

令和 5 年 5 月 11 日現在

機関番号：12601

研究種目：研究活動スタート支援

研究期間：2021～2022

課題番号：21K20500

研究課題名（和文）FDMLによるタイムストレッチ分光用広帯域中赤外光源の開発

研究課題名（英文）Development of Broadband mid-IR sources via FDML

研究代表者

中村 卓磨（Nakamura, Tauma）

東京大学・大学院理学系研究科（理学部）・特任助教

研究者番号：40906252

交付決定額（研究期間全体）：（直接経費） 2,400,000円

研究成果の概要（和文）：Yb ファ이버レーザーをもちいて、ロバストな12fs, 3.3W, 50MHzという他に類を見ない光源を作製する事に成功した。また、この光源を用いて、同一パルス内差周波発生によりmWクラスの広帯域な中赤外光(8-12um)を得ることに成功した。これは1um帯のファイバーレーザーベースでの差周波発生を世界で初めて実現した例である。

また、この光源を用いた広帯域ラマン分光のシステムを作製し、50Mspectra/sという従来比で500倍以上高速なラマン分光を実現した。このことは今までアクセスが出来なかったsub-usの分子のダイナミクス解明に大きな寄与をもたらすと考えられる。

研究成果の学術的意義や社会的意義

分子の指紋領域を一括で取得する事が可能である広帯域な中赤外光源は非常に高い需要があるが、今日の最先端のレーザー技術をもってしても、十分なスペクトル幅や、輝度、高い繰り返し周波数、システムの安定性のすべてを兼ね備える事は非常に困難である。高輝度化で有利な1umで広帯域中赤外光を実現できた意義は大きい。また、開発したラマン分光システムは、分子指紋領域における従来のいかなる手法と比較しても世界最速の分光を実現できた。このことは今までアクセスが出来なかったsub-usの分子のダイナミクス解明に大きな寄与をもたらすと考えられる。

研究成果の概要（英文）：We developed the robust 12fs, 3.3W, 50MHz mode-locked laser based on Yb: fiber laser system. Using this laser, Broadband intra-pulse DFG with more than 1 mW output has been developed, which is the first demonstration of Broadband intra-pulse DFG via 1um fiber lasers. With this ultrashort pulse laser, we also developed broadband Raman Spectroscopy system. By utilizing Time-stretch method, we achieved a record acquisition rate of 50 Mspectra/s was achieved, which corresponds to 500 times faster than previous state-of-the-art. This spectroscopy gives the fastest temporal resolution, which has a great potential to reveal unknown ultrafast molecular dynamics.

研究分野：Spectroscopy

キーワード：Mid IR laser Intra-pulse DFG Raman spectroscopy

## 様式 C - 19、F - 19 - 1、Z - 19 (共通)

### 1. 研究開始当初の背景

中赤外光源の開発において  $6\mu\text{m}$  以上の領域は分子の遷移が最も豊かであるため、特に重要とされている。しかし、この領域において広帯域に直接発振できるゲイン媒質はないため、近赤外からの波長変換に頼ることになる。一方で、波長変換による広帯域な中赤外光源は非線形結晶の位相整合で強く制限されている現状がある。

### 2. 研究の目的

上記の現状を踏まえ、光源側の工夫で従来のスペクトル帯域の制限を超えた広帯域な中赤外光源の作製、また中赤外領域における広帯域な分光の実現を目指す。

### 3. 研究の方法

近赤外ファイバーレーザーの広帯域化とパルス圧縮により  $10\text{fs}$  級の超短パルスを作製する。さらにこの光源を用い、単一パルス内差周波発生をすることで、非常に薄い結晶で高効率な差周波発生を行う。非常に薄い結晶を用いるので、従来の帯域の制限を超えた広帯域光源が期待できる。また、この光源を励起光源として用いる事で、広帯域ラマン分光を行う事で中赤外領域の分子振動を捉える。

### 4. 研究成果

Yb ファイバーレーザーの超短パルス化に成功し、 $3.3\text{W}$ ,  $50\text{MHz}$ ,  $12.1\text{fs}$  という他に類を見ない光源を作製する事が出来た。これは従来型のファイバーレーザーを自前のファイバーアンプで増幅、分散補償後に、一般的な single mode fiber である HI1060 に光を入れ、チャープミラーでパルス圧縮をするだけで、実現出来る非常に手軽で汎用性のある手法である。この  $10\text{fs}$  級のパルス幅は従来 Ti:S レーザーでのみ実現できるものであった。さらに、ファイバーアンプによる簡易な増幅が可能であることから平均パワーは  $3\text{W}$  級を超える。このような光源は Ti:S レーザーでは実現できない。

この光源を励起光源として、単一パルス内差周波発生により  $8\text{-}12\mu\text{m}$  において  $1.2\text{mW}$  という広帯域かつ高強度の中赤外光源の開発に成功した。 $1\mu\text{m}$  帯のファイバーレーザーをもちいた広帯域差周波発生としては世界初のものである。特に Yb ファイバーとの相性が良い  $1\mu\text{m}$  帯は高パワー化の点で非常に有利であり、今後のさらなる高パワー化による大きな発展が期待できる。この光源は非線形結晶の選択によりより短波長や、長波長の選択が可能であるが、さらなる広帯域化という観点で  $2\mu\text{m}$  帯等より長波長の励起による差周波発生に比べ不利であることもわかってきた。しかし、 $1\mu\text{m}$  帯は最も扱いやすい波長の一つであることに加え、上記のように高パワー化で有利である等の利点があり、有力な手法であることに間違いはない。上記の欠点はさらなる短パルスによる励起によって解決できるため、励起光源系の改良が重要であると考えている。

また、上記の光源をラマン分光の励起光源として利用した。ラマン分光は近赤外や、可視光の比較的開発が容易な光源を利用できる一方、その低い吸収断面積から S/N の点で不利であり、そのため、積算時間の極めて短い高速分光には不利であると考えられていた。しかし、我々の開発した  $12\text{fs}$  レーザーと、我々の研究室で開発しているタイムストレッチ分光という手法を組み合わせることにより、非常に高 S/N かつ高速に分光が出来る可能性が見込まれた。上記の利点がありつつも、S/N の点でまだ不足があり、励起光学系の細かい見直しや、検出系の改良等を得て、 $50\text{Mspectra/s}$  という世界一の取得レートをラマン分光で実現する事が出来た。このことは従来の最速比でも  $500$  倍の高速化に相当し、かつ  $200\text{-}1200\text{cm}^{-1}$  の広帯域分光を  $10\text{cm}^{-1}$  級の分解能で実現した。

この技術は、サブ  $\mu$  秒のタイムスケールにおける分子のダイナミクスを捉える非常に有力なツールであると考えている。特に繰り返し現象でないダイナミクスでは従来のポンププローブの手法が使えないため、本研究の手法が世界で唯一の手段であると考えている。また、この高速性は高解像度、高速度、高 SN のラマンイメージングに適用可能であり、これも  $10$  倍から  $100$  倍の改善が可能であると考えている。また、フローサイトメトリーにおいて現状はラマン信号の低い SNR から蛍光ベースのフローメトリー比で一桁ほど低い event/s に留まっている。この点においても我々の技術で改良可能であり、蛍光試料を用いないラベルフリーかつ高速な次世代のフローサイトメトリーを実現できると考えている。

したがって、今後の改善としてはイメージングに応用するためのビームのスキャン機構の導入が考えられる。(本研究では、定点での液体サンプルの分光を行った。)また、先に開発した広帯

域中赤外光源との組み合わせ、ラマンと中赤外吸収分光を同時に行う Complementally spectroscopy 等も発展候補として有力である。

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計2件（うち査読付論文 1件/うち国際共著 0件/うちオープンアクセス 1件）

1. 著者名 Nakamura Takuma, Ramaiah Badarla Venkata, Hashimoto Kazuki, Schunemann Peter G., Ideguchi Takuro	4. 巻 47
2. 論文標題 Simple approach to broadband mid-infrared pulse generation with a mode-locked Yb-doped fiber laser	5. 発行年 2022年
3. 雑誌名 Optics Letters	6. 最初と最後の頁 1790 ~ 1790
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1364/OL.450921	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 Takuma Nakamura, Kazuki Hashimoto, and Takuro Ideguchi	4. 巻 NA
2. 論文標題 Broadband coherent Raman scattering spectroscopy at 50,000,000 spectra/s	5. 発行年 2023年
3. 雑誌名 arXiv	6. 最初と最後の頁 NA
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.48550/arXiv.2304.10804	査読の有無 無
オープンアクセス オープンアクセスとしている（また、その予定である）	国際共著 -

〔学会発表〕 計1件（うち招待講演 1件/うち国際学会 1件）

1. 発表者名 Takuma Nakamura, Kazuki Hashimoto, and Takuro Ideguchi
2. 発表標題 Time-Stretch Coherent Raman Scattering Spectroscopy Running at 50,000,000 Spectra/s
3. 学会等名 CLEO 2023（招待講演）（国際学会）
4. 発表年 2023年

〔図書〕 計0件

〔産業財産権〕

〔その他〕

6. 研究組織

氏名 （ローマ字氏名） （研究者番号）	所属研究機関・部局・職 （機関番号）	備考
---------------------------	-----------------------	----

7. 科研費を使用して開催した国際研究集会

〔国際研究集会〕 計0件

8 . 本研究に関連して実施した国際共同研究の実施状況

共同研究相手国	相手方研究機関
---------	---------