

(19) 日本国特許庁(JP)

(12) 特許公報(B2)

(11) 特許番号

特許第6281983号
(P6281983)

(45) 発行日 平成30年2月21日(2018.2.21)

(24) 登録日 平成30年2月2日(2018.2.2)

(51) Int.Cl. F I
G O 1 J 3/42 (2006.01) G O 1 J 3/42 U

請求項の数 12 (全 11 頁)

(21) 出願番号	特願2015-500127 (P2015-500127)	(73) 特許権者	504261077
(86) (22) 出願日	平成26年1月24日 (2014.1.24)		大学共同利用機関法人自然科学研究機構
(86) 国際出願番号	PCT/JP2014/000368		東京都三鷹市大沢二丁目2番1号
(87) 国際公開番号	W02014/125775	(74) 代理人	100081776
(87) 国際公開日	平成26年8月21日 (2014.8.21)		弁理士 大川 宏
審査請求日	平成28年12月28日 (2016.12.28)	(72) 発明者	藤 貴夫
(31) 優先権主張番号	特願2013-27042 (P2013-27042)		愛知県岡崎市明大寺町字西郷中38 大学
(32) 優先日	平成25年2月14日 (2013.2.14)		共同利用機関法人自然科学研究機構 分子
(33) 優先権主張国	日本国(JP)		科学研究所内
		(72) 発明者	野村 雄高
			愛知県岡崎市明大寺町字西郷中38 大学
			共同利用機関法人自然科学研究機構 分子
			科学研究所内
		審査官	立澤 正樹

最終頁に続く

(54) 【発明の名称】 赤外光スペクトル計測装置及び方法

(57) 【特許請求の範囲】

【請求項1】

超高帯域コヒーレント光発生装置と、
前記超高帯域コヒーレント光発生装置で発生された超高帯域 ($500 \sim 5000 \text{ cm}^{-1}$)、波数 ω_0 の被測定赤外光パルスと、
波数 ω_1 の参照光パルスと、
前記被測定赤外光パルスと前記参照光パルスとが混合入射されて、前記被測定赤外光パルスを強度 I_{IR} に、前記参照光パルスを強度 I_r に集光する集光光学系と、
前記集光光学系で前記被測定赤外光パルスと前記参照光パルスとが混合集光入射されて該被測定赤外光パルスを3次の非線形光学効果で波数 ω_2 の可視光パルスにアップコンバージョンするキセノンガスと、
前記キセノンガスでアップコンバージョンされた前記可視光パルスを分光して可視光パルススペクトルデータを取得する分光装置と、を有し、
前記被測定赤外光パルスのピークパワーと前記参照光パルスのピークパワーとは前記集光光学系で集光されて $I_r^2 \times I_{IR}$ が前記キセノンガスに3次の非線形光学効果 (4光波差周波発生： $\omega_1 + \omega_1 - \omega_0 = \omega_2$) が誘起される所定の値に設定されており、超高帯域 ($500 \sim 5000 \text{ cm}^{-1}$) の赤外光スペクトルを計測できることを特徴とする赤外光スペクトル計測装置。

【請求項2】

前記所定の値は $4.4 \times 10^{36} \sim 2 \times 10^{37} \text{ W}^3 / \text{cm}^6$ である請求項1に記載の

赤外光スペクトル計測装置。

【請求項 3】

前記超高帯域コヒーレント光発生装置は、コヒーレント光パルス L_1 と光パルス L_2 を合波する合波器と、気体媒質と、前記合波器で合波された光パルス $L_1 + L_2$ を前記気体媒質に集光する集光光学系と、を有し、前記気体媒質のフィラメンテーションによる 4 光波混合効果で前記波数 ν_0 の超高帯域 ($500 \sim 5000 \text{ cm}^{-1}$) の被測定赤外光パルスを発生する請求項 1 又は 2 に記載の赤外光スペクトル計測装置。

【請求項 4】

前記分光装置で取得された前記可視光パルススペクトルデータを所定の回復アルゴリズムで演算して前記被測定赤外光パルススペクトルを得る回復演算手段を有する請求項 1 ~ 3 のいずれか 1 項に記載の赤外光スペクトル計測装置。

10

【請求項 5】

前記被測定赤外光パルスと前記参照光パルスとを合波する合波器を備える請求項 1 ~ 4 のいずれか 1 項に記載の赤外光スペクトル計測装置。

【請求項 6】

前記参照光パルスはチャープ光パルス或いは単一波長のピコ秒パルスである請求項 1 ~ 5 のいずれか 1 項に記載の赤外光スペクトル計測装置。

【請求項 7】

超高帯域 ($500 \sim 5000 \text{ cm}^{-1}$)、波数 ν_0 のコヒーレント被測定赤外光パルスを発生する被測定赤外光パルス発生ステップと、

20

前記被測定赤外光パルス発生ステップで発生された前記超高帯域 ($500 \sim 5000 \text{ cm}^{-1}$)、波数 ν_0 の被測定赤外光パルスと波数 ν_1 の参照光パルスとが混合入射されて前記被測定赤外光パルスを強度 I_{IR} に、前記参照光パルスを強度 I_r に集光する集光ステップと、

前記集光ステップで前記被測定赤外光パルスと前記参照光パルスとがキセノンガスに混合集光入射されて該被測定赤外光パルスを 3 次の非線形光学効果で波数 ν_2 の可視光パルスにアップコンバージョンするアップコンバージョンステップと、

前記アップコンバージョンステップで変換された可視光パルスを分光して可視光パルススペクトルデータを取得する分光ステップと、を有し、

前記被測定赤外光パルスのピークパワーと前記参照光パルスのピークパワーとは前記集光ステップで集光されて $I_r^2 \times I_{IR}$ が前記キセノンガスに 3 次の非線形光学効果 (4 光波差周波発生: $\nu_1 + \nu_1 - \nu_0 = \nu_2$) が誘起される所定の値に設定されており、超高帯域 ($500 \sim 5000 \text{ cm}^{-1}$) の赤外光スペクトルを計測できることを特徴とする赤外光スペクトル計測方法。

30

【請求項 8】

前記所定の値は $4.4 \times 10^{36} \sim 2 \times 10^{37} \text{ W}^3 / \text{cm}^6$ である請求項 7 に記載の赤外光スペクトル計測方法。

【請求項 9】

前記被測定赤外光パルス発生ステップは、コヒーレント光パルス L_1 と光パルス L_2 を合波する合波ステップと、前記合波ステップで合波された光パルス $L_1 + L_2$ を気体媒質に集光する集光ステップと、を有し、前記気体媒質のフィラメンテーションによる 4 光波混合効果で前記波数 ν_0 の超高帯域 ($500 \sim 5000 \text{ cm}^{-1}$) の被測定赤外光パルスを発生する請求項 7 又は 8 に記載の赤外光スペクトル計測方法。

40

【請求項 10】

前記分光ステップで取得した可視光パルススペクトルデータを所定の回復アルゴリズムを使って前記被測定赤外光パルスのスペクトルを回復させるスペクトル回復ステップを有する請求項 7 ~ 9 のいずれか 1 項に記載の赤外光スペクトル計測方法。

【請求項 11】

前記参照光パルスはチャープ光パルス或いは単一波長のピコ秒パルスである請求項 7 ~ 10 のいずれか 1 項に記載の赤外光スペクトル計測方法。

50

【請求項 1 2】

前記参照光パルスがチャープ光パルスである場合、そのチャープ量（周波数の時間変化）を測定しておく、請求項 1 1 に記載の赤外光スペクトル計測方法。

【発明の詳細な説明】

【技術分野】

【0001】

本発明は、赤外光スペクトル計測装置と方法に関し、詳しくは、高帯域の赤外光スペクトルを高速、高感度に計測する装置と方法に関する。

【背景技術】

【0002】

分子の吸収波長は赤外領域にある。赤外領域は多くの分子振動に共鳴（例えば、タンパク質の C O 伸縮振動の共鳴波数は 1650 cm^{-1} 、脂質の C H 伸縮振動の共鳴波数は、 2900 cm^{-1} 、水の O H 伸縮振動の共鳴波数は、 3400 cm^{-1} である）する。したがって、赤外光を物質（気体、液体、固体）に照射して反射光或いは透過光のスペクトルを測定することにより、その物質の組成や構造が非破壊、無染色で明らかにされる。

【0003】

これまで、赤外光スペクトルの計測はフーリエ変換型赤外分光（FT-IR）測定装置（例えば、非特許文献 1 参照）で行われていた。しかし、赤外光は光子エネルギーが小さく、検出器（例えば、HgCdTe 半導体検出器）が熱雑音の影響を大きく受けるため、FT-IR 測定装置の検出感度や測定精度が低かった。また、FT-IR 測定装置では、ミラーを精密に掃引する

【0004】

可視光はエネルギーが大きく、可視域では検出器（例えば、光電子増倍管）の S N 比が高い。そこで、最近、赤外光を可視光に変換して可視光検出器で計測する可視光変換計測技術が開発された（例えば、非特許文献 2 参照）。

【0005】

この可視光変換計測技術では、次のようにして被測定赤外光パルススペクトルが得られる。まず、被測定赤外光パルスと参照光パルスが非線形光学結晶に混合入射され、被測定赤外光パルスが可視光パルスに変換される。変換された可視光パルスが可視光検出器で検出される。検出された可視光パルススペクトルデータが回復アルゴリズムで演算され、被測定赤外光パルススペクトルが得られる。

【先行技術文献】

【非特許文献】

【0006】

【非特許文献 1】末高治編、「FT-IRの基礎と実際」、第 2 版、東京化学同人、1994 年

【非特許文献 2】C.R. Baiz and K. J. Kubarych, "Ultrabroadband detection of a mid-IR conversion," Opt. Lett. Vol. 36, p187-189, (2011)

【発明の概要】

【発明が解決しようとする課題】

【0007】

上記した従来の可視光変換計測技術では、被測定赤外光パルスが固体結晶の非線形光学特性を使って可視光パルスに変換される。この技術は巨視的には媒質の電場に対する非線形応答、すなわち

$$P^{NL} = \left(\begin{matrix} 2 \\ \end{matrix} \right); E E + \left(\begin{matrix} 3 \\ \end{matrix} \right); E E E + \dots \quad (1)$$

に基づく（稲場文男、編集、「レーザーハンドブック」、朝倉書店、1982年5月1日刊行、405～426頁参照）。ここで、 P^{NL} は非線形分極、 E は電場、 $\left(\begin{matrix} 2 \\ \end{matrix} \right)$ は 2 次の非線形感受率、 $\left(\begin{matrix} 3 \\ \end{matrix} \right)$ は 3 次の非線形感受率である。

【0008】

この技術は次のような物理現象を利用している。すなわち、誘電体媒質に電磁波が入射さ

10

20

30

40

50

れると、分極が起こり電気双極子が形成される。電磁波の電場は正弦波振動しているので、形成された双極子も振動して電磁波を放出する。

【 0 0 0 9 】

誘電体媒質が固体結晶の場合、非線形感受率が大いので、赤外光が可視光に変換されやすいが、固体結晶は透過波長範囲が狭く、計測されるスペクトルのバンド幅が約 600 cm^{-1} (赤外域のスペクトル幅は $4.6 - 5.6\ \mu\text{m}$) と狭い。そのため、従来の可視光変換計測技術では、様々な分子振動による共鳴を広く捕えることができなかつた。

本発明は、上記の問題点に鑑みてなされたものであり、広帯域の赤外光スペクトルを計測できる計測装置及び方法を提供することを課題としている。

【課題を解決するための手段】

【 0 0 1 0 】

はじめに、本発明がなされた経緯を説明する。気体媒質は、密度が低いために光との相互作用が弱く、例えば、空気の⁽³⁾はMgO結晶の10万分の1と小さい。そのため、発明者等は、気体で波長変換を行うことは難しいと考え、固体結晶を使って波長変換実験を行った。しかし、発明者等が偶然にも実験系から固体結晶を外しても信号が出ていることに気が付いたことから、本発明が創出された。なお、この固体結晶を外しても信号が出ることは、発明者らの実験条件が偶々空気でも非線形光学効果を起こすほど入射光強度が高かったことによる。すなわち、偶然が2回重なって、本発明は創出されたことになる。

【 0 0 1 1 】

上記の課題を解決するためになされた本発明の赤外光スペクトル計測装置は、被測定赤外光パルスと参照光パルスとが混合入射されて該被測定赤外光パルスを非線形光学効果で可視光パルスにアップコンバージョンする気体媒質と、前記気体媒質でアップコンバージョンされた前記可視光パルスを分光して可視光パルススペクトルデータを取得する分光装置と、を有する。

【 0 0 1 2 】

気体媒質による光の吸収は、固体媒質による光の吸収より少なく、気体媒質の透過波長帯域は固体媒質の透過波長帯域より広い。非線形光学効果で赤外光パルスから可視光パルスにアップコンバージョンする媒質に、透過波長帯域の広い気体媒質が用いられるので、広帯域の赤外光スペクトルが計測され得る。

【 0 0 1 3 】

上記の赤外光スペクトル計測装置は、前記分光装置で取得された前記可視光パルススペクトルデータを所定の回復アルゴリズムで演算して前記被測定赤外光パルススペクトルを得る回復演算手段を有してもよい。

【 0 0 1 4 】

また、前記赤外光スペクトル計測装置は、前記被測定赤外光パルスと前記参照光パルスとを合波する合波器を備えてもよい。これにより、被測定赤外光パルスから可視光パルスにアップコンバージョンする効率が向上する。

【 0 0 1 5 】

また、前記赤外光スペクトル計測装置は、前記被測定赤外光パルスと前記参照光パルスとを前記気体媒質に集光する集光光学系を備えるとよい。集光することにより集光領域の光強度が高くなり、気体媒質の高次の非線形光学効果が容易に誘起され得る。

【 0 0 1 6 】

また、前記被測定赤外光パルスがコヒーレント光パルスであるとよい。これにより、被測定赤外光パルスが小さいスポット径に集光されるので、気体媒質が高次非線形光学媒質になる。

【 0 0 1 7 】

また、前記被測定赤外光パルスは、帯域幅が $500 \sim 5000\text{ cm}^{-1}$ の超広帯域光パルスであるとよい。波長範囲が $2 - 20\ \mu\text{m}$ の赤外光スペクトルが計測されるので、様々な分子振動による共鳴が広く捕えられ得る。

10

20

30

40

50

【 0 0 1 8 】

また、前記参照光パルスはチャープ光パルスであるか、或いは単一波長のピコ秒パルスであるとよい。これにより、高い周波数分解能でスペクトルが測定され得る。前記参照光パルスがチャープ光パルスである場合、チャープ量（周波数の時間変化）の精密な測定により被測定赤外光スペクトルが一層高い分解能で再現され得る。

【 0 0 1 9 】

また、前記非線形光学効果は、3次非線形光学効果であるとよい。これにより、反転対称性のある気体を波長変換媒質として使用しても、被測定赤外光パルスが可視光パルスに変換され得る。

【 0 0 2 0 】

また、前記気体媒質はキセノンガスであるとよい。キセノンガスは非線形係数の大きい気体であり、被測定赤外光パルスが高い効率でアップコンバージョンされ得る。

【 0 0 2 1 】

上記の課題を解決するためになされた本発明の赤外光スペクトル計測方法は、被測定赤外光パルスと参照光パルスとを気体媒質中に混合入射させて該気体媒質の非線形光学効果で該被測定赤外光パルスを可視光パルスに変換するアップコンバージョンステップと、前記アップコンバージョンステップで変換された可視光パルスを分光して可視光パルススペクトルデータを取得する分光ステップと、を有する。

【 0 0 2 2 】

上記の赤外光スペクトル計測方法は、前記分光ステップで取得した可視光パルススペクトルデータを所定の回復アルゴリズムを使って前記被測定赤外光パルスのスペクトルを回復させるスペクトル回復ステップを有してもよい。

また、前記赤外光スペクトル計測方法において、前記被測定赤外光パルスはコヒーレント光パルスであるとよい。

また、前記被測定赤外光パルスは、帯域幅が $500 \sim 5000 \text{ cm}^{-1}$ の超広帯域光パルスであるとよい。

また、前記参照光パルスはチャープ光パルスであるか、或いは単一波長のピコ秒パルスであるとよい。

また、前記参照光パルスがチャープ光パルスである場合、そのチャープ量（周波数の時間変化）を測定しておくともよい。

また、前記非線形光学効果は、3次非線形光学効果であるとよい。

また、前記気体媒質はキセノンガスであるとよい。

【 発明の効果 】

【 0 0 2 3 】

非線形光学効果で被測定赤外光パルスを可視光パルスにアップコンバージョンする媒質に透過波長範囲の広い気体媒質を用いているので、広帯域の赤外光スペクトルが計測され得る。

【 図面の簡単な説明 】

【 0 0 2 4 】

【 図 1 】 本発明の実施形態に係る赤外光スペクトル計測装置の構成図である。

【 図 2 】 本発明の実施形態に係る赤外光スペクトル計測装置の回復演算手段における演算動作を説明するフローチャートである。

【 図 3 】 超広帯域コヒーレント光発生装置の構成図である。

【 図 4 】 図 3 の超広帯域コヒーレント光発生装置で発生させた赤外光パルスのスペクトルである。

【 図 5 】 実施例で計測したスペクトルである。

【 発明を実施する形態 】

【 0 0 2 5 】

以下、添付図面を参照して、本発明を実施する形態を詳細に説明する。図 1 は、本発明の実施形態に係る赤外光スペクトル計測装置の構成図である。赤外光スペクトル計測装置

10

20

30

40

50

1 は、合波器 1 1、集光光学系 1 2、気体媒質 1 3、可視分光装置 1 4 及び回復演算手段 1 5 を備えている。なお、これら構成要素のうち、合波器 1 1 と集光光学系 1 2 とは省かれ得る。

【0026】

被測定赤外光パルス L_{IR} と参照光パルス L_r を合波する合波器 1 1 には、穴あきミラー、2色ミラー、偏光ビームスプリッタ等が用いられ得る。集光光学系 1 2 には、レンズ、放物面鏡等が用いられ得る。

【0027】

気体媒質 1 3 は、可視～赤外域で透明な気体が好ましい。気体媒質 1 3 は空気でもよいが、空気には $4 \mu\text{m}$ と $8 \mu\text{m}$ 付近に CO_2 分子による強い吸収があるので、空気よりは吸収の少ない不活性ガス（アルゴン、キセノン、ネオン等）が好ましい。不活性ガスの中でもキセノンガスが特に好ましい。

10

【0028】

ポンベ（不図示）から集光光学系 1 2 による集光領域 S に、気体媒質を噴き出すようにしてもよいが、それでは、気体媒質が空気中に拡散してしまうので気体媒質 1 3 の濃度を高く保つことができない。本実施形態では、集光光学系 1 2 で集光される光が通過する孔のあいた筒にポンベからの気体媒質が注入される。

【0029】

1 6 は、バンドパスフィルターであり、気体媒質 1 3 の非線形光学効果で被測定赤外光パルス L_{IR} からアップコンバージョンされた可視光パルス L_v のみを透過する。

20

1 7 は、可視光パルス L_v をコリメートするレンズである。

分光装置 1 4 は、可視域の分光装置で、プリズム或いは回折格子と回折光の空間分布を光電変換する CCD（或いはフォトダイオードアレイ）を備えている。

【0030】

回復演算手段 1 5 は、コンピュータであり、図 2 に示す演算動作を行う。すなわち、ステップ $S 1 1$ では、気体媒質 1 3 でアップコンバージョンされた可視光パルス L_v が分光装置 1 4 でデータ化され、この分光スペクトルデータが回復演算手段 1 5 により取得される。続くステップ $S 1 2$ では、ステップ $S 1 1$ で取得された分光スペクトル（波長）データが分光スペクトル（周波数）データに変換される。

30

【0031】

ステップ $S 1 3$ で、分光スペクトル（周波数）データが逆フーリエ変換される。ステップ $S 1 4$ では、参照光パルス L_r の時間領域での位相を $\phi(t)$ としたとき、逆フーリエ変換されたスペクトルデータにおいて、時間領域で $t > 0$ の部分からは位相 $\phi(t)$ を、 $t < 0$ の部分からは位相 $-\phi(-t)$ を差し引く位相補正が行われる。位相補正されたスペクトルデータは、ステップ $S 1 5$ でフーリエ変換され、被測定赤外光パルススペクトルとなる。

【0032】

赤外光パルス発生手段 1 0 から発生された被測定赤外光パルス L_{IR} を点線で示す試料 1 0 0 に照射することで、試料 1 0 0 の赤外吸収スペクトルが可視域の分光装置で高速に測定され得る。

40

【0033】

気体媒質 1 3 の非線形光学効果は、気体媒質に注入される光の強度（単位面積当たりのパワー、すなわち W/cm^2 ）に依存し、強度が大きくなるにつれて気体媒質 1 3 には高次の非線形光学効果が誘起される。

【0034】

気体媒質 1 3 に入射する L_r 、 L_{IR} がパルス光の場合、 L_r 、 L_{IR} のパワーはパルス幅が短い程高くなるので、 L_r 、 L_{IR} のパルス幅は短い方がよい。パルス幅はフェムト秒～ピコ秒が望ましい。

【0035】

気体媒質 1 3 に注入される光の強度は、 L_r 、 L_{IR} が集光光学系 1 2 で小さく集光される

50

程高くなる。集光光学系 1 2 による L_r 、 L_{IR} の集光スポット径は、集光光学系 1 2 の焦点距離と L_r 、 L_{IR} のコヒレンシーに依存する。したがって、集光光学系 1 2 の焦点距離は 50 mm であるとよく、25 mm であるとさらによい。また、 L_r 、 L_{IR} のコヒレンシーは、 $M^2 = 1$ のコヒーレント光が望ましい。

気体媒質の非線形光学効果で波長変換するのに必要なパワーは、気体の種類や計測時間に依存するが、発明者らの実験によれば次のようになる。

【0036】

発明者らの実験によれば、角周波数が ω_0 の被測定赤外光パルス $L_{IR}(\omega_0)$ のパルス幅が 7 fs、エネルギーが 500 nJ、ピークパワーが 70 MW の場合、直径 100 μm の集光スポットの強度 I_{IR} は、 $0.9 \times 10^{12} \text{ W/m}^2$ になる。角周波数が ω_1 の参照光パルス L_r のパルス幅が 10 ps、エネルギーが 0.1 mJ、パワーが 10 MW の場合、直径 24 μm の集光スポットの強度 I_r は、 $2.2 \times 10^{12} \text{ W/m}^2$ になる。

10

【0037】

気体媒質 1 3 がアルゴン又はキセノンの場合、3 次の非線形光学効果が誘起された。すなわち、この場合、参照光パルス L_r の角周波数を ω_1 とすると、3 次の非線形光学効果 (4 光波差周波発生： $\omega_1 + \omega_1 - \omega_0 = \omega_2$) が起こり、角周波数が ω_1 の被測定赤外光パルス $L_{IR}(\omega_1)$ が、角周波数が ω_2 の可視光パルス $L_V(\omega_2)$ にアップコンバージョンされた。

なお、角周波数 ω は、波長を λ 、光速を c とすると、

$$\omega = 2\pi c / \lambda \quad (2)$$

20

と表される。

3 次の非線形光学効果の場合、(1) 式から、下記の指標

$$\text{参照光の強度の 2 乗} \times \text{被測定光の強度} = I_r^2 \times I_{IR} \quad (3)$$

が重要となる。

【0038】

発明者らの上記実験では、 $I_r^2 \times I_{IR} = 4.4 \times 10^{36} \text{ W}^3 / \text{cm}^6$ であり、気体媒質の非線形光学効果で波長変換するのに必要なパワーは、 $I_r^2 \times I_{IR}$ が $4.4 \times 10^{36} \text{ W}^3 / \text{cm}^6$ 以上になるパワーである。

【0039】

被測定赤外光パルス L_{IR} は、超広帯域 ($500 \sim 5000 \text{ cm}^{-1}$) 光パルスであるとよい。被測定赤外光パルス L_{IR} が超広帯域 ($500 \sim 5000 \text{ cm}^{-1}$) であると、波長範囲が 2 - 20 μm の赤外光スペクトルを計測することができるので、様々な分子振動による共鳴を広くとらえられ得る。

30

【0040】

超広帯域 ($500 \sim 5000 \text{ cm}^{-1}$) コヒーレント光パルスは、例えば、図 3 に示す超広帯域コヒーレント光発生装置 2 で発生され得る。図 3 において、21 は 2 色ミラーで、波数 ω_1 のコヒーレント光パルス $L_1(\omega_1)$ と波数 $\omega_2 (= 2\omega_1)$ の光パルス $L_2(\omega_2)$ を合波する。22 は、軸外し放物面鏡で、合波された光パルス $L_1(\omega_1) + L_2(\omega_2)$ を気体媒質 23 の中に集光する。24 は、コリメータであり、軸外し放物面鏡である。25 は、フィルタである。

40

【0041】

モードロック Ti : サファイアレーザからの超短光パルス (波長: 800 nm、パルス幅: 25 fs、パルスエネルギー: 0.7 mJ、繰り返し周波数: 1 KHz) を、厚さ 0.1 mm の BBO (BaB_2O_4) 結晶に入射させて第 2 高調波光パルスを発生させた。その第 2 高調波光パルスが $L_2(\omega_2)$ であり、基本波光パルスが $L_1(\omega_1)$ である。基本波光パルス $L_1(\omega_1)$ のパルス幅は 25 fs、パルスエネルギーは 675 μJ 、第 2 高調波光パルス $L_2(\omega_2)$ の波長は 400 nm、パルス幅は 25 fs、パルスエネルギーは 25 μJ である。

【0042】

基本波光パルス $L_1(\omega_1)$ と第 2 高調波光パルス $L_2(\omega_2)$ が 2 色ミラー 21 で合

50

波され、焦点距離 150 mm の軸外し放物面鏡 22 でアルゴンガス 23 の中に集光される。すると、アルゴンガスのフィラメンテーションにより 4 光波混合 ($\omega_1 + \omega_1 - \omega_2$) が起こり、 ω_0 の光のみ透過するフィルタ 25 からは 4 光波混合された光パルス L_0 (ω_0) が得られる。

【0043】

4 光波混合された光パルス L_0 (ω_0) の帯域は、図 4 に示すように、波数で $200 - 6000 \text{ cm}^{-1}$ (波長で $1.7 - 50 \mu\text{m}$) であり、超広帯域である。また、光パルス L_0 (ω_0) のパルス幅は、 6.9 fs であった。

【0044】

参照光パルス L_r は、チャープ光パルスであるとよい。フーリエ分光法では、掃引する遅延時間が長くなると周波数分解能が向上するので、参照光パルスのパルス幅が長いほど周波数分解能が向上する。

10

【0045】

参照光パルスがチャープ光パルス或いは単一波長のピコ秒パルスの場合、高い周波数分解能でスペクトルが測定され得る。何故なら、フーリエ分光法では掃引する遅延時間を長くすれば周波数分解能が向上するので、同様の論理で参照光パルスのパルス幅が長ければ長いほど周波数分解能が向上するからである。

参照光パルスをチャープ光パルスにするには、参照光パルスのパルス時間幅を、例えば、回折格子型伸張器で伸張させればよい。

【0046】

20

参照光パルスがチャープ光パルスである場合、そのチャープ量 (周波数の時間変化) を実測しておき、計測された可視光スペクトルから赤外スペクトルへの変換を精密に行えるようにしておくといよい。

【実施例】

【0047】

前述の 4 光波混合された超広帯域光パルス L_0 (ω_0) を、被測定赤外光パルス L_{IR} (ω_0) とした。この被測定赤外光パルス L_{IR} (ω_0) のパルスエネルギーは、 $0.5 \mu\text{J}$ である。

【0048】

超広帯域光パルス L_0 (ω_0) を生成するためのモードロック Ti : サファイアレーザの基本波パルス (波長: 800 nm) の一部 (パルスエネルギー: 0.1 mJ) を伸張器で伸張して参照光パルス L_r (ω_1) とした。参照光パルス L_r (ω_1) のパルス幅は、 10.3 ps である。

30

【0049】

被測定赤外光パルス L_{IR} (ω_0) と参照光パルス L_r (ω_1) とが穴あきミラー 11 で合波され、焦点距離 50 mm の放物面鏡 12 でキセノンガス 13 に集光された。被測定赤外光パルス L_{IR} (ω_0) が超短光パルス (パルス時間幅: 7 fs) であるため、集光領域での強度 $I_{IR} \sim 4 \times 10^{16} \text{ W/m}^2$ と見積もられた。また、参照光パルス L_r (ω_1) の集光領域での強度 $I_r \sim 2.2 \times 10^{12} \text{ W/cm}^2$ と見積もられた。

したがって、(2) 式の指標は $2 \times 10^{37} \text{ W}^3/\text{cm}^6$ と見積もられ、キセノンガス 13 に 3 次の非線形光学効果が誘起されることが期待される。

40

【0050】

波数で $200 - 6000 \text{ cm}^{-1}$ (波長で $1.7 - 50 \mu\text{m}$) の被測定赤外光パルス L_{IR} (ω_0) と、波長 800 nm の参照光パルス L_r (ω_1) をカットするバンドパスフィルタ 16 を透過した光パスがカメラ EMCCD (ProEM+1600, Princeton Instrument) を備える可視域分光装置 14 で測定された。カメラはモードロック Ti : サファイアレーザの繰り返し周波数 (1 kHz) に同期され、シングルショット ($< 1 \text{ ms}$) でスペクトルが測定された。

【0051】

測定されたスペクトルを図 5 に示す。図 5 の波形イ (横軸: 波長) が測定されたスペク

50

トルで、400 - 520 nmの可視光スペクトルが得られた。したがって、バンドパスフィルタ16を通過した可視光パルスは、角周波数が $\omega_2 (= \omega_1 + \omega_1 - \omega_0)$ の可視光パルス $L_v(\omega_2)$ であることがわかる。

【0052】

よって、キセノンガス13に誘起された非線形光学効果は、3次の非線形光学効果（4光波差周波発生： $\omega_1 + \omega_1 - \omega_0 = \omega_2$ ）によるアップコンバージョンであることが検証された。

【0053】

図5の波形イのスペクトルデータを回復演算手段15で処理することで得られたスペクトル波形が図5の波形ロである。波形ロから、CO₂の吸収（波数： $\sim 2300 \text{ cm}^{-1}$ 、波長： $\sim 4.3 \mu\text{m}$ ）と水蒸気の吸収（波数： $\sim 1600 \text{ cm}^{-1}$ 、波長： $\sim 6.3 \mu\text{m}$ ）及び波数： $\sim 3700 \text{ cm}^{-1}$ 、波長： $\sim 2.7 \mu\text{m}$ ）が鮮明に観測される。

10

【0054】

前記参照光パルスのチャープ量（周波数の時間変化、 $\omega(t)$ ）を、前もって計測しておくことよ。参照光パルスと赤外光パルスの遅延時間を掃引して、4光波差周波混合のスペクトルを計測しておき、そのスペクトルの遅延時間依存性から、 $\omega(t)$ を直接的に計測することができる。

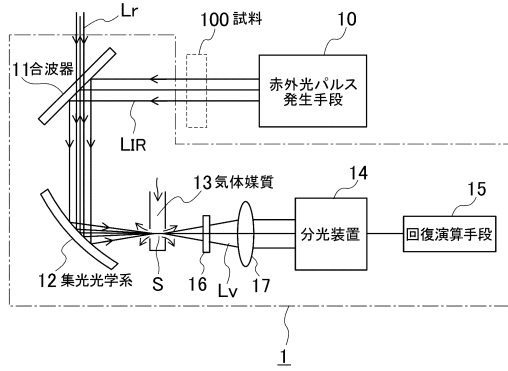
【符号の説明】

【0055】

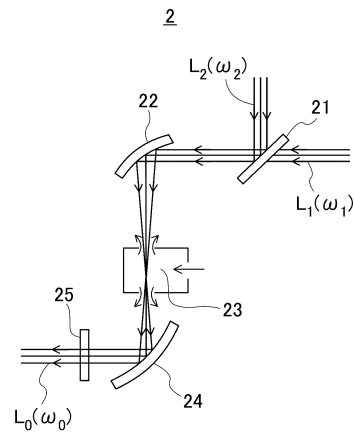
- 1 赤外光スペクトル計測装置
- 11 合波器
- 12 集光光学系
- 13 気体媒質
- 14 分光装置
- 15 回復演算手段
- L_{IR} 被測定赤外光パルス
- L_r 参照光パルス
- L_v 可視光パルス

20

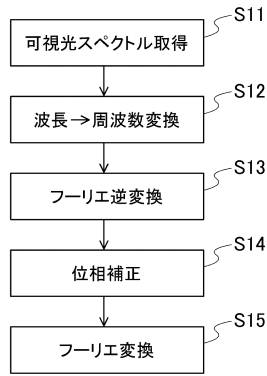
【図1】



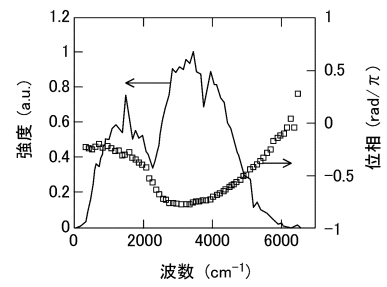
【図3】



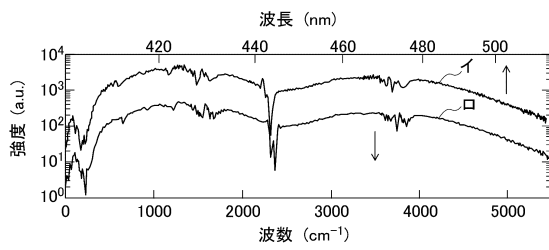
【図2】



【図4】



【図5】



フロントページの続き

(56)参考文献 Carlos R. Baiz and Kevin J. Kubarych , Ultrabroadband detection of a mid-IR continuum by chirped-pulse upconversion , OPTICS LETTERS , 2 0 1 1 年 1 月 1 5 日 , Vol.36 No.2 , 187 -189

Takao Fuji, Takuya Horio, and Toshinori Suzuki , Generation of 12 fs deep-ultraviolet pulses by four-wave mixing through filamentation in neon gas , OPTICS LETTERS , 2 0 0 7 年 9 月 1 日 , Vol.32 No.17

(58)調査した分野(Int.Cl. , DB名)

G 0 1 J 3 / 0 0 - 3 / 5 2

J S T P l u s / J M E D P l u s / J S T 7 5 8 0 (J D r e a m I I I)