

## 科学研究費助成事業 研究成果報告書

平成30年6月8日現在

機関番号：33920

研究種目：基盤研究(C) (一般)

研究期間：2015～2017

課題番号：15K04699

研究課題名(和文) 分子構造分析を目指したファイバーレーザー励起中赤外光によるリアルタイム分光

研究課題名(英文) Broadband mid-infrared light source pumped by Yb fiber laser for molecular spectroscopy

研究代表者

鈴木 将之 (Suzuki, Masayuki)

愛知医科大学・医学部・准教授

研究者番号：60622371

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 3,700,000円

研究成果の概要(和文)：本研究では、高出力Ybファイバーレーザーの開発を進めて、これを励起源とした高出力かつ広帯域の中赤外光源の開発と中赤外光スペクトルをリアルタイムで計測できるアップコンバージョン分光システム開発を行った。はじめに過飽和吸収体とファイバーブラッググレーティングを用いて偏波保持ファイバーによる発振器と増幅器の開発に成功した。またダブルクラッドファイバーを用いて光パラメトリック増幅器の開発を進め、これを励起源とした中赤外生成を行った。また分光法に関しては超高速分光技術である時間伸張フーリエ分光の開発に成功した。

研究成果の概要(英文)：In this study, a broadband, high power mid-infrared (MIR) light source pumped by an Yb fiber laser system for a real time MIR spectroscopy have been investigated. At first, the Yb fiber chirped pulse amplification system having 615mW with pulse duration of 200 fs at 40 MHz repetition rate was developed. Then, the output power of 3W level was obtained by using a double-clad Yb fiber amplifier. Furthermore, an optical parametric amplifier system was constructed to obtain the MID IR pulse. Finally, a time-stretch dispersive Fourier transformation (TS-DFT) as an ultrafast spectrum measurement technique have been successfully demonstrated. This study open for new opportunity in the ultrafast MIR spectroscopy.

研究分野：光工学・光量子科学

キーワード：Ybファイバーレーザー 中赤外光生成 超高速分光 光パラメトリック増幅 アップコンバージョン分光

### 1. 研究開始当初の背景

中途失明疾患の緑内障や加齢黄斑変性症は網膜細胞の変性に起因することが知られているが、それらの病態の機序については十分には解明されていない。ごく最近、緑内障および加齢黄斑変性症の病態において、生体内に存在しないアミロイド (Amyloid :A) が存在することが報告された。これはアミロイド前駆体蛋白質 (Amyloid precursor protein: APP) の構造変化による可能性が指摘されているが、その発現は明確となっていない。そこで APP と A の吸収分光やポンププローブ分光を行い、その構造解析を通して A 化の要因を明確化できれば病態の新たな治療法の手がかりとなると考えた。

### 2. 研究の目的

本研究の目的は、Yb ファイバーレーザーを励起源とした高出力かつ広帯域の中赤外光源の開発と中赤外光スペクトルをリアルタイムで計測できるアップコンバージョン分光システム開発を進め、蛋白質の構造解析を目指した分光研究へ展開することである。本研究における光源開発の新しい取り組みは Yb ファイバーレーザー励起の差周波生成 (Sum Frequency Generation: SFG) と周波数領域の光パラメトリック増幅 (Optical Parametric Amplifier: OPA) により、高出力かつ広帯域の中赤外光生成を行うことである。また中赤外分光器に関しては、近赤外光と中赤外光によるアップコンバージョンにより得られる可視光スペクトル計測を通して、中赤外スペクトルのリアルタイム分光器の開発に取り組む。これら開発した装置を用いて、アミロイド前駆体蛋白質の吸収スペクトル分光とポンププローブ分光を通して、アミロイド が産出される過程を解明し、将来的には中途失明疾患の機序解明を目指す。

### 3. 研究の方法

はじめに波長 1040nm の Yb 添加ファイバーレーザーシステムの開発を行う。つぎにフォトニック結晶ファイバー (Photonic Crystal Fiber: PCF) を用いて波長 1040nm の光を波長 1250nm までシフトさせて、これを信号光として SFG により波長 6000nm のアイトラー光生成を行う。得られた波長 6000nm の光を周波数領域の OPA にて広帯域増幅を行い、数 100mW 級の出力を目指す。さらに非線形光学結晶に得られた中赤外光と赤外光を入射してアップコンバージョン過程により得られる可視光の分光スペクトルから中赤外光のスペクトルの再構築を行う。同時にリアルタイムでスペクトル計測が実現できる時間伸張フーリエ分光法 (Time-Stretch Dispersive Fourier Transform: TS-DFT) の開発にも着手する。最終的には開発したシステムを用いて APP または A $\beta$  ファントムの吸収とポンププローブ分光計測を通して、A $\beta$  産出過程の解明と A $\beta$  の詳細な構造解析を進める。

### 4. 研究成果

Yb ファイバーレーザーシステムの開発はじめに中赤外光源を生成させるための Yb ファイバーレーザーシステムの開発を行った。発振器とパルス伸張器、増幅器、パルス圧縮器にて構成されるシステムを構築した。初期の研究においては非線形偏波回転利用した発振器を開発してシステム構築を進めた。しかし研究の進捗に伴い、高い出力安定性が要求されることが実験的に明確となった。そこで偏波保持ファイバー (PMF) と半導体過飽和吸収体 (Semiconductor saturable absorber mirror: SESAM) とファイバーブラッグ鏡 (Fiber Bragg grating: FBG) を用いた発振器の構築を行った。図 1 に開発したシステムのブロック図を示す。

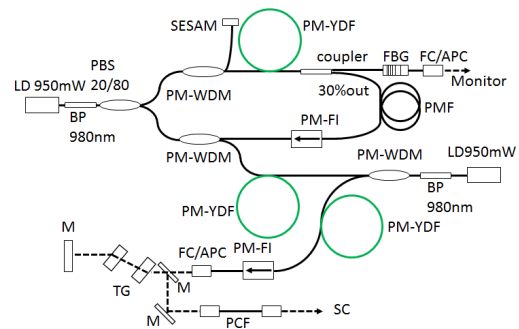


図 1. 開発した Yb ファイバーレーザーシステム

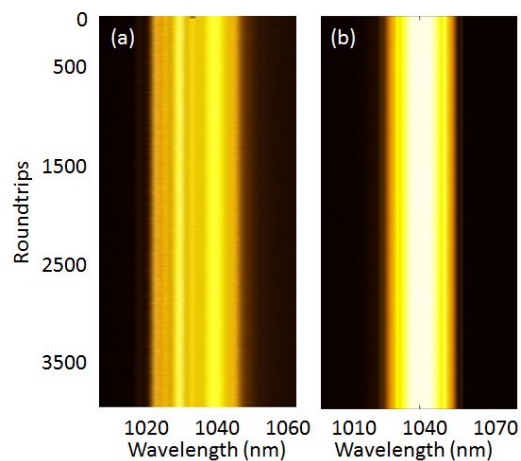


図 2. シングルショットスペクトル計測結果 (a)増幅後および(b)発振器からの 4000 パルスにおけるスペクトルの二次元強度分布イメージ

発振器から出力されるレーザーのエネルギーは 7mW、スペクトル幅は 5.7nm、繰り返し周波数 39.74MHz のモード同期を得た。この光を長さ 10m の PMF を用いて、パルス幅を 6.8ps まで伸張した。つぎに発振器の励起源である LD の一部の光を用いて Yb ファイバー前置増幅器を構築した。エネルギー 362mW の LD で励起した結果、出力 113mW まで増幅す

ることに成功した。さらに出力 900mW の LD と WDM、Yb ファイバーにて構成された主増幅器を用いて、出力 615mW までを増幅を行った。その後、ファイバーコリメーターを用いて、空間に光を取り出し、透過型回折格子対で構成されるパルス圧縮器(1000lines/mm)にて、増幅されたレーザーパルスの圧縮を行い、パルス幅 200fs、出力 520mW を得た。このとき TS-DFT を用いて、出力されるレーザーパルスのシングルショットスペクトル計測を行った。その結果、図 2 に示すようにショットごとのスペクトルの安定性は発振器から出力されるレーザーパルスと同等な高い安定性を得ることに成功した。

つぎに得られたレーザーパルスを PCF に入射して波長 1250nm 近傍のスペクトル生成を行った。ファイバー長の最適化を含めて複数種類の PCF を用いてスペクトル計測を行い、図 3 に示すような波長 1250nm の光を得ることに成功した。開発したシステムを実験室にて 7 時間連続で運転させたときの広帯域光の出力安定性計測を行った。図 4 に示すとおり安定性は 0.5%(RMS) と非常に高い安定性を得ることに成功した。

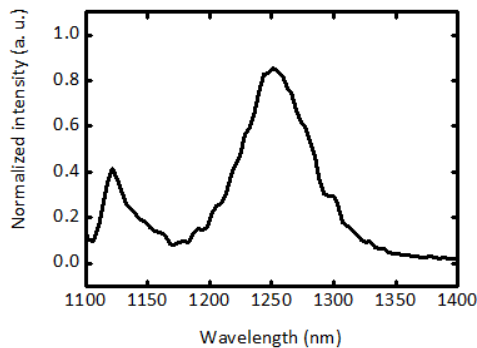


図 3. PCF にレーザーを入射して得られた波長 1250nm のスペクトル

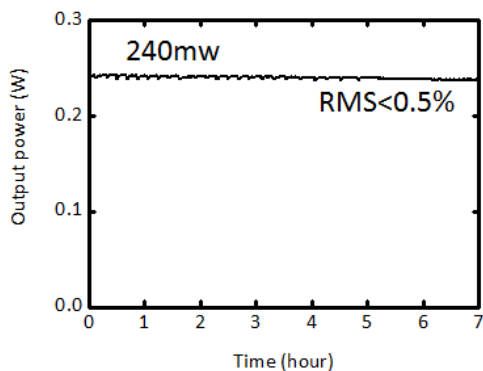


図 4. 得られた広帯域光の出力安定性

光パラメトリック増幅器の励起源の開発

つぎに光パラメトリック増幅器の励起源となる大出力 Yb ファイバーレーザーの開発

を行った。システムは Yb 添加ダブルクラッドファイバー (Double clad fiber: DCF) (コア径 10 $\mu$ m または 20 $\mu$ m) と波長 976nm、出力 9W の LD を用いて構築した。シード光は項目で開発したシステムの主増幅器増幅器からの一部の光を使用した。その結果、増幅後のスペクトルの短波長と長波長域に鋭いピークを有する (cat's ear) 形状のスペクトルが得られた。これは増幅器内で非線形効果が生じることで引き起こされたと考えられる。そこで SMF の長さを 100m まで延長して、パルス幅を 85ps まで伸張した。その結果、非線形効果が生じることなく増幅することに成功した。図 5 にスペクトルを示す。このとき出力は 3.5W であった。透過型回折格子対を用いてパルス圧縮を行い、パルス幅 200fs 程度まで圧縮可能であることを確認した。しかしパルスのすその部分に時間幅 2ps 程度のペDESTAL が存在することを確認した。さらなる大出力かを目指して、コア径 20 $\mu$ m の DCF を用いたシステムを構築したが、スペクトルに周期的なモジュレーションが存在することを確認したためシステムに採用しなかった。これはコア径が拡大化することで基本モード以外の光が伝播されるためと考えられる。

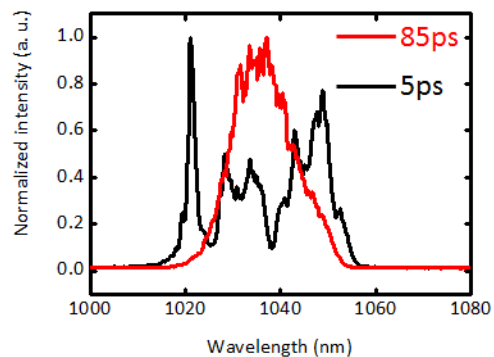


図 5. 得られたスペクトル 赤線はパルス幅 85ps、黒線はパルス幅 5ps のときのスペクトル

光パラメトリック増幅による中赤外光生成実験

非線形光学結晶の AgGaS<sub>2</sub> を用いて波長 1040nm のレーザーを励起光そして波長 1250nm のレーザーを信号光とした光パラメトリック増幅による波長 6000nm のアイドラー光生成を進めた。はじめに開発した Yb ファイバーレーザーシステムを用いて得られた波長 1040nm の光と 1250nm 光をダイクロイックミラーで分離して、フィルターを用いてそれぞれの光のスペクトル形成を行った。その後、ダイクロイックミラーを用いて二つの波長の光を同軸に伝播させて、銀コート凹面ミラーを用いて AgGaS<sub>2</sub> に集光して中赤外光生成を行い、中赤外光生成に成功した。つぎに周波数領域における OPA による中赤外光増幅システムの構築を行った。このとき得られたアイドラー光の出力エネルギーは極めて低かった。そこで非線形光学結晶の

AgGaS<sub>2</sub> を温度制御型の反転分極結晶に置き換えて高出力化を進めている。最適化に関する研究の一部は現在も進行中であり、今後の課題としたい。

#### 超高速分光システムの構築

赤外光のスペクトルを計測するための分光システムにおける分光器部分の構築を行った。回折格子と像転送光学系にて CMOS ラインセンサー上に結像し、得られる分光スペクトルから中赤外光のスペクトルを構築できるシステム開発を進めた。その結果、得られたスペクトルを 70kHz 動作で取得することに成功した。さらに高速動作を実現するために TS-DFT によるシングルショットスペクトル計測技術の開発に取り組んだ。TS-DFT は光パルスが媒質中を伝播する際に与えられる群速度分散を利用して、パルス伸張した光にスペクトル情報を反映させる分光法である。本研究においては長い距離の SMF を伝播させ、その光を高速の光検出器とデジタルにてデジタル信号化することで光スペクトルの計測を実現した。この分光法を用いて、モード同期レーザーの繰り返し周波数に対応した 70 万/秒のフレームレートでスペクトルを計測することに成功した。

そこで非線形偏波回転を利用したモード同期レーザーパルスのスペクトル計測を行った。その結果、ある特定の共振器条件下においてスペクトル形状が突然変化し、のちに数 100ns 後に元の形状に戻る Soliton Explosion を世界に先駆けて計測することに成功した。結果の一例を図 6 に示す。特にストレッチパルスの構成を有した Yb ファイバーレーザーにおいて Soliton Explosion が観測された例は報告例が無かったため、その発生機構の理解を進めた。

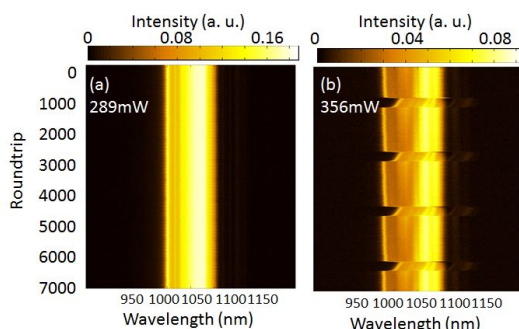


図 6. シングルショットスペクトル計測結果 (a)モード同期および(b)Soliton explosion 動作における 7220 パルスのスペクトルの二次元強度分布イメージ

#### 5. 主な発表論文等

(研究代表者、研究分担者及び連携研究者には下線)

[雑誌論文](計 7 件)

1. 鈴木将之, “ファイバーレーザー励起波長可変、中赤外光源と生体分光への応用、” 埼玉医科大学雑誌、第 42 巻、第 2 号 pp. 155-157 (2016). (査読無し)
2. 鈴木将之、米谷新、黒田寛人, “波長 1μm 帯 OCT 用広帯域 Yb 添加ファイバーレーザー、” 光アライアンス 2016 年 5 月号、光ファイバーが面白い-さまざまな応用へのヒント-, 日刊工業新聞社 27 (5), pp. 1-4 (2016). (査読無し)
3. T. Shoji, H. Kuroda, M. Suzuki, H. Ibuki, M. Araie, and S. Yoneya, “Vertical asymmetry of lamina cribrosa tilt angles using wide bandwidth, femtosecond mode-locked laser OCT; effect of myopia and glaucoma,” Graefes Archive for Clinical and Experimental Ophthalmology 255(1), pp. 197-205 (2017). (査読有)
4. M. Suzuki, S. Yoneya, and H. Kuroda, “Single-shot spectroscopy of broadband Yb fiber laser,” Proc. SPIE Vol. 10089, 1008905/1-6. (査読有)
5. T. Shoji, H. Kuroda, M. Suzuki, H. Ibuki, M. Araie, and S. Yoneya, “Glaucomatous changes in lamina pores shape within the lamina cribrosa using wide bandwidth, femtosecond mode-locked laser OCT,” PloS one 12 (7), e0181675 (2017). (査読有)
6. 鈴木将之、黒田寛人, “時間伸張分光法による Yb ファイバーレーザーにおける Soliton Explosion 観測” レーザー学会第 511 回研究会報告「ファイバーレーザー技術」pp.45-49 (2017). (査読無し)
7. M. Suzuki, O. Boyraz, H. Asghari, P. Trinh, H. Kuroda, and B. Jalali, “Spectral periodicity in soliton explosions on a broadband mode-locked Yb fiber laser using time-stretch spectroscopy,” Opt. Lett. 43(8), 1862-1865 (2018). (査読有)

[学会発表](計 19 件)

1. 鈴木将之、Rashid A Ganeev、米谷新、黒田寛人、”波長 1μm 帯における広帯域ノイズ状パルス生成、”第 76 回応用物理学関係連合講演会 秋季 (2015 年 9 月 13 日 名古屋国際会議場) 13-a-2D-2
2. 鈴木将之、米谷新、黒田寛人, “光コヒーレンストモグラフィーの最前線、”第 36 回日本レーザー医学会総会 (2015 年 10 月 24 日、栃木県総合文化センター) IIS3-2(招待講演)
3. 鈴木将之、Rashid A Ganeev、米谷新、黒田寛人、”広帯域ノイズライク Yb ファイバーレーザーの開発、” レーザー学会 学術講演会第 36 回年次大会 (2016 年 1 月 9-11 日、名城大学) 11p -5
4. 庄司拓平、黒田寛人、鈴木将之、伊吹寿士、木村至、新家眞、米谷新, “篩状板孔形状と緑内障および篩状板深度・位置の関連、” 第 120 回日本眼科学会総会(2016

- 年 4 月 7 日、仙台国際センター、東北大学百周年記念会館) O1-027
5. 木村至、黒田寛人、鈴木将之、伊吹寿土、庄司拓平、新家眞、米谷新、“レーザー光干渉断層計による中心窩無血管領域の検討、” 第 120 回日本眼科学会総会 (2016 年 4 月 7 日、仙台国際センター、東北大学百周年記念会館) O1-068
  6. 鈴木将之、“ファイバーレーザーによる高分解能 OCT と分子分光への応用、” (2016 年 12 月 2 日、第 7 回「レーザーバイオ医療」技術専門委員会、沖縄産業支援センター)(招待講演)
  7. 鈴木将之、米谷新、黒田寛人、“非線形偏波回転による Yb ファイバーレーザーにおける Soliton Explosion の観測、” レーザー学会学術講演会第 37 回年次大会講演、(2017 年 1 月 7 日、徳島大学 常三島キャンパス 理工学部共通講義棟) 07p-1
  8. M. Suzuki, S. Yoneya, and H. Kuroda, “Single-shot spectroscopy of broadband Yb fiber laser,” Proc. SPIE Vol. 10089, Real-time Measurements, Rogue Phenomena, and Single-Shot Applications II, The Moscone Center San Francisco, California, United States, 28 January - 2 February 2017, 1008905/1-6.(招待講演)
  9. 鈴木将之、米谷新、黒田寛人、“部分的モード同期 Yb ファイバーレーザーにおける Soliton Explosion,” 第 64 回応用物理学会春季学術講演会 春季(2017 年 3 月 15 日、パシフィコ横浜) 15a-213-5
  10. M. Suzuki, S. Yoneya, and H. Kuroda, “Single-Shot Spectral Measurements in Soliton Explosion on Yb Fiber Laser with Time-Stretched Dispersive Fourier Transformation,” The 6th Advanced Lasers and Photon Sources Conference (ALPS'17), Pacifico Yokohama, Yokohama, Japan on April 18-21, 2017, ALPS4-4/1-2.
  11. 鈴木将之、黒田寛人、“時間伸張フーリエ分光による Yb ファイバーレーザー共振器内のシングルショットスペクトル計測、” 第 78 回応用物理学会秋季学術講演会 秋季(2017 年 9 月 5 日、福岡国際会議場) 5a-C14-6
  12. 鈴木将之、黒田寛人” 時間伸張分光法による Yb ファイバーレーザーにおける Soliton Explosion 観測” レーザー学会第 511 回研究会「ファイバレーザー技術」(2017 年 11 月 10 日、名古屋大学ベンチャー・ビジネス・ラボラトリー)
  13. 鈴木将之、黒田寛人、“フォトリック結晶ファイバーにおけるチェレンコフ放射を利用した Yb ファイバーレーザー励起広帯域赤外光生成、” レーザー学会学術講演会第 38 回年次大会講演、(2018 年 1 月 24 日、京都市勧業館みやこめっせ) 24aVII-12
  14. 鈴木将之、黒田寛人、“Soliton Explosion における Yb ファイバーレーザー共振器内のスペクトル変遷、” レーザー学会学術講演会第 38 回年次大会講演、(2018 年 1 月 25 日、京都市勧業館みやこめっせ) 25a-VII-11
  15. M. Suzuki, O. Boyraz, M. Asghari, P. Trinh, H. Kuroda, and B. Jalali, “Observing soliton explosion in unstable mode locked Yb fiber laser with time stretch spectroscopy,” Proc. SPIE. Vol.10517, Real-time Measurements, Rogue Phenomena, and Single-Shot Applications III, The Moscone Center San Francisco, California, United States, 27 January - 1 February 2018, 1051706. (招待講演)
  16. 鈴木将之、“時間伸張フーリエ分光による広帯域光パルス形成のダイナミクス” 超高速光エレクトロニクス(UFO)研究会 第 4 回研究会 「超高速を接点に—光通信とバイオフォトニクス—」(2018 年 3 月 2 日、東北大学電気通信研究所本館 3F セミナー室 M331)(招待講演)
  17. 鈴木将之、黒田寛人、“フォトリック結晶ファイバーを用いた Yb ファイバーレーザー励起広帯域光生成、” 第 65 回応用物理学会春季学術講演会 春季(2018 年 3 月 18 日、早稲田大学西早稲田キャンパス) 18p-P1-2
  18. M. Suzuki, and H. Kuroda, “Spectral-Temporal Dynamics of Soliton Explosion in Passively ModeLocked Yb Fiber Laser,” The 7th Advanced Lasers and Photon Sources Conference (ALPS'17), Pacifico Yokohama, Yokohama, Japan on April 24 – 27, 2018, ALPS10-D1-5.
  19. M. Suzuki, O. Boyraz, M. H. Asghari, P. D. Trinh, H. Kuroda, and B. Jalali, “Spectral Dynamics of Soliton Explosion in a Passively Mode-Locked Yb Fiber Laser with Time Stretch Spectroscopy,” 2nd URSI Atlantic Radio Science Conference (URSI 2018 AT-RASC), Gran Canaria, Spain, 28 May- 1 June S-D13-05. (招待講演)
- 〔図書〕(計 0 件)
- 〔産業財産権〕
- 出願状況(計 0 件)
- 名称：  
 発明者：  
 権利者：  
 種類：  
 番号：  
 出願年月日：  
 国内外の別：
- 取得状況(計 0 件)

名称：  
発明者：  
権利者：  
種類：  
番号：  
取得年月日：  
国内外の別：

〔その他〕  
ホームページ等  
なし

## 6. 研究組織

### (1) 研究代表者

鈴木 将之 (SUZUKI MASAYUKI)  
愛知医科大学・医学部・准教授  
研究者番号：60622371