参照光とのビートを検出することで、前記過渡吸収応答光の位相スペクトルまたはさらに振幅スペクトルを検出する過渡吸収応答検出装置。

40

【0019】

(12)

(1)に記載の過渡吸収応答検出装置において、

前記スペクトル検出器の後段に、演算部を含み、

前記演算部は、前記スペクトル検出器により検出されたスペクトルを逆フーリエ変換して光電界ベクトルの時間変動を演算しその演算結果を出力する過渡吸収応答検出装置。

【0020】

50

## 《発明の作用》

本発明では、光周波数コム源は、所定コム周波数間隔の周波数成分を有する所定時間間隔のパルス列として発生する。

光周波数コム源により発生した光周波数コムは、光周波数コム変調器に入射される。

光周波数コム変調器は、周波数軸上で、光周波数コムの縦モードの各々に位相変調、または振幅・位相変調を行うことで、前記光周波数コムを構成するパルス列の繰返し周波数を増大する。

ここで、繰返し間隔は、フェムト秒のオーダーとされ、過渡吸収応答検出の時間分解能が高められる。

光周波数コム変調器により変調された、パルス列の繰返し周波数が増大した光周波数コムは、プローブ光照射系を介してプローブ光として試料に照射される。

ポンプ光照射系においては、光周波数コム源が発生する光周波数コムを構成するあるパルスに同期するタイミングでポンプ光パルスが、試料に照射され、試料が光励起する。

参照光出射系においては、光周波数コム源が発生する光周波数コムを入射し、当該光周波数コムを参照光としてスペクトル検出器に出射し、または当該光周波数コムから参照光を生成し当該参照光をスペクトル検出器に出射する。

スペクトル検出器では、ポンプ光パルスにより励起された試料に照射されたプローブ光の透過光または反射光を、検出光出射系を介して入射する。これとともに、参照光出射系から参照光を入射する。

そして、これらの入射光から、過渡吸収応答光の位相スペクトルまたはさらに振幅スペクトルを検出する。

演算器では、スペクトル検出器において検出されたスペクトルを逆フーリエ変換して光電界ベクトルの時間変動を演算する。

## 【0021】

以上のようにして、本発明では、1つまたは複数のポンプ光パルスを試料に照射して光励起すると同時に、プローブ光を前記試料に照射 ( i r r a d i a t e ) し、透過光または反射光の振幅および位相の少なくとも一方の時間的変化を測定することにより、前記試料の過渡吸収応答が測定される。

## 【発明の効果】

## 【0022】

過渡吸収応答の測定 ( 複数の周波数成分についての振幅および位相の少なくとも一方の測定 ) を、ポンプ光パルスの1回の照射期間内に、フェムト秒の時間分解で行うことができる。

特に、フェムト秒時間分解での波形計測により、光触媒や高分子重合反応の不可逆反応の素過程の追跡も可能となる。

素過程の解析が

## 【図面の簡単な説明】

## 【0023】

【図1】図1は、本発明の過渡吸収応答検出装置の基本構成図である。

【図2】図2は、光周波数コム変調器から出射された光周波数コムの各モードの位相を示す説明図である。図2(A)は周波数コムの縦モードの位相を表すグラフである。図2(B)は周波数コムの縦モードの振幅を表すグラフである。

【図3】図3は、光周波数コム光源が光コム発生器とコム間隔粗化器とからなる過渡吸収応答検出装置の説明図である。

【図4】図4は、参照光が光コム発生器またはコム間隔粗化器から生成される過渡吸収応答検出装置の説明図である。

【図5】図5は、ポンプ光出射系が光強度変調器を備えた過渡吸収応答検出装置の説明図である。

【図6】図6は、ポンプ光出射系が光強度変調器と波長変換器を備えた過渡吸収応答検出装置の説明図である。

10

20

30

40

50

【図 7】図 7 は、プローブ光照射系と検出光出射系のそれぞれが波長変換器を備えた過渡吸収応答検出装置の説明図である。

【図 8】図 8 は、プローブ光照射系と参照光出射系のそれぞれに波長変換器が備えられた過渡吸収応答検出装置の説明図である。

【図 9】図 9 は、検出光出射系と参照光出射系のそれぞれに波長変換器が備えられた過渡吸収応答検出装置の説明図である。

【図 10】図 10 は、スペクトル検出器がヘテロダイン検出を行う、アレイ導波路を含む過渡吸収応答検出装置の説明図である。

【図 11】図 11 は本発明におけるコム間隔粗化器の具体例を示す図である。

【図 12】図 12 は、光周波数コム変調器の具体例を示す図である。図 12 (A) は 2 つの AWG を含む非反射型の光周波数コム変調器を示す図である。図 12 (B) は 1 つの AWG とミラーとを含む反射型の光周波数コム変調器を示す図である。

10

【図 13】図 13 は、ヘテロダイン検出処理を各周波数について同時に行うためのスペクトル検出器の具体例を示す図である。

【図 14】図 14 は、ヘテロダイン検出処理を各周波数について順次に行う、2 つの AWG を含む非反射型のスペクトル検出器を示す図である。

【図 15】図 15 は、ヘテロダイン検出処理を各周波数について順次に行う、1 つの AWG とミラーとを含む反射型のスペクトル検出器を示す図である。

【図 16】図 16 は、本発明の過渡吸収応答検出方法を示すフローチャートである。

【図 17】図 17 は、従来のポンプ - プローブを用いた過渡吸収応答の測定装置の原理説明図である。

20

【発明を実施するための形態】

【0024】

図 1 は本発明の一実施形態を示す説明図である。

図 1 において、過渡吸収応答検出装置 1 A は、光周波数コム源 1 1 と、光周波数コム変調器 1 2 と、プローブ光照射系 1 3 と、ポンプ光照射系 1 4 と、検出光出射系 1 5 と、参照光出射系 1 6 と、スペクトル検出器 1 7 と、演算部 1 8 と、出力部 1 9 とを備えている。

【0025】

光周波数コム源 1 1 は、光周波数コム CMB を発生する。

30

図 1 では、光周波数コム源 1 1 は、コム間隔が 200 GHz で、5 ps 間隔のパルス列から構成される光周波数コム CMB を出射している。

なお、後述するが、コム間隔が 200 GHz で、5 ps 間隔のパルス列から構成される光周波数コムは、図 3 にも記載されているように、光コム発生器 1 1 1 が発生するコム間隔が 25 GHz、40 ps 間隔のパルス列から生成することができる。

【0026】

光周波数コム変調器 1 2 は、光周波数コム源 1 1 から光周波数コム CMB を入射し、光周波数コム CMB に対して位相変調、または振幅・位相変調を行うとともに、光周波数コム CMB を構成するパルス列の繰返し周波数を増大する。

図 1 では、光周波数コム変調器 1 2 により、5 ps 間隔のパルス列は、繰返し周波数が 312.5 fs のパルス列に変換される。

40

【0027】

図 2 (A) は光周波数コム変調器 1 2 から出射された周波数コムの縦モードの位相を表すグラフである。

図 2 (B) は光周波数コム変調器 1 2 から出射された周波数コムの縦モードの振幅 (縦軸 I は強度 (Intensity)) を表すグラフである。

図 2 (A) に示すように、変調後の周波数コムの縦モードの位相は非均一であり、図 2 (B) に示すように、変調後の周波数コムの縦モードの振幅も非均一である。周波数コムを構成するパルス列は、光周波数コム変調器 1 2 により上記の変調を受けることで、上述したように周波数が 312.5 fs のパルス列に変換される。

50



## 【 0 0 2 8 】

プローブ光照射系 1 3 は、光周波数コム変調器 1 2 から出射された、パルス繰返し周波数が増大した光周波数コムをプローブ光として試料 S M P L に照射される。この光周波数コムのコム間隔は 2 0 0 G H z であり、光周波数コムを構成するパルス列の時間間隔は 3 1 2 . 5 f s である。

ポンプ光照射系 1 4 は、ポンプ光パルスを試料 S M P L にショットし試料 S M P L を光励起する。

ポンプ光照射系 1 4 は、光周波数コム源 1 1 から、2 5 G H z の同期信号を受け取り、光周波数コム源 1 1 が生成する信号に同期するポンプ光パルス ( 2 5 G H z に同期する信号 ) を生成する。

10

## 【 0 0 2 9 】

検出光出射系 1 5 は、試料 S M P L に照射されたプローブ光の透過光または反射光を、過渡吸収応答光 ( 検出光 ) として取り出す。

図 1 では、検出光出射系 1 5 に、過渡吸収応答光の時間軸波形のグラフおよび周波数軸波形のグラフが示されている。

周波数軸波形のグラフで、注視すべきことは、2 0 0 G H z 間隔のパルス間にサイドバンドが表れていることである。また、図 1 では、振幅や位相が有限の値であるサイドバンドが示されているが、振幅や位相がゼロの値としてサイドバンドに表れることがある ( 見かけ上、サイドバンドは表れない ) 、ということにも注意されたい。

## 【 0 0 3 0 】

20

参照光出射系 1 6 は、検出光出射系により取り出された過渡吸収応答光の周波数と同期し、当該周波数とわずかに異なる周波数の光周波数コムを参照光として生成しこれを、当該過渡吸収応答光とともにスペクトル検出器 1 7 に入射する。

スペクトル検出器 1 7 は、過渡吸収応答光と参照光とのビートを検出することで、過渡吸収応答光の位相またはさらに振幅を検出する。

本発明では、図 1 3 および図 1 4 において後述するように、過渡吸収応答光 ( 検出光 ) と参照光とのビートを測定することで、光周波数コムの縦モードのコム要素に含まれている、位相情報および振幅情報の過渡吸収応答による変化を測定することができる。

## 【 0 0 3 1 】

演算部 1 8 は、スペクトル検出器 1 7 により検出された位相スペクトルおよび振幅スペクトルを逆フーリエ変換して光電界ベクトルの時間変動を演算しその演算結果を出力する。

30

出慮部 1 9 は、演算結果を受け取り、データ出力、画像出力等の適宜の形態で、演算結果を加工等して出力することができる。

## 【 0 0 3 2 】

図 3 は、光周波数コム光源 1 1 が光コム発生器 1 1 1 とコム間隔粗化器 1 1 2 とからなる過渡吸収応答検出装置 1 B の説明図である。

光コム発生器 1 1 1 は、コム間隔が 2 5 G H z 、4 0 p s 間隔のパルス列からなる光周波数コムを発生し、コム間隔粗化器 1 1 2 が光周波数コムを、2 0 0 G H z で、5 p s 間隔のパルス列から構成される光周波数コムに変換する。

40

## 【 0 0 3 3 】

図 4 は、ポンプ光および参照光が、ポンプ光を光コム発生器 1 1 1 の出射部からから取得される過渡吸収応答検出装置 1 の説明図である。

ポンプ光は、光コム発生器 1 1 1 の出射側から取得する他、コム間隔粗化器 1 1 2 の出射側から取得することもできる。

また、参照光は、光コム発生器 1 1 1 の出射側から取得する他、コム間隔粗化器 1 1 2 の出射側、さらに光周波数コム変調器 1 2 の出射側から取得することもできる。

図示はしないが、ポンプ光出力系 1 4 が、ポンプ光発生器を備えることができる。この場合には、ポンプ光発生器は、光コム発生器 1 1 1 またはコム間隔粗化器 1 1 2 と同期してポンプ光を発生することができる。

50

図示はしないが、参照光出射系 1 6 が、参照光発生器を備えることができる。この場合には、参照光発生器は、光コム発生器 1 1 1、コム間隔粗化器 1 1 2、光周波数コム変調器 1 2 と同期して参照光を発生することができる。

【 0 0 3 4 】

図 5 は、ポンプ光出射系 1 4 が光強度変調器 1 4 1 を備えた過渡吸収応答検出装置 1 D の説明図である。

光強度変調器 1 4 1 は、ポンプ光のパルス列から、一つのパルスのみを取り出して出射することができる。

【 0 0 3 5 】

図 6 は、ポンプ光出射系 1 4 が光強度変調器 1 4 1 と波長変換器 1 4 2 とを備えた過渡吸収応答検出装置 1 E の説明図である。

波長変換器 1 4 2 は、ポンプ光の中心周波数を、 $f_0$  から  $f_{c1}$  にシフトすることができる（図 6 参照）。これにより、試料 S M P L には、励起に適切な周波数のポンプ光が照射される。

なお、図 6 では説明の便宜上、ポンプ光出射系 1 4 が光強度変調器 1 4 1 を備えているが、ポンプ光出射系 1 4 は光強度変調器 1 4 1 を備えなくてもよい。

【 0 0 3 6 】

図 7 は、プローブ光照射系 1 3 が波長変換器 1 3 1 を備え、検出光出射系 1 5 が波長変換器 1 5 1 を備えた過渡吸収応答検出装置 1 F の説明図である。

波長変換器 1 3 1 は、光周波数コム変調器 1 2 から出射された光周波数コムの中心周波数を、 $f_0$  から  $f_{c1}$  にシフトすることができる。これにより、試料 S M P L には、過渡吸収応答に適切な周波数  $f_{c1}$  のプローブ光が照射される。波長変換器 1 5 1 は中心周波数を  $f_{c1}$  から  $f_0$  に戻す。

ポンプ光のエネルギーは、プローブ光のエネルギーよりも高く設定される。

したがって、プローブ光照射系 1 3 が波長変換器 1 3 1 を備え、プローブ光が短い波長側に変換されるときは、図 7 に示すようにポンプ光出射系 1 4 には波長変換器 1 4 2 が必要となる。

図 7 では説明の便宜上、ポンプ光出射系 1 4 が光強度変調器 1 4 1 を備えているが、ポンプ光出射系 1 4 は光強度変調器 1 4 1 を備えなくてもよい。

【 0 0 3 7 】

図 8 は、プローブ光照射系 1 3 に波長変換器 1 3 1 が備えられ、参照光出射系 1 6 に波長変換器 1 6 1 が備えられた過渡吸収応答検出装置 1 G の説明図である。

図 8 では、波長変換器 1 3 1 は、光周波数コム変調器 1 2 から出射された光周波数コムの中心周波数を、 $f_0$  から  $f_{c1}$  にシフトすることができる。これにより、試料 S M P L には、過渡吸収応答に適切な周波数  $f_{c1}$  のプローブ光が照射される。

波長変換器 1 6 1 は、光周波数コム源 1 1 が発生する光周波数コムの中心周波数を  $f_0$  から  $f_{c1}$  にシフトすることができる。

スペクトル検出器 1 7 は、プローブ光照射系 1 3 と、参照光出射系 1 6 とから同一の中心周波数  $f_{c1}$  の光周波数コムを入射することができる。

なお、図 8 では説明の便宜上、ポンプ光出射系 1 4 が光強度変調器 1 4 1 を備えているが、ポンプ光出射系 1 4 は光強度変調器 1 4 1 を備えなくてもよい。

【 0 0 3 8 】

図 9 は、検出光出射系 1 5 に波長変換器 1 5 1 が備えられ、参照光出射系 1 6 に波長変換器 1 6 1 が備えられた過渡吸収応答検出装置 1 H の説明図である。

図 9 では、波長変換器 1 5 1 は、試料 S M P L から出射された光周波数コムの中心周波数を、 $f_0$  から  $f_{c1}$  にシフトすることができる（図 9 参照）。

波長変換器 1 6 1 は、光周波数コム源 1 1 が発生する光周波数コムの中心周波数を  $f_0$  から  $f_{c1}$  にシフトすることができる（図 8 参照）。

これにより、スペクトル検出器 1 7 は、プローブ光照射系 1 3 と、参照光出射系 1 6 とから、処理に最適な周波数（同一の中心周波数  $f_{c1}$ ）光周波数コムを入射することができ

10

20

30

40

50

る。

なお、図9では説明の便宜上、ポンプ光出射系14が光強度変調器141を備えているが、ポンプ光出射系14は光強度変調器141を備えなくてもよい。

【0039】

図10は、スペクトル検出器7がヘテロダイン検出を行う過渡吸収応答検出装置1Iの説明図である。

図10では、スペクトル検出器7がアレイ導波路(AWG: Arrayed-Waveguide Grating)を含み、参照光出射系16が音響光学変調器162を含んでいる。

音響光学変調器162は、検出光出射系15から出射された過渡吸収応答光との間でビートを生じさせる周波数(過渡吸収応答光の周波数とわずかに異なる周波数)を有する光周波数コムを参照光として生成する。なお、音響光学変調器162は、波長変換器161により代替できる。すなわち、波長変換器161が音響光学変調器162の機能を含むことができる。

スペクトル検出器7は、参照光を入射し過渡吸収応答光と参照光とのビートを検出することで、過渡吸収応答光の位相スペクトルまたはさらに振幅スペクトルを検出する。

スペクトル検出器17は、AWGにより構成することができる(後述する、図13参照)。

スペクトル検出器17は、たとえば、本願出願人の開発にかかる「二波長同時ヘテロダイン装置」を使用することができる。

演算部18は、スペクトル検出器17により検出された位相スペクトルと振幅スペクトルとを逆フーリエ変換することで、出力部19から逆フーリエ変換の演算結果(たとえば、画像データ)を取り出すことができる。

【0040】

図11はコム間隔粗化器112をカラーレスAWGにより構成した例を示す図である。

【0041】

図12は光周波数コム変調器12をAWGにより構成した例を示す図である。

図12(A)に、2つのAWGを含む非反射型の光周波数コム変調器を示す。また、図12(B)に、1つのAWGとミラーとを含む反射型の光周波数コム変調器を示す。図12(B)では、光周波数コム変調器12は、AWGと強度変調器と、位相変調器とミラーと、強度変調器および位相変調器を制御するマルチチャンネル電流源とにより構成されている。

【0042】

図13は、ヘテロダイン検出処理を各周波数について同時に行うためのスペクトル検出器17の具体例を示す図である。

図13においては、検出光出射系14からの検出光と、参照光出射系16からの参照光とが2×3カプラを介して、位相検出部171および振幅検出部172に入射される。

位相検出部171は、PD(フォトダイオード)とLPF(ローパスフィルタ)と自乗回路とDCメータとからなる。

振幅検出部172は、PD(フォトダイオード)とパワーメータとからなる。

位相検出部171のAWG1の2つの入射ポートには、2×3カプラの2出射光路からの光が入射される。AWG1は、順次、検出光の周波数成分 $f_k$ 、 $f_{k+1}$ および参照光の周波数成分 $f_{k+}$ 、 $f_{k+1+}$ を第kの出力ポートから出力する。

たとえば、AWG1は、検出光の周波数成分 $f_1$ 、 $f_2$ および参照光の周波数成分 $f_{1+}$ 、 $f_{2+}$ を第1の出力ポートから出力し、検出光の周波数成分 $f_2$ 、 $f_3$ および参照光の周波数成分 $f_{2+}$ 、 $f_{3+}$ を第2の出力ポートから出力する。

これらの信号はPDにより光電変換された後、LPFを通過した後、自乗回路により二乗され、DCメータによりビート検出される。ビート検出結果は、演算部18に送出される。

位相検出部172のAWG2の1つの入射ポートには、1出射光路からの光が入射され

10

20

30

40

50

る。周波数成分ごとの検出光の振幅が測定され、PD（フォトダイオード）とDCメータを介して演算部18に出力される。

なお、この検出技術は公知であり、本願発明の発明者と同一発明者により提案されたWO2010/116918に詳しい記載がある。

#### 【0043】

図14および図15は、ヘテロダイン検出処理を各周波数について順次に行うためのスペクトル検出器の具体例を示す図である。

図14においては、検出光出射系14からの検出光と、参照光出射系16からの参照光とが2×3カプラを介してAWG11およびAWG21に入射される。

AWG11とAWG21の間には遅延ループが設けられており、周波数が増加するにしたがって遅延量が大きくなるように構成されている。

図14では、AWG11のk番目の出力ポート光路には周波数 $f_k, f_{k+1}, f_{k+2}, \dots, f_{k+1}$  ( $k = 1, 2, 3, \dots, 127$ )の信号が出力される。これらの信号は、シリアル信号としてAWG12から出射される。AWG12からの出射光からは、ビートが検出され、位相検出部173からは、位相スペクトルが出力される。

図14では、AWG21のk番目の出力ポート光路には、周波数 $f_k$  ( $k = 1, 2, 3, \dots, 127$ )の信号が出力される。これらの信号は、シリアル変換され、ビートが検出され、振幅検出部171からは、振幅スペクトルが出力される。

#### 【0044】

図15においては、検出光出射系14からの検出光と、参照光出射系16からの参照光とが2×2カプラを介してAWG11およびAWG21に入射される。

位相検出部175では、AWG11の出射先には、遅延ループを介してミラーが設けられており、周波数が増加するにしたがって遅延量が大きくなるように構成されている。

ミラーにより反射された光は逆順をたどり、サーキュレータを介して、PDに入射されて電気信号に変換される。そして、変換信号は、LPF、自乗回路、DCメータを介して位相検出部175から出力される。

振幅検出部176では、AWG21の出射先には、遅延ループを介してミラーが設けられており、周波数が増加するにしたがって遅延量が大きくなるように構成されている。

ミラーにより反射された光は逆順をたどり、サーキュレータを介して、PDに入射されて電気信号に変換される。そして、変換信号は、LPF、自乗回路、パワーメータを介して振幅検出部176から出力される。

#### 【0045】

図16は、本発明の過渡吸収応答検出方法を示すフローチャートである。

過渡吸収応答検出方法では、以下のステップを実行することにより、1つまたは複数のポンプ光パルスを試料SMP Lに照射して光励起すると同時に、プローブ光を試料SMP Lに照射し、透過光または反射光の振幅および位相の少なくとも一方の時間的変化を測定することにより、試料SMP Lの過渡吸収応答を測定することができる。

#### 【0046】

光周波数コム発生ステップS110：光周波数コム源から光周波数コムを発生する。

光周波数コム変調ステップ120：光周波数コム発生ステップ110において発生した光周波数コムを、光周波数コム変調器に入射し、周波数軸上で、光周波数コムの縦モードの各々に位相変調、または振幅・位相変調を行うことで、光周波数コムを構成するパルス列の繰返し周波数を増大する。

プローブ光照射ステップ130：光周波数コム変調ステップ120において変調した、パルス列の繰返し周波数が増大した前記光周波数コムをプローブ光として試料に照射する。

ポンプ光照射ステップ140：光周波数コム発生ステップ110において光周波数コム源が発生する光周波数コムを構成するあるパルスに同期するタイミングで、ポンプ光パルスを、試料に照射し当該試料を光励起する。

参照光出射ステップ150：光周波数コム発生ステップ110において発生した光周波

10

20

30

40

50

数コムを入射し、光周波数コムを参照光としてスペクトル検出器に出射し、または光周波数コムから参照光を生成し参照光をスペクトル検出器に出射する。

スペクトル検出ステップ160：プローブ光照射ステップ130において試料に照射された前記プローブ光の透過光または反射光を、検出光出射系を介して入射するとともに、参照光出射系から参照光を入射し、これらの入射光から、過渡吸収応答光の位相スペクトルまたはさらに振幅スペクトルを検出する。

演算ステップ170：スペクトル検出ステップにおいて検出されたスペクトルを逆フーリエ変換して光電界ベクトルの時間変動を演算する。

【符号の説明】

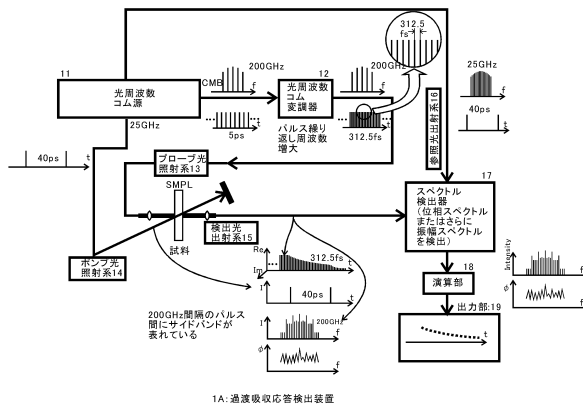
【0047】

- 1, 1A ~ 1I 過渡吸収応答検出装置
- 11 光周波数コム源
- 12 光周波数コム変調器
- 13 プローブ光照射系
- 14 ポンプ光照射系
- 15 検出光出射系
- 16 参照光出射系
- 17 スペクトル検出器
- CMB 光周波数コム
- SMPL 試料

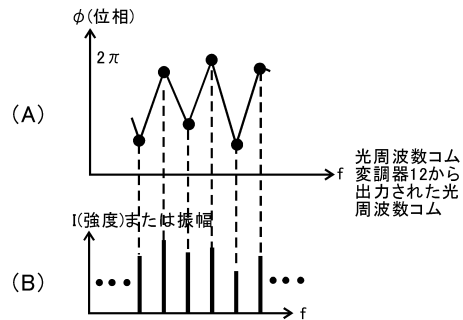
10

20

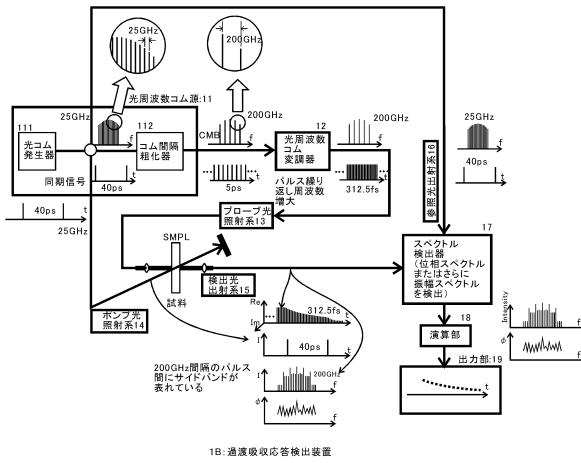
【図1】



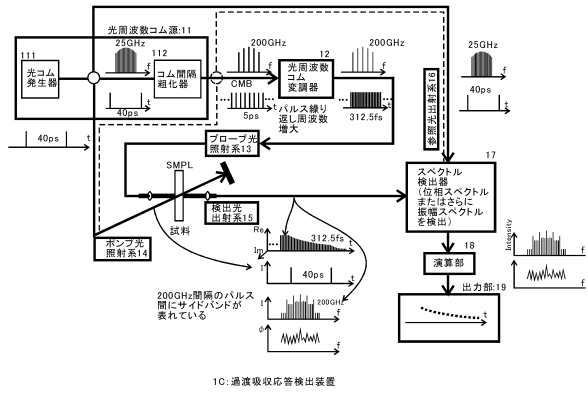
【図2】



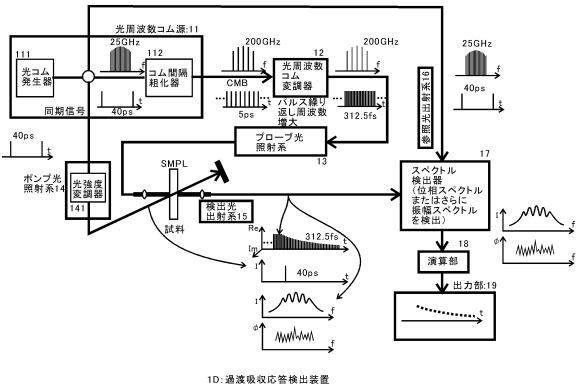
【図3】



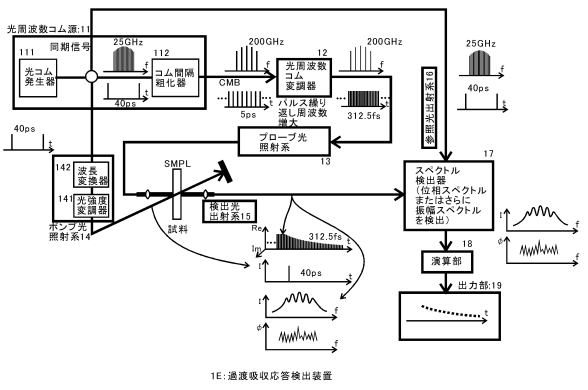
【図4】



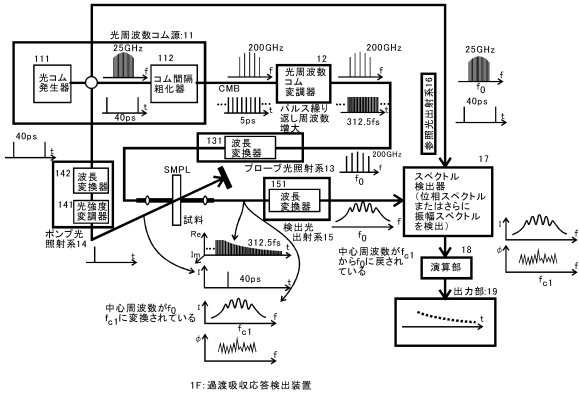
【図5】



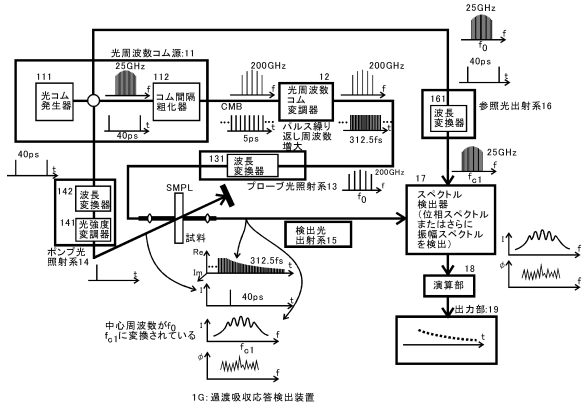
【図6】



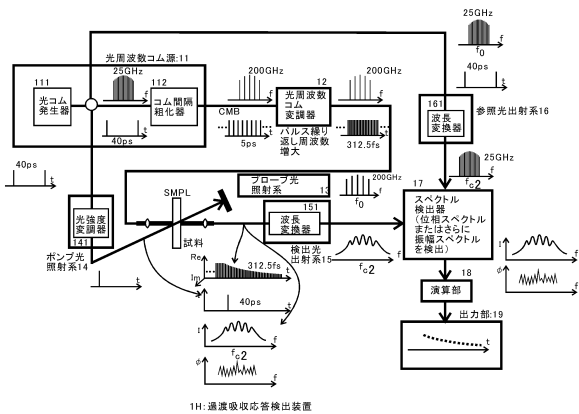
【図7】



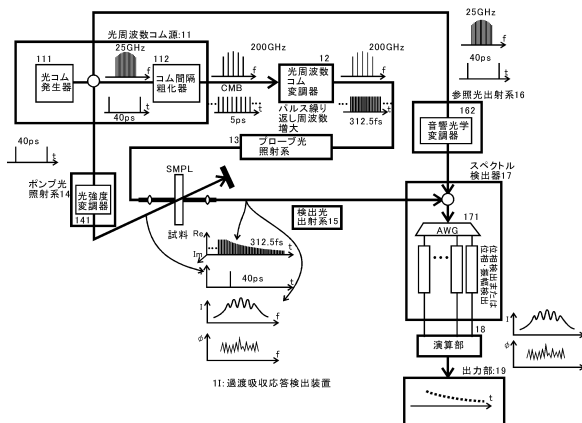
【図8】



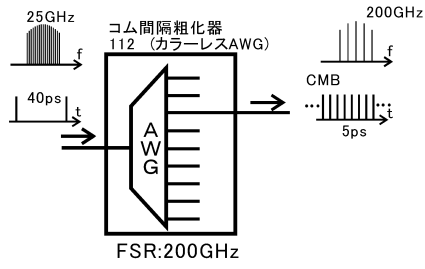
【図9】



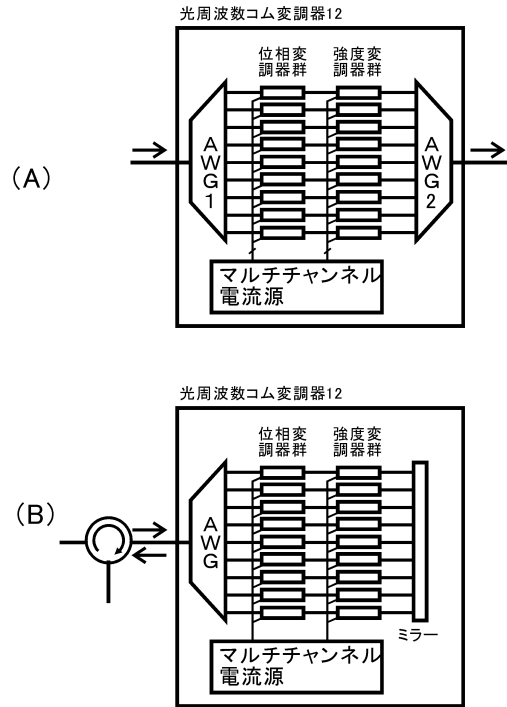
【図10】



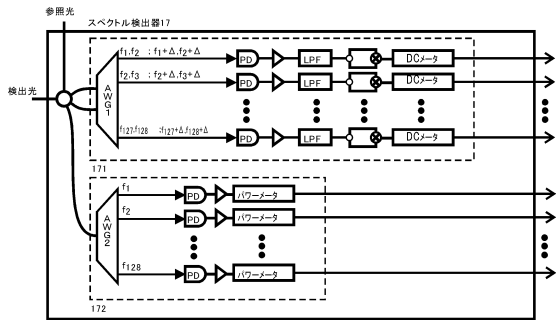
【図 1 1】



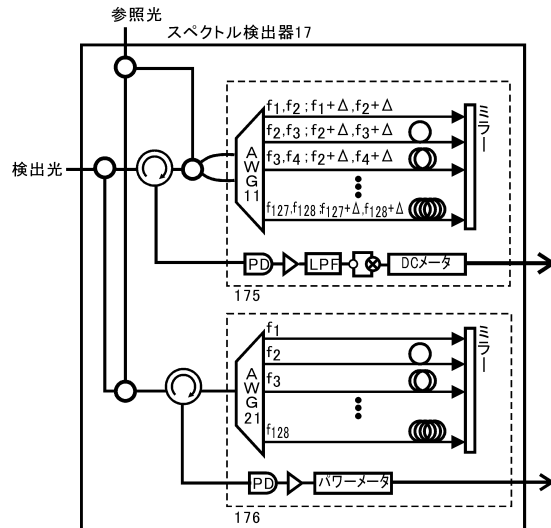
【図 1 2】



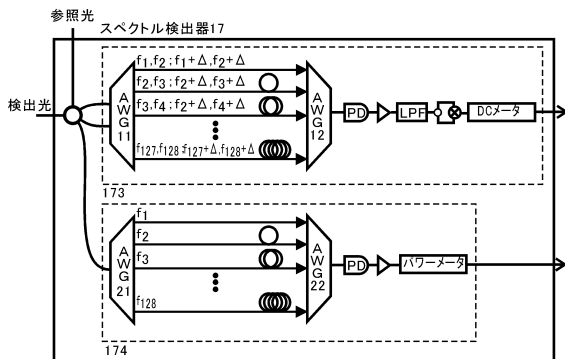
【図 1 3】



【図 1 5】

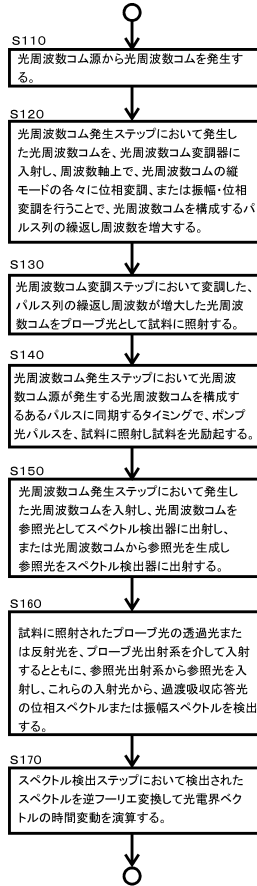


【図 1 4】

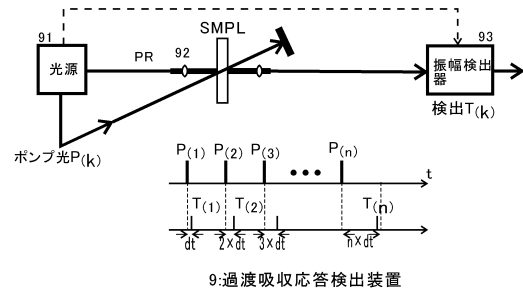




【図 16】



【図 17】



---

フロントページの続き

(56)参考文献 特表2011-529179(JP,A)  
特開2001-227911(JP,A)  
特開2011-17649(JP,A)  
特開2013-40946(JP,A)  
特開2011-7802(JP,A)  
米国特許出願公開第2010/0103413(US,A1)

(58)調査した分野(Int.Cl., DB名)

G01J 9/00 - /04  
G01N 21/00 - 21/01  
G01N 21/17 - 21/61  
G01N 21/63  
G02F 1/11  
G02F 2/02  
JSTPlus/JST7580(JDreamIII)  
Scopus