

テラヘルツ離散フーリエ変換分光法
Discrete Fourier transform spectroscopy in THz region

安井武史

徳島大学 ポストLED フォトニクス研究所

Takeshi YASUI

Institute of Post-LED Photonics, Tokushima University

テラヘルツ離散フーリエ変換分光法

Discrete Fourier transform spectroscopy in THz region

安井 武史

徳島大学 ポスト LED フォトニクス研究所

Takeshi YASUI

Institute of Post-LED Photonics, Tokushima University

要旨： フーリエ変換分光法 (FTS) は、高い信号対雑音比、広帯域スペクトルの一括取得、多種多様な電磁波への拡張性といった利点から、様々な分野で広く利用されている。本稿では、テラヘルツ周波数コム (THz コム) の時間領域描写である周波数安定化モード同期 THz パルス列の極めて正確なパルス周期性に着目した、THz 離散フーリエ変換分光法 (dFTS) を紹介する。これにより、測定時間窓の逆数によって定義される FTS 理論限界を超えたスペクトル分解能の達成が可能になる。

Abstract : Fourier transform spectroscopy (FTS) is widely used in various fields due to its advantages such as high signal-to-noise ratio, batch acquisition of broadband spectra, and expandability to various types of electromagnetic waves. THz discrete Fourier transform spectrometry in THz region (THz-dFTS) is achieved by focusing on the extremely accurate pulse periodicity of frequency-stabilized mode-locked THz pulse trains, which is a time domain depiction of terahertz frequency combs (THz combs). This makes it possible to achieve spectral resolution beyond the theoretical limit of spectral resolution defined by the reciprocal of the measurement time window.

Key Words: terahertz, Fourier transform spectroscopy, terahertz comb, spectral resolution

1. はじめに

フーリエ変換分光法 (FTS) は、光を始めとした電磁波の時間波形(またはインターフェログラム)を測定し、そのフーリエ変換 (FT) を計算することによってスペクトルを取得する分光技術である。

FTS は、高い信号対雑音比 (SNR)、広帯域スペクトル信号の一括取得、多種多様な電磁波への拡張性など、従来の分散型分光計に対する優位性を有している。光学的 FTS として、フーリエ変換赤外分光法 (FT-IR)¹⁾ やテラヘルツ (THz) 時間領域分光法 (THz-TDS)²⁾ が広く使用されている。

測定現象の時間波形を測定する場合、スペクトル分解能は、測定時間窓の逆数によって単純に決定される。したがって、測定時間窓が拡張されると、スペクトル分解能が向上する。しかし、信号成分の大部分が時間的に局所化されている場合、測定時間窓を過度に拡

張すると、ノイズ増大により測定 SN 比は低下し、取得時間も長くなる。さらに、光学的 FTS の場合、時間遅延走査に使用される機械式移動ステージの移動範囲によって、スペクトル分解能が実質的に制限される。測定現象が繰り返される場合、測定時間窓に複数の信号が共存するのを避けるため、測定時間窓は現象繰り返し周期に制限される。その結果、達成可能なスペクトル分解能はその繰り返し周波数に制限される。

一方、レーザー技術の最近の進歩により、紫外線、可視、赤外線、および THz 領域の光周波数コム (光コム)^{3, 4)} が生成可能になっている。光コムは、多数の光周波数モード列が一定間隔で櫛の歯状に立ち並んだ超離散マルチ・スペクトル構造を有しており、光周波数の物差しとして利用できる。一方、光コムの時間領域描写は、周波数安定化モード同期パルス列であり、極めて正確なパルス繰り返し

周期性を有する、極めて正確な繰り返し周期のパルス列を用いて繰り返し現象を測定する場合、一連の現象は、パルス繰り返し周波数の逆数に等しい間隔で分離された同じ現象のコピーと見なせる。このような時間的振る舞いに対して、離散フーリエ変換を適用すると、測定時間窓 (=パルス周期) の逆数によって決まる FTS 理論限界スペクトル分解能を上回ることが可能になる。

本稿では、周波数安定化モード同期 THz パルス列に離散フーリエ変換分光法 (dFTS) を適用することにより、測定時間窓の制限を超えて大幅なスペクトル分解能の向上が可能であることを解説する⁹⁾。

2. 測定原理

時間波形信号 $h(t)$ を取得し、そのスペクトル波形 $H(f)$ をフーリエ変換によって取得する場合を考える。時間領域信号 $h(t)$ と周波数領域信号 $H(f)$ は、以下に示すフーリエ変換によって結ばれる。

$$\widetilde{H(f)} = \int_{-\infty}^{+\infty} h(t) \exp(-2\pi if t) dt \quad (1)$$

測定信号 $h(t)$ のある周波数成分 f を得るためには、式(1)から、測定信号 $h(t)$ と測定したい周波数信号 $\cos 2\pi f t$ の掛け算を行い、時間領域で積分することによって算出される (Fig. 1, 実数部のみについて記述)。更に、各周波数成分に対して同様な処理を行うことにより、スペクトル波形を取得できる。ここで、時間積分領域の大きさ (測定時間窓に相当) が、スペクトル分解能を決定することになる。したがって、スペクトル分解能を向上するためには、時間積分領域 (測定時間窓) を大きく取る必要があるが、通常は必要なスペクトル分解能、測定 SN 比、測定時間、測定時間窓の技術的制限 (時間遅延ステージなど) などを考慮して、有限の測定時間窓で計測が行われる。

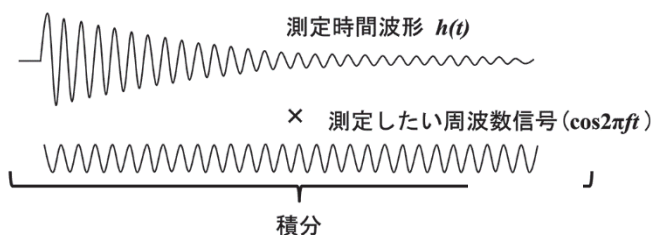


Fig. 1 Fourier transform for a measured temporal waveform $h(t)$ of a phenomenon.

次に、繰り返し周期よりも長い緩和信号 (例えば、自由誘導減衰など) を繰り返し現象として測定する場合を考える (Fig. 2)。ここでは、異なるタイミングの4つのパルスによって現象が誘起され、時間的に異なった4つの緩和現象信号 (直近の信号 a, 1つ前の信号 b, 2つ前の信号 c, 3つ前の信号 d) が時間的に重なった状態となる。

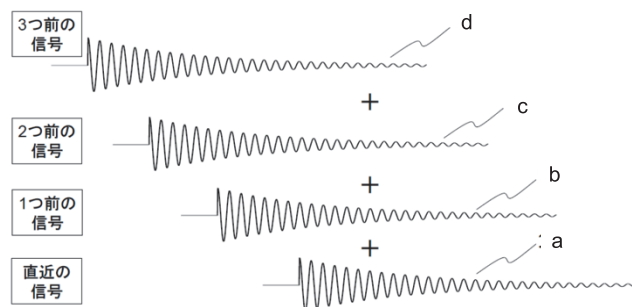


Fig. 2 Temporal overlapping of multiple repeating phenomena using precisely periodic radiation with a repetition period T .

このような時間的に重なった状態の信号を、1周期の測定時間窓で測定すると、Fig. 3 に示すように、直近のパルス信号 a による緩和現象の時間領域(A)、1つ前のパルス信号 b による緩和現象の時間領域(B)、2つ前のパルス信号 c による緩和現象の時間領域(C)、3つ前のパルス信号 d による緩和現象の時間領域(D)、が測定時間窓に含まれることになる。

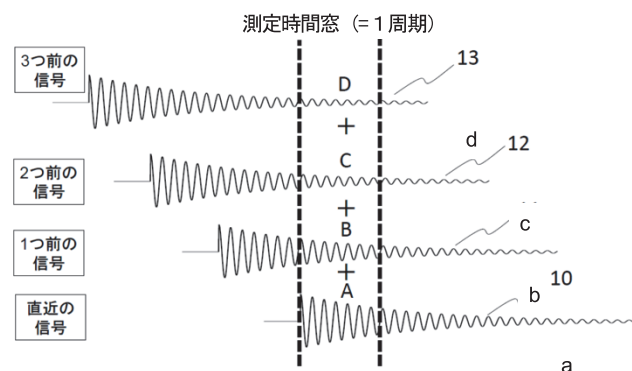


Fig. 3 Signal acquisition of portions of $h(t)$ with different timings with a time-window size equal to one repetition period.

1周期で測定された繰り返し現象のフーリエ変換スペクトルを求めるためには、時間領域(A), (B), (C), (D)に含まれる各緩和信号の和と測定したい周波数信号 $\cos 2\pi f t$ の掛け算を時間領域で積分すればよい (Fig. 4)。

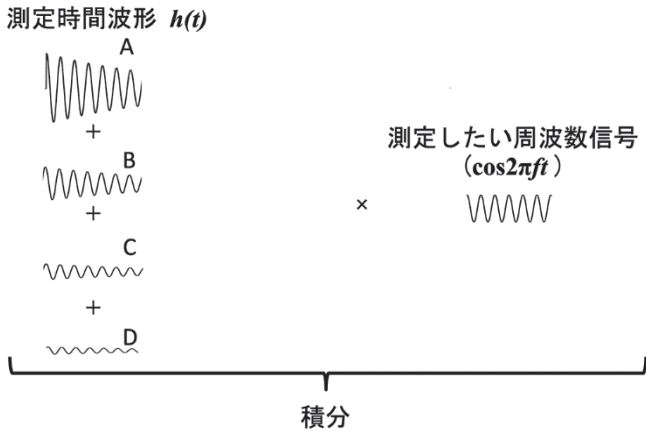


Fig. 4 Fourier transform of portions of $h(t)$ with different timings.

ここで、緩和現象を引き起こす光源の繰り返し周期を、正確にかつ十分に安定化した上で、その繰り返し周期と測定時間窓が厳密に一致するようにして測定すると、Fig. 5 に示すように、時間領域(A), (B), (C), (D)に含まれる各信号を時間的に連続な信号として連結することが可能になる。すなわち、繰り返し周期に等しい測定時間窓であるにも関わらず、それよりも十分に長い緩和現象の信号を無限長の測定時間窓（時間積分領域）で測定することと等価になり、スペクトル分解能は理論上無限小となる。

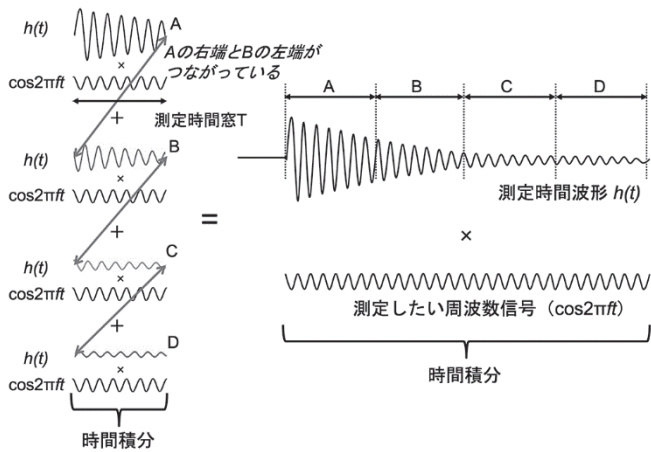


Fig. 5 Temporal connection of portions of $h(t)$ with different timings and Fourier transform of the temporally connected $h(t)$ without limitation of the time-window size.

ここで、繰り返し周期（測定時間窓）を T とすると、無限小の分解能でスペクトル情報を得られる周波数は $1/T$ 間隔で離散分布し、各プロットの周波数は式(2)で与えられる。

$$f_n = \frac{n}{T} \quad (2)$$

ここで、 f_n は各プロットの周波数、 n はプロットの次数（整数）である。Fig. 6 は、スペクトルを構成するプロット分布の様子（プ

ロット間隔 $1/T$ ）を示している。Fig. 6(a)は、無限小スペクトル幅で切り出されたプロットの離散分布（本手法）であり、一方、Fig. 6(b)は、平均値で与えられたプロットの連続分布（従来方法）である。ここで注目すべきは、Fig. 6(a)の各プロットのスペクトル分解能（切り出しスペクトル幅）が無限小の離散分布になっている点である。

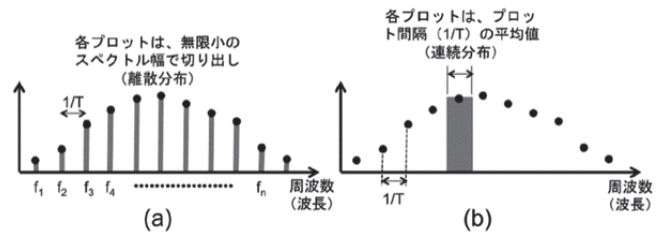


Fig. 6 (a) Discrete Fourier transform spectrum and (b) continuous spectrum.

一方、測定時間窓が厳密に1周期に等しくなければ、時間領域(A), (B), (C), (D)に含まれる各信号を時間的に連続な信号として連結することができず、時間的不連続点を含む信号に変化してしまう (Fig. 7). その結果、緩和現象の信号を無限長の測定時間窓（時間積分領域）で測定することと等価にならない。すなわち、測定時間窓が厳密に1周期に等しいという条件を満たされなければ、正しいスペクトルは得られない。

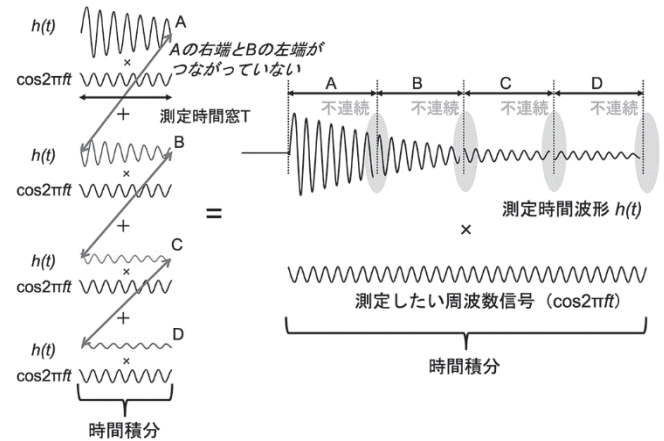


Fig. 7 Temporal disconnection of portions of $h(t)$ with different timings and Fourier transform of the temporally connected $h(t)$ when the time window size is not equal to one repetition period.

Fig. 6(a)に示したスペクトルの各プロットは、無限小のスペクトル分解能を有しているものの、離散的に分布している。そのため、このまま利用すると、実用上のスペクトル分解能はプロット間隔（パルス周期の逆数 $1/T$ ）になる。各プロットが有する無限小スペクトル分解能を有効利用するためには、各プロットの間が存在する間隙部分を重畳する必要がある。そのためには、パルス周期 T を変化させながら、Fig. 6(a)のスペクトル波形を逐次取得し、それら

を最終的に重ねて補間することにより、より狭いプロット間隔を有するスペクトル（ギャップレス dFTS スペクトル）を得ることが可能になる（Fig. 8）。これは、式(2)において、パルス周期 T を変化させながら、離散的なスペクトル情報を計測することと等価である。その結果、実用上プロット点数の増大分だけ、スペクトル分解能が向上する。

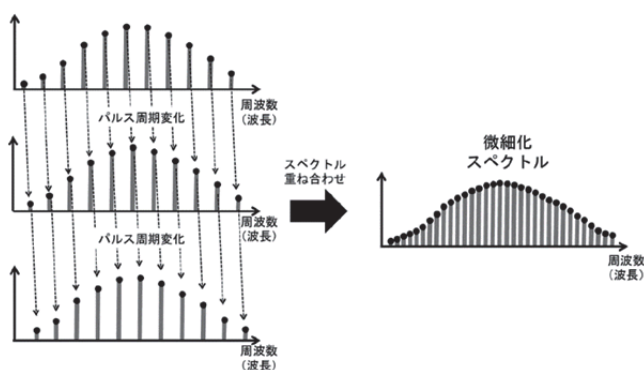


Fig. 8 Discrete Fourier transform spectrum for the temporally connected $h(t)$ and the spectral interleaving by changing T .

3. 実験装置

THz-dFTS では、パルス繰り返し周期と測定時間窓を厳密に一致させる必要があることから、非同期光サンプリング法を用いた⁹⁾。実験装置の構成を Fig. 9 に示す。光源には、デュアルのモード同期 Er ファイバーレーザー（中心波長 1550 nm、パルス幅 50 fs、平均パワー 500 mW）を光源とし、繰り返し周波数 ($f_{rep1} = 250,000,000$ Hz, $f_{rep2} = f_{rep1} + \Delta f_{rep} = 250,000,050$ Hz) と差周波 ($\Delta f_{rep} = f_{rep2} - f_{rep1} = 50$ Hz) は、ルビジウム周波数標準（確度 5×10^{-11} 、不安定性 2×10^{-11} ）を基準としたレーザー制御システムによって周波数安定化されている。デュアル・ファイバーレーザーの出力光は、非線形光学結晶で SHG 光に波長変換された後、THz 発生用及び THz 検出用の光伝導アンテナに入射される。デュアル・ファイバーレーザー出力光の一部は、和周波相互相関計に導かれ、デジタルタイマー取り込みの時間原点信号として利用される。発生したモード同期 THz パルス列は、自由空間とガスセル（直径 40 mm、長さ 500 mm）を伝搬した後、THz 検出用光伝導アンテナに入射される。THz 検出用光伝導アンテナから出力される電流信号は THz 電場に対応しているため、その時間波形を高速デジタルタイマーで取得した（測定時間窓=パルス繰り返し周期=4 ns、サンプリング間隔=100 fs、サンプリング点数=40,000 点）。テラヘルツ電場の時間波形は、 f_{rep2} の周波数で高速サンプリングされるので、環境外乱の影響を受けることなく、取得可能である。

取得時間波形をフーリエ変換することにより、離散フーリエ変換（d-FTS）スペクトルを得る。更に、 Δf_{rep} を一定に保ちながら f_{rep1}

と f_{rep2} を周波数走査することにより、周波数の異なる離散フーリエ変換スペクトルを順次取得し、それをスペクトル重畳することにより、離散フーリエ変換スペクトルをギャップレス化する。

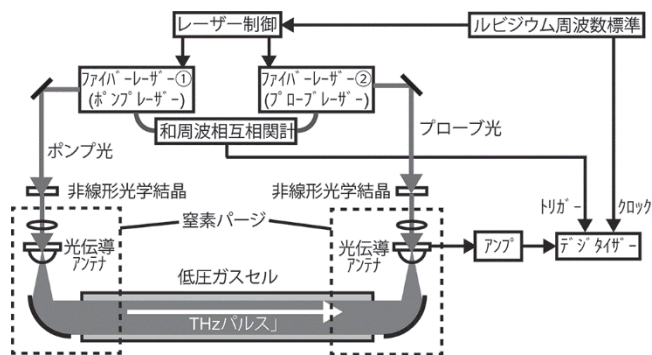


Fig. 9 Experimental setup.

4. 実験結果

4.1 低圧水蒸気の THz 分光

Fig. 6 の時間波形接続において、測定時間窓と繰り返し周期の厳密な一致の重要性を評価するため、低圧水蒸気/窒素混合ガス（水蒸気分圧 6 Pa、窒素分圧 140 Pa）の水蒸気吸収線 ($1_{10} \leftarrow 1_{01}$, 周波数 0.557 THz, 圧力拡がり吸収線幅 10.6 MHz) を計測した。この圧力拡がり吸収線幅は、吸収緩和時間 94 ns に相当し、その時間的長さはモード同期 THz パルス列の 23 周期分に及んでいる。ここでは、250 MHz 間隔の d-FTS スペクトルに関して、吸収線付近で 25 MHz 間隔シフトを 10 回繰り返すことにより、25 MHz 間隔のギャップレス d-FTS スペクトルを取得した。測定時間窓を厳密に繰り返し 1 周期に等しくした場合の吸収スペクトルを Fig. 10(a) に示す。測定された吸収スペクトルの線幅は 25 MHz であり、これはギャップレス d-FTS スペクトルの周波数間隔により律速されている。次に、測定時間窓=繰り返し 0.9995 周期とした場合の吸収スペクトルを Fig. 10(b) に示す。この場合、歪んだ吸収スペクトルが測定されており、これは Fig. 7 に示したように、時間波形接続に不連続点が生じているためであると考えられる。この考えを確認するため、Fig. 10(b) において不足した繰り返し 0.0005 周期分に null data (ゼロデータ) を追加してフーリエ変換を行ったところ、Fig. 10(c) のような歪みの無い吸収線スペクトルになり、Fig. 10(a) と同様になった。これは、測定データにおいて 0.0005 周期分のデータ欠損はあるものの、時間波形の接続において連続性が担保されたことによるものであると考えられる。

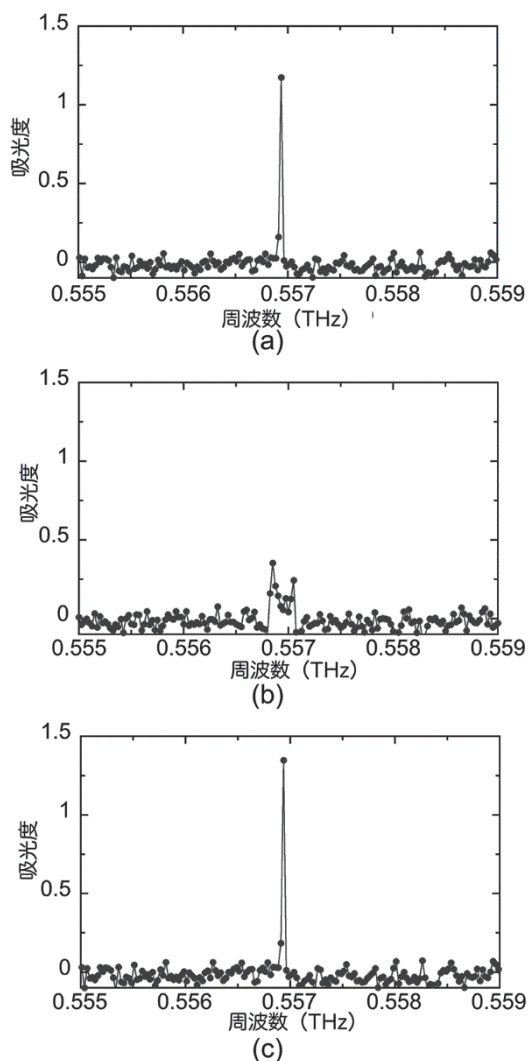


Fig. 10 Absorbance spectrum at the water rotational-transition absorption line with the expected pressure broadening linewidth of 10.6 MHz for (a) $\tau=T$, (b) $\tau=0.9995T$, and (c) $\tau=T$ achieved by connecting the temporal data for $0.9995T$ and the null data for $0.0005T$.

次に、低圧水蒸気/窒素混合ガスの全圧を減少させていったときに測定された吸収線幅を計測した。Fig. 11 において、丸プロットが実測値、実線は予測される圧力拡がり線幅、点線はドップラー拡がり線幅（圧力無依存）、三角プロットはギャップレス dFTS スペクトルの周波数間隔を、それぞれ示している。これらの比較から、実測値は、圧力拡がり線幅もしくはギャップレス dFTS スペクトルの周波数間隔によって制限されていることが確認できる。最終的に、線幅 1.25 MHz の吸収スペクトルが測定されており、測定時間窓 50 周期分に相当するスペクトル分解能が実現されている。

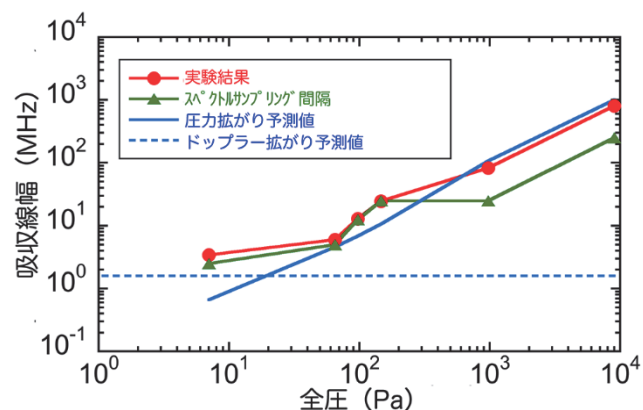


Fig. 11 Pressure broadening characteristic of the water absorption line at 0.557 THz.

4.2 低圧アセトニトリルガスの THz 分光

最後に、低圧アセトニトリルガス (CH_3CN) の THz 分光を行った。 CH_3CN は、星間物質や揮発性有機化合物 (VOC) と関連性の深いガスであり、その分析は重要である。 CH_3CN は、対称コマ型分子の構造を有しており、回転遷移周波数は以下の式で与えられる。

$$\nu = 2B(J + 1) - 2D_{JK}K^2(J + 1) \quad (3)$$

ここで、 B は回転定数 (=9.199 GHz)、 D_{JK} は遠心歪み定数 (=17.74 MHz)、 J と K は回転量子数である。式(3)から、2つの特徴的な THz 指紋スペクトルを示すことができる。式(3) 右辺の第 1 項から、吸収線群が 2B 間隔で現れ、その周波数間隔は GHz オーダーになる。また、式(3) 右辺の第 2 項から、各吸収線群は MHz オーダーの吸収線から構成されることになる。これら周波数ダイナミックレンジの広い THz 指紋スペクトルを、ギャップレス dFTS で取得する。

まず、2B 間隔 (GHz オーダー) で現れる吸収線群を測定するため、広帯域 THz 分光を行った結果が、Fig. 12(a)である。 $J=15\sim 53$ の 39 吸収線群が等間隔で分布している様子が確認でき、その周波数間隔は 2B (=18.398 GHz) に厳密に等しかった。等間隔の吸収線群以外の信号は、テラヘルツ波無しのバックグラウンド計測でも観測されたことから、電気アンプのノイズと思われる。次に、周波数 0.6~0.7 THz に分布する 6 吸収線群 ($J=32\sim 37$) を拡大したのが、Fig. 12(b)である。基底状態の各吸収線群の高周波側に振動励起状態の吸収線 (アスタリスク参照) が分布している様子が確認できる。 $J=34$ を拡大したスペクトルが Fig. 12(c)である。ここでは、 $K=0\sim 10$ までの吸収線が MHz 間隔で分布している様子が確認できる。更に、 $K=0\sim 1$ を拡大したスペクトルが Fig. 12(d)であり、12 MHz 間隔の $K=0$ と $K=1$ の吸収スペクトルが明確に確認できる。このように、ギャップレス dFTS の広い周波数ダイナミックレンジを利用することにより、THz 周波数において MHz~GHz オーダーの吸収線スペクトル構造を可視化することが出来た。

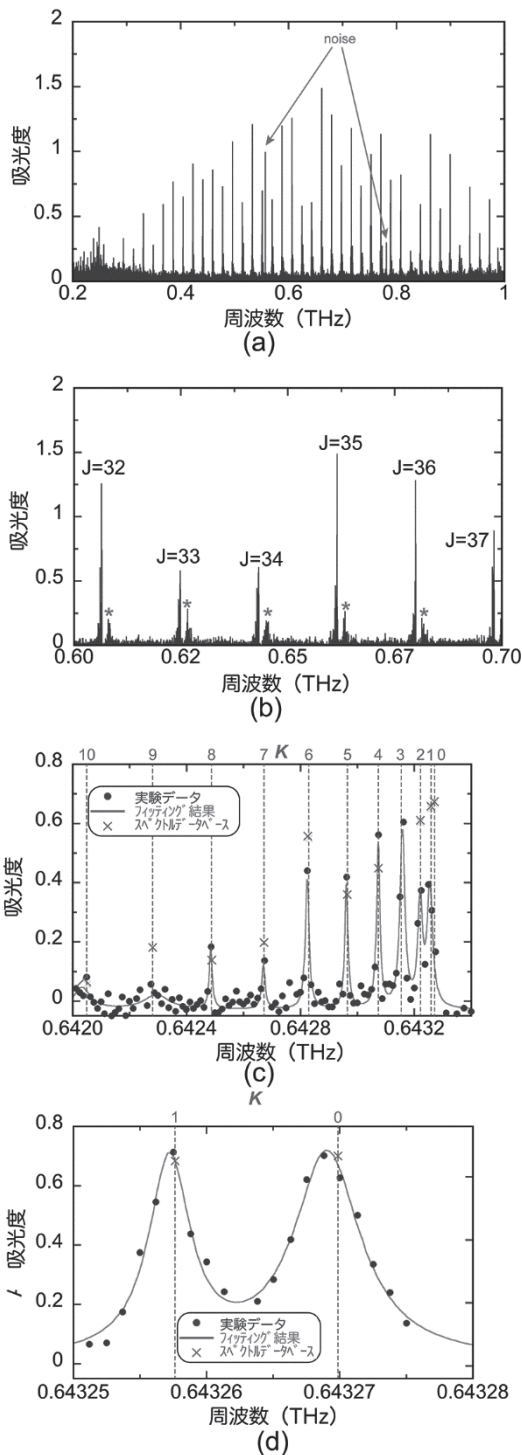


Fig. 12 Absorbance spectrum of low-pressure CH_3CN gas within a frequency range (a) from 0.2 to 1 THz, (b) from 0.6 to 0.7 THz, and (c) around 0.6428 THz with a spectral interleaving interval of 25 MHz. (d) Expanded absorbance spectrum for two adjacent absorption peaks around 0.643265 THz with a spectral interleaving interval of 1.25 MHz.

5. 最後に

本稿では、周波数安定化モード同期 THz パルス列を用いた離散フーリエ変換分光法について紹介した。THz コムの時間的描写である周波数安定化モード同期 THz パルス列の極めて正確な繰り返

し周期性と、離散フーリエ変換の良好な整合性を利用することにより、測定時間窓によって決まる理論限界スペクトル分解能を超えた性能が達成可能であることを示した。この手法の優位性は、THz 領域以外に、近赤外領域でも確認されており⁷⁾、様々な波長領域や電磁波を用いたフーリエ変換分光にも適用可能と思われる。

参考文献

- 1) P. R. Griffiths and J. A. D. Haseth: *Fourier Transform Infrared Spectrometry* (Wiley-Interscience, 2007).
- 2) D. M. Mittleman: *Sensing with THz Radiation* (Springer-Verlag, 2003).
- 3) S. A. Diddams: *JOSA B* **27** (2010) B51.
- 4) T. Yasui, Y. Kabetani, E. Saneyoshi, S. Yokoyama, and T. Araki: *Appl. Phys. Lett.* **88** (2006) 241104.
- 5) T. Yasui, Y. Iyonaga, Y.-D. Hsieh, Y. Sakaguchi, F. Hindle, S. Yokoyama, T. Araki, and M. Hashimoto: *Optica* **2** (2015) 460.
- 6) T. Yasui, Y. Kabetani, E. Saneyoshi, S. Yokoyama, and T. Araki: *Appl. Phys. Lett.* **88** (2006) 241104.
- 7) S. Okubo, Y.-D. Hsieh, H. Inaba, A. Onae, M. Hashimoto, and T. Yasui: *Opt. Express* **23** (2015) 33184.
(論文受付 2021 年 10 月 1 日, 論文受理 2021 年 12 月 11 日)

■ 著者紹介 ■

氏名 安井 武史
所属 徳島大学 ポスト LED フォトニクス研究所

(〒770-8506 徳島市南常三島町 2-1)
1997 年徳島大学大学院博士後期課程修了, 博士(工学). 2013 年奈良県立医科大学論文博士取得, 博士(医学). 1997 年通産省工業技術院計量研究所博士研究員, 1999 年大阪大学大学院基礎工学研究科助手(のち助教), 2010 年徳島大学大学院ソシオテクノサイエンス研究部教授, 2019 年徳島大学ポスト LED フォトニクス研究所所長, 現在に至る. 現在, THz, 光コム, 非線形光学顕微鏡の研究に従事

所属学会: 応用物理学会, 日本光学会, レーザー学会など

E-mail : yasui.takeshi@tokushima-u.ac.jp

