

機関番号：30118

研究種目：基盤研究（C）

研究期間：2008～2010

課題番号：20560037

研究課題名（和文） CARS顕微分光のための波形整形PCF光源の開発

研究課題名（英文） Development of pulse-shaped PCF light sources for CARS microscopic spectroscopy

研究代表者

唐澤 直樹 (KARASAWA NAOKI)

千歳科学技術大学・総合光科学部・准教授

研究者番号：00337099

研究成果の概要（和文）：

本研究ではフォトニック結晶ファイバーに超短光パルスを導入して得られる基本ソリトンパルスを用いて、試料の組成と微細構造の知見を同時に得るために重要な新たな広帯域コヒーレントアンチストークスラマン散乱顕微分光システムの開発を行った。このため基本ソリトンパルスの可変波長光源としての特性評価を行い、波形整形器及び音響光学素子を用いてその広帯域化を行った。また単一ビームの顕微分光システムの開発も行った。

研究成果の概要（英文）：

In this study, we have developed novel coherent anti-Stokes Raman scattering microscopic spectroscopy using fundamental soliton pulses generated by propagating ultra-short optical pulses in a photonic crystal fiber and this spectroscopy is very useful to obtain the constituents and the microscopic structures of a sample. We have studied the properties of the soliton pulses as a wavelength-variable light source and have broadened the spectra using a pulse shaper and an acousto-optical modulator. Also, we have developed single-beam spectroscopy.

交付決定額

（金額単位：円）

	直接経費	間接経費	合計
2008年度	1,800,000	540,000	2,340,000
2009年度	600,000	180,000	780,000
2010年度	500,000	150,000	650,000
年度			
年度			
総計	2,900,000	870,000	3,770,000

研究分野：

科研費の分科・細目：応用光学・量子光工学

キーワード：超短光パルス、非線形分光、フォトニック結晶ファイバー、光ソリトン、ラマン散乱

## 1. 研究開始当初の背景

ガラスファイバー中の導波方向に微細な空孔構造を有するフォトニック結晶ファイバー（PCF）が開発されて以来、それにフェムト秒オーダーの超短光パルスを伝搬させると近紫外から近赤外までのスペクトルを有する超広帯域光パルスが生成されるこ

とが見出されてきた。特にコア直径が2 μm程度以下のPCFを用いると、零分散波長が代表的フェムト秒レーザーであるチタンサファイアレーザーの中心波長である800 nm以下にでき、このとき入射光パルスは高次ソリトンとして伝搬する。そして高次分散の影響のためPCF中で高次ソリトンは基本ソ

リトンに分裂する。PCF中を伝搬する際、基本ソリトンはラマン効果によるソリトン自己周波数シフトにより波長が長波長にシフトする。最終的に出射される基本ソリトンの中心波長はPCF中での基本ソリトン発生タイミングによって変化し、早く発生すればするほどその中心波長は長波長にシフトする。この基本ソリトンの発生タイミングは入射パルスのソリトン数やピークパワーによって決まり、これはPCFから出射される基本ソリトンパルスの中心波長が入射パルスの特性を制御することによって可変できることを示す。

PCFからの超広帯域光波、特に基本ソリトンパルスの重要な応用にコヒーレントアンチストークスラマン散乱(CARS)顕微分光への利用が考えられる。CARS顕微分光は生体試料などのマイクロメートルオーダーの微細構造や化学組成を非破壊的に調べることのできる大変有用な手法であり、将来的に医療やナノテクノロジー分野での利用が期待されている。CARS光波はポンプ光波及びストークス光波の二つのパルスレーザー光波が非線形光学的な相互作用をすることによって生じる光波であり、その周波数 $\omega_{as}$ はポンプ光波の周波数を $\omega_p$ 、ストークス光波の周波数を $\omega_s$ とすると、 $\omega_{as}=2\omega_p-\omega_s$ で与えられる。ポンプ光波とストークス光波を顕微鏡下で試料に集光して照射すると、共鳴する分子振動を有する試料の部位からのみCARS光波が選択的に発生する。この方法は蛍光顕微鏡による試料の蛍光観察に比較して、発生する光波の強度が非線形光学効果によるため高分解能なこと、染色の必要がないこと、発生光波がコヒーレントで強力なこと、発生光波の周波数により分子の識別が可能なことなどの多くの特徴を有する。CARS顕微鏡の光源としてはポンプ光波とストークス光波の二つが必要であるが、その周波数差が可変であり、かつ大きな周波数差を与えることができると、試料中の多くの分子振動を選択的に観測できることになり有利である。これら二つの光波を発生する方法として従来は二台の波長可変レーザー発振器を用いる方法などが用いられてきたが装置が大掛かりとなり高価であるという問題点があった。本研究代表者らはCARS分光のためのポンプ光とストークス光波を単一のレーザー発振器から得ることを目的として、レーザー発振器からの光波を分割し、一方をポンプ光波として用い、もう一方の光波をPCFに伝搬して基本ソリトンを発生させそれをストークス光波として用いるCARS光波発生実験を行ってきた。しかしポンプ光波とストークス光波を試料に照射する際、ダイクロイックミラーを用いてこれらを重ね合わ

せ同一ビームとする必要があるなど、従来の光学顕微鏡の光源として用いるのには不便であった。

## 2. 研究の目的

本研究の目的は超短光パルスを伝搬させることによりスペクトルの超広帯域化が可能なPCFを用い、さらに空間光変調器等を利用してスペクトル形状がCARS顕微分光に最適化された超広帯域光波を生成することである。また、従来はCARS光波発生のためにはポンプ光波とストークス光波の2つの光波を発生させ、それらをダイクロイックミラーなどで重ね合わせる必要があったが、本研究ではPCFへの入射パルスを波形整形することによって、PCFからの出射光が直接、広い波長範囲で高波長分解能なCARS顕微分光に適する光波になるようにすることも目的とする。もしこれが可能であればPCFから出射した単一の光波を顕微鏡に導入することによりCARS顕微分光を行えるようになり、光学系の大幅な簡易化と実用性の向上が得られる。

## 3. 研究の方法

最初に液晶の空間光変調器を用いた波形整形光学系について、その動作特性の把握と試作したプログラムの動作確認を行う。これはチタンサファイアレーザーからの光パルスを波形整形装置によって波形整形し、その波形を周波数分解光ゲート装置によって確認することにより行う。このとき特にパルスに群遅延分散や2次分散を与えて群遅延やチャープが正しく与えられるかを確認する。現存する液晶空間光変調器の素子数(320ピクセル)の制限を考慮して、与えられる群遅延やチャープの限界値を評価する。次にこの波形整形された光パルスをPCFに伝搬して発生する超広帯域光波のスペクトルがどのように変化するかを調べる。さらにCARS計測でストークス光波として用いられる近赤外基本ソリトンパルスの中心波長が波形整形によってどのように変化するかを調べる。このとき波形整形としては入射パルスに2次分散を与えてチャープを与える場合について特に注目する。また、その中心波長及び遅延時間と入射チャープの関係も詳細に調べる。次にチタンサファイアレーザーからの光パルスをビームスプリッターで2つに分割し、一方をポンプ光波とし、波形整形されたパルスをストークス光波とする光学系を用いてCARS信号を発生させる実験を行う。このとき空間位相変調器に与える位相によって基本ソリトンパルスの群遅延制御や分散制御を行い、そしてこれらの制御を

行うことによるCARS信号の最適化をはかるとともにCARS信号のスペクトル範囲の拡大をはかる。波形整形を用いない光学系ではCARS信号として現状では分子振動周波数がC-H振動である約 $3000\text{ cm}^{-1}$ に対応するものに限られていたが、約 $500\text{ cm}^{-1}$ 程度以上のすべての分子振動周波数に対応するCARS信号が観測可能になることを目指す。このときストークス光波の中心波長及び遅延時間制御はPCFに入射する光パルスのチャープと群遅延を波形整形光学系で制御することにより行い、これを一定時間間隔で切り替えることにより自動的にCARS信号を広いスペクトル範囲で取得するシステムの構築を目指す。以上と並行して、現状のCARS光学系にCCDカメラを新たに設置し、CARS測定の際に試料を拡大観察しながら行えるようにする。

初年度以降は波形整形された光波をPCFに入射し、それからの出射光のみでCARS信号が発生可能な光学系を試作する。そして波形整形のためのプログラムの開発、そしてフィードバックシステムの開発を行う。このような単一の光波で広帯域のCARS光波が発生可能な光源システムが実現すると、市販されている光学顕微鏡にこの光源を導入することによりCARS顕微分光が容易に構成できるようになるので、最終的にはその構成を目指す。この光学系において、PCFから出射する光波はポンプ光波とそれより長波長のストークス光波の両方を含み、かつそれらの時間的タイミングが試料で一致するようにそれぞれのストークス光波の波長で調整されている必要がある。このため、PCFに入射するパルスを波形整形により2パルス化し、それぞれのパルスの時間差および強度比、さらにはチャープの制御を行う技術を開発する。単一のフェムト秒光パルスを2パルス化する波形整形のための位相パターンを求めるためにはコンピュータによる繰返し最適化計算が必要であるが、そのための手法として焼きなまし(simulated annealing)法や遺伝的アルゴリズムによる方法を適用する。基本ソリトン波長を高速に変更可変とするためには位相パターンの切り替えを高速に行う必要があるが、あらかじめ必要な位相パターンを計算してメモリー中に保存しておくなどの工夫を行い、最終的には望まれる2パルスへの波形整形がリアルタイムで行えるようなシステムの構築を目指す。

CARS光波のスペクトル分解能を向上させるといふ観点から、ポンプ光波のスペクトルはなるべく狭帯域であることが望まし

いが、このスペクトル狭帯域化をPCFにおけるスペクトル圧縮効果を利用することにより行う。これは負のチャープを持ったパルスがPCFを伝搬すると自己位相変調効果によりチャープが小さくなると共にスペクトルが狭帯域化する現象である。このスペクトル圧縮のための入射パルスの条件を実験的・理論的に検討し、入射パルスに必要な負のチャープ量を評価する。そして波形整形で2パルスに分割したパルスのポンプ光波に対応するパルスにはあらかじめ負のチャープをかけておく手法を開発する。

#### 4. 研究成果

(1) PCFから出射される基本ソリトンパルスの中心波長と遅延時間の制御を入射パルスの強度やチャープによって行った。この基本ソリトンパルスをストークス光波として用いる広帯域( $500\sim 3000\text{ cm}^{-1}$ )CARS計測を実証した。このとき中心波長と遅延時間の異なる5~6種類の位相パターンを波形整形器で用意し、それらを自動的に切り替えることにより広帯域CARS計測を行う光学系を開発した。さらに測定時間を短縮するために1つの位相パターンで2~3のソリトンパルス列を発生させ、それらを切り替えることで広帯域CARS計測を光速で行う光学系も開発した。

(2) 音響光強度変調素子を用いてPCFへの入射パルスの強度を高速に変調し、発生させる基本ソリトンパルスの中心波長を高速に変化させることによって発生される擬似スーパーコンティニューム光源によるCARS計測を行った。この場合の問題点は異なる中心波長を持つ光波の群遅延が異なっており広帯域のCARS信号を同時に発生させるのが困難なことであったが、高屈折率ガラスのブロックを用いた単純な光学系で群遅延の補償が可能であることを示し、これによりさらなる広帯域CARS計測の高速化を実証した。

(3) PCFから出射される単一ビームを用いたCARS計測光学系を実証した。このときPCFにポンプ光波とストークス光波に対応する2つの光波を入射する必要があるが、それらを干渉計により発生する方法と、波形整形器を用いて発生する方法の2つを試した。また、ポンプ光波に関してはスペクトルが狭い程波長分解能が向上するため、PCF中の自己位相変調を用いたスペクトル圧縮効果についても検討し、現在使用しているPCFを用いてスペクトルの狭帯域化が可能であることを実験的に示した。また実験結果を伝搬シミュレーション結果と比較した。

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 5 件)

K. Tada, A. Yamanaka, and N. Karasawa, “Broadband coherent anti-Stokes Raman scattering microspectroscopy using the soliton pulses from a photonic crystal fiber – observation of Raman line in diamond powders,” *J. of Nonlinear Opt. Phys. and Materials.*, Vol. 19, pp. 723-728 (2010). 査読有

N. Karasawa and K. Tada “The generation of dispersive waves from a photonic crystal fiber by higher-order mode excitation,” *Optics Express*, Vol. 18, pp. 5338 -5343 (2010). 査読有

K. Tada and N. Karasawa, “Broadband coherent anti-Stokes Raman scattering spectroscopy using soliton pulse trains from a photonic crystal fiber,” *Opt. Commun.*, Vol. 282, pp. 3948-3952 (2009). 査読有

K. Tada and N. Karasawa, “Broadband coherent anti-Stokes Raman scattering microscopic spectroscopy using variable-wavelength soliton pulses from a photonic crystal fiber,” *Mol. Cryst. Liq. Cryst.*, Vol. 504, pp. 181-188 (2009). 査読有

K. Tada and N. Karasawa, “Broadband coherent anti-Stokes Raman scattering spectroscopy using pulse-shaper-controlled variable-wavelength soliton pulses from a photonic crystal fiber,” *Jpn. J. Appl. Phys.*, Vol. 47, pp. 8825-8828 (2008). 査読有

[学会発表] (計 13 件)

夗田量宏、唐澤直樹 「フォトニック結晶ファイバーを用いたスペクトル圧縮とソリトンパルスによる波形整形単一ビーム CARS 分光」第 58 回応用物理学関係連合講演会、神奈川工科大学、2011 年 3 月 24 日

夗田量宏、唐澤直樹 「PCF からの単一ビームだけを用いる CARS 分光へ向けた狭帯域ポンプ光の生成」第 46 回応用物理学会北海道支部学術講演会、第 7 回日本光学会北海道地区、室蘭工業大学、2011 年 1 月 7 日

N. Karasawa (invited) and K. Tada “Generation of broadband optical pulses and their application to nonlinear microscopy,” 11<sup>th</sup> Chitose International Forum on Photonic Science, Chitose Institute of Science and Technology, Oct. 15, 2010

K. Tada and N. Karasawa “Single oscillator coherent anti-Stokes Raman scattering microspectroscopy using a single beam from a photonic crystal fiber,” 11<sup>th</sup> Chitose International Forum on Photonic Science, Chitose Institute of Science and Technology, Oct. 15, 2010

夗田量宏、唐澤直樹 「フォトニック結晶ファイバーからの単一ビームを用いた CARS 顕微分光」第 71 回応用物理学会学術講演会、長崎大学、2010 年 9 月 14 日

K. Tada, A. Yamanaka, and N. Karasawa “Broadband coherent anti-Stokes Raman scattering microspectroscopy using the soliton pulses from a photonic crystal fiber – observation of Raman line of diamond powders,” The International Conference on Nanophotonics 2010, Tsukuba, June 1, 2010

K. Tada and N. Karasawa “Broadband coherent anti-Stokes Raman scattering spectroscopy using a quasi-supercontinuum light source,” Conference on Lasers and Electro-Optics, 2010, San Jose, USA, May18, 2010

夗田量宏、唐澤直樹 「ソリトン擬似スーパーコンティニューム光を用いた広帯域 CARS 顕微分光」第 57 回応用物理学関係連合講演会、東海大学、2010 年 3 月 17 日

夗田量宏、唐澤直樹 「擬似スーパーコンティニューム光源による広帯域コヒーレントアンチストークスラマン散乱顕微分光」第 57 回応用物理学会北海道支部学術講演会、第 6 回日本光学会北海道地区、北海道大学、2010 年 1 月 8 日

K. Tada and N. Karasawa, “The generation of dispersive waves from a photonic crystal fiber by a higher-order mode excitation,” 10<sup>th</sup> Chitose International Forum on Photonic Science & Technology, Chitose Institute of Science and Technology, Nov. 13, 2009.

夗田量宏、小林壮一、唐澤直樹 「フォトニック結晶ファイバを用いた基本ソリトンパルスの発生とその分光への応用」電子情報通信学会光ファイバ応用技術研究会・光通信システム研究会、千歳アルカディア・プラザ、2009年8月28日

夗田量宏、唐澤直樹 「PCF からの基本ソリトンパルスを複数同時に用いた広帯域 CARS 顕微分光法」第 56 回応用物理学関係連合会、筑波大学、2009

年 3 月 31 日

K. Tada and N. Karasawa, “Broadband coherent anti-Stokes Raman scattering microscopic spectroscopy using variable-wavelength soliton pulses from a photonic crystal fiber,” Korea-Japan Joint Forum (KJF) 2008 on Organic Materials for Electronics and Photonics, Chitose Institute of Science and Technology, Oct. 23, 2008.

[図書] (計 3 件)

N. Karasawa and K. Tada “Generation of broadband optical pulses and their application to nonlinear microscopy,” in “Polymer Photonics, and Novel Optical Technologies,” Y. Kawabe and M. Kawase Eds. (PWC Publishing, 2011).

K. Tada and N. Karasawa “Single oscillator coherent anti-Stokes Raman scattering microspectroscopy using a single beam from a photonic crystal fiber,” in “Polymer Photonics, and Novel Optical Technologies,” Y. Kawabe and M. Kawase Eds. (PWC Publishing, 2011).

K. Tada and N. Karasawa “The generation of dispersive waves from a photonic crystal fiber by a higher-order mode excitation,” in “Optical devices and systems, biomedical and green technologies,” S. Kobayashi and H. Sasabe Eds. (PWC Publishing, 2010).

[その他]

ホームページ等

<http://www.chitose.ac.jp/~n-karasa>

## 6. 研究組織

### (1) 研究代表者

唐澤 直樹 (KARASAWA NAOKI)

千歳科学技術大学・総合光科学部・准教授

研究者番号：00337099

### (2) 研究分担者

( )

研究者番号：

### (3) 連携研究者

( )

研究者番号：