

# 博士學位論文要旨等の公表

学位規則（昭和28年4月1日文部省令第9号）第8条に基づき、当該博士の学位の授与に係る論文の内容の要旨及び論文審査の結果の要旨を公表する。

氏名 多田 量宏

学位の種類 博士（理工学）

報告番号 甲第15号

学位授与の要件 学位規程第4条第2項該当

学位授与年月日 平成24年3月17日

学位論文題目 「ソリトンパルスを用いたコヒーレントアンチストークスラマン散乱分光法」

論文審査委員 主査 教授 川辺 豊

委員 教授 山中 明生

委員 教授 小林 壮一

委員 教授 唐澤 直樹

# 学 位 論 文 要 旨

光科学研究科 光科学専攻

学籍番号：D2090010

氏 名： 埴田 量宏

## ソリトンパルスを用いたコヒーレントアンチストークスラマン散乱分光法

非線形ラマン分光のコヒーレントアンチストークスラマン散乱 (CARS) 分光はラベルフリーな分光手法として生体試料などの研究において注目されている。CARS はラマンシフトに対応したストークス光がなければ発生しないため、広帯域の CARS スペクトルを得るにはストークス光も広帯域でなければいけない。一般的な広帯域 CARS 分光法はフォトニック結晶ファイバー (PCF) から発生した広帯域光をストークス光として用いる。しかしながらスペクトル強度と各スペクトル成分の群遅延が均一な広帯域光を発生させることは簡単ではない。これに対して本研究では PCF から発生するソリトンパルスを用いた。ソリトンパルスは帯域幅が狭いが、自己周波数シフトにより波長シフトするため測定できる振動周波数帯域が広い。また、PCF 中ではパルス幅が広がらないことや、ソリトンパルスそれぞれの波長での群遅延が明らかのため CARS 分光に適していると考えた。

本研究ではソリトンパルスを用いた広帯域 CARS 分光法として、(1) 波形整形器を用いた方法、(2) 擬似スーパーコンティニューム光を用いた方法、(3) 単一ビーム CARS 分光法について検討した。また(4) CARS 信号のスペクトルフィッティングについても検討した。以下、それぞれについてのまとめを示す。

(1) 波形整形器を用いた分光法について検討した結果、まず波形整形によりソリトンパルスの波長と遅延時間を制御できることがわかった。そこでこれを用いて6つの異なる波長のソリトンパルスを波長 860 ~ 1080 nm に発生させた。これはラマンシフト 750 ~ 3100  $\text{cm}^{-1}$  の範囲のストークス光に対応する。実際にこのストークス光を用いてポリマーサンプルを分光することによって広帯域 CARS 分光が可能であることを実験から明らかにした。しかし6つの異なる波長のソリトンパルスを発生させるためには、波形整形器の空間光変調器の位相を6回切り換える必要があり、測定に時間を要した。そこで波形整形器でパルス列を生成し、1度に複数のソリトンパルスを発生させることで測定の高速度化を検討した。その結果、CARS の測定時間を 1/3 に短縮することができたが、広帯域で分光するには最低2回、空間光変調器の位相を切り換える必要があった。

(2) 次に擬似スーパーコンティニューム光を用いた方法について検討した。ここで擬似スーパーコンティニューム光とは PCF に入射するパルス強度を音響光学変調

素子 (AOM) により高速に変調することで得られる擬似的に広帯域光と見なせる高速波長可変光源のことである。(1)の波形整形器を用いた場合と比べて、擬似スーパーコンティニューム光を用いた場合は1度の測定で広帯域のCARSスペクトルが得られるため測定の高速化が期待できる。実験ではAOMを周波数500 KHzの正弦波で駆動させたときに約870 ~ 1080 nmの広帯域ストークス光が得られた。このストークス光を用いて直径6  $\mu\text{m}$ の単一のポリスチレンビードを分光した結果、約900 ~ 3100  $\text{cm}^{-1}$ の範囲の広帯域でCARSスペクトルが得られた。このとき1000  $\text{cm}^{-1}$ や3000  $\text{cm}^{-1}$ 付近のポリスチレンに特徴的なラマンスペクトルが得られた。また、擬似スーパーコンティニューム光は(1)のパルス列を用いてストークス光を発生させた場合と比べて、スペクトル干渉の影響がないことや、連続的に波長を掃引しているためスペクトルが滑らかになるという利点がある。また、一般的なPCFで発生した広帯域光と比べて自由に波長範囲やスペクトル波形を制御することができる。以上のことからソリトンパルスを用いたCARS分光法では擬似スーパーコンティニューム光を用いた分光法が非常に有用であることを明らかにした。

(3) 近年分光計測をより容易に行えることを目指した単一ビームCARS分光法の研究が行われている。本研究では現在までに報告されていない3000  $\text{cm}^{-1}$ 付近での単一ビームCARS分光法を初めて開発し、その実験結果について示した。これは単一ビーム上にポンプ光とストークス光の成分を持たせる手法であり、単一ビームにすることによって光学顕微鏡にビームを導入する場合や、光源から試料まで距離がある場合でも容易に分光できるものと期待される。本研究では波形整形器により強度とパルス幅の異なる2パルスを発生させてからPCFに入射することで単一ビーム上にポンプ光とストークス光の成分を持たせた。このときストークス光にソリトンパルスを用いることでポンプ光とストークス光の波長を大きく離すことができたため3000  $\text{cm}^{-1}$ 付近でのCARS分光が可能になった。また、ポンプ光の強度を強くするためにスペクトル圧縮効果を用いた。このスペクトル圧縮効果はダウンチャープをかけたパルスをPCFに入射することで自己位相変調によりスペクトルが狭帯域化することである。これらのポンプ光とストークス光のスペクトル成分をもつ単一ビームを用いてポリスチレンビードを分光した結果、3000  $\text{cm}^{-1}$ 付近にあるC-H伸縮振動のCARSスペクトルが得られた。これによりソリトンパルスを用いた高振動周波数領域における単一CARS分光法を実証した。また伝搬計算を用いて単一ビーム分光法の広帯域化について検討した。

(4) 本研究ではCARSスペクトルの新たなフィッティング関数によるスペクトルフィッティングについて検討した。ここで導入したフィッティング関数は従来のフィッティング関数にポンプ光の帯域幅に関するパラメータを加えたものである。これによって、ポンプ光の帯域幅により決まってしまうCARSのスペクトル分解能をフィッティングによって向上させることが期待される。実際にダイヤモンドのCARSスペクトルをフィッティングすることによって得られたラマンスペクトルはポンプ光の帯域幅によって決まるスペクトル分解能よりも線幅が狭いものが得られた。以上のことから新たに導入したスペクトルフィッティング関数が有用であることを明らかにした。

以上の本研究における一連の試みは、ソリトンパルスを用いたCARS分光法が十分に有用であることを明らかにした。

## 論文審査の結果の要旨

本学位論文は、フォトニック結晶ファイバー (PCF) に超短光パルスを伝搬することにより発生する波長可変ソリトンパルスを用いた、コヒーレントアンチストークスラマン散乱 (CARS) 分光法の実証に関する研究成果をまとめたものである。研究内容としては、(1) 波形整形器によるCARS分光測定の高速化、(2) 擬似スーパーコンティニュームCARS分光、(3) 単一ビームCARS分光、そして(4) CARS信号のスペクトルフィッティングについての検討の4部からなる。公聴会では、これらの内容について発表を行った。

PCFに超短光パルスを入射すると波長可変ソリトンパルスが発生する。本研究ではこの波長と遅延時間特性の制御を行い、実際にこれらのソリトンストークス光を用いてポリマーサンプルを分光することによって、ラマンシフト750 ~ 3100  $\text{cm}^{-1}$ の範囲の広帯域CARS分光が可能であることを示した。さらに波形整形器でパルス列を生成し、1度に複数のソリトンパルスが発生させることによりCARS分光の測定時間の短縮化が可能であることを示した。次に擬似スーパーコンティニューム光を用いたCARS分光法について検討した。擬似スーパーコンティニューム光はPCFに入射するパルス強度を音響光学変調素子 (AOM) により高速に変調することで得られる擬似的に広帯域光と見なせる高速波長可変光源のことであり、実験ではAOMを周波数500 KHzの正弦波で駆動させたときに約870 ~ 1080 nmの広帯域ストークス光が得られた。このストークス光を用いて直径6  $\mu\text{m}$ の単一のポリスチレンビードを分光した結果、約900 ~ 3100  $\text{cm}^{-1}$ の範囲の広帯域CARSスペクトルが得られることを示した。単一ビームCARS 分光法においては、現在までに報告されていない3000  $\text{cm}^{-1}$ 付近の高周波数での単一ビームCARS分光法を本研究で初めて開発した。そのとき、波形整形を用いてポンプ光とソリトンストークス光を発生させるための2つのパルスを整形し、ポンプ光にはスペクトル圧縮効果を利用して分解能向上を図った。さらに、CARSスペクトルの新たなフィッティング関数によるスペクトルフィッティングについて検討した。ここで導入した新たなフィッティング関数は、従来のフィッティング関数にポンプ光の帯域幅に関するパラメータを加えたものである。実際にダイヤモンド粒子のCARSスペクトルを新たな関数を用いてフィッティングすることにより、波長分解能を向上させることが可能なことが示された。以上の本研究における一連の試みは、ソリトンパルスを用いたCARS分光法が十分に有用であることを明らかにした。

発表後の質疑応答では、スペクトルフィッティングにおけるローレンツ関数以外の関数の利用の可能性や、3000  $\text{cm}^{-1}$ 付近の高周波数CARS信号利用の応用例などについて質問があったが、いずれの質問に対しても明快な説明がなされた。

以上の結果から、本論文は千歳科学技術大学大学院学則第25条および千歳科学技術大学学位規程の定めるところにより、博士 (理工学) の学位を授与するのに十分との結論に達した。