

ソリトン擬似スーパーコンティニュームストークス光源を用いた 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

Broadband coherent anti-Stokes Raman scattering microspectroscopy using the soliton quasi-supercontinuum Stokes light source

埴田 量宏 (Kazuhiro TADA)

E-mail: d2090010@photon.chitose.ac.jp

Broadband coherent anti-Stokes Raman scattering (CARS) spectroscopy was performed successfully for the first time using a quasi-supercontinuum light source from a photonic crystal fiber (PCF). Soliton quasi-supercontinuum light between 870 ~ 1080 nm with a sufficient spectral intensity for the CARS spectroscopy was generated by modulating the input power of a PCF by an acoust-optical modulator. The CARS spectrum from 900 ~ 3100 cm^{-1} of a single 6-mm-diameter polystyrene bead was obtained by using soliton quasi-supercontinuum.

ラマン散乱分光は非接触、非破壊、非染色で分子の振動スペクトルを測定し、それに基づいて分子種の特定、分子構造や分布、ダイナミクスを測定するために広く用いられている。しかし通常用いられる自発ラマン散乱は強度が弱く、露光時間を要することや蛍光にラマン信号が埋もれることがある。そこで非線形ラマン分光の 1 種であるコヒーレントアンチストークスラマン散乱 (CARS: coherent anti-Stokes Raman scattering) が注目されている。CARS は自発ラマン散乱と比べて散乱強度が強く、アンチストークス光を観測するため蛍光に埋もれることなく観測することができる。一般に CARS 分光にはポンプ光 (ω_p) とストークス光 (ω_s) の 2 光波が用いられ、ポンプ光とストークス光の周波数差 ($\omega_p - \omega_s$) がサンプルのラマン活性の振動周波数 (Ω) と一致したときに共鳴的に信号強度が強くなる。CARS はこの共鳴条件 ($\Omega = \omega_p - \omega_s$) により特定の振動周波数のみが観測されるため、狭帯域のポンプ光とストークス光を用いた場合自発ラマン散乱に比べて一度に得られる情報が少ない。そのため自発ラマン散乱のように一度に複数 (広帯域) のラマン信号の観測が求められている。そこで我々は広帯域 (少なくとも 1000 ~ 3000 cm^{-1} の範囲) の CARS 顕微分光法の開発を行っている。

一般に広帯域で CARS 分光するにはストークス光に広帯域光を用いる。よく用いられるのがフォトニック結晶ファイバー (PCF: photonic crystal fiber) から発生した広帯域光である。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。そこで我々はフォトニック結晶ファイバーを用いて簡単に発生させられる基本ソリトンパルスに注目した。基本ソリトンパルスの帯域は数 10 nm 程度と狭いが、自己周波数シフトによりその中心波長が長波長にシフトすることが知られている。そのため波長可変光源として広帯域分光に用いることができる。これまでに液晶空間光変調器を用いた波形整形器を用いて PCF への入射パルスを制御して、約 870 ~ 1050 nm の範囲の波長を埋めるようにソリトンの中心波長を変化させることで約 800 ~ 3100 cm^{-1} にわたる広範囲のラマンスペクトルを得ることができた[1]。しかし、ソリトンパルスの波長を変化させるごとに信号を積算する必要があり、信号取得が低速という問題があった。

本研究ではソリトン擬似スーパーコンティニューム (SC: supercontinuum) 光をストークス光源として用いた高速な CARS 分光法について報告する[2]。擬似 SC 光はファイバーへの入射パルスを音響光学変調素子 (AOM: acoust-optical modulator) 等を用いて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[3]。この擬似 SC 光を用いると、波形整形器を用いる場合と比べて滑らかにソリトンの波長を変化させることができ、かつ 1 度の露光で広帯域の CARS スペクトルを得ることができる。AOM を RF 周波数 500 KHz の正弦波で駆動させて得られた擬似 SC 光を Fig. 1 に示す。AOM でソリトン波長を変化させることにより約 870 ~ 1080 nm の広帯域ストークス光が発生し

ていることがわかる。これは $900 \sim 3100 \text{ cm}^{-1}$ のラマンシフトに対応しており十分な帯域が得られた。しかしながらソリトンパルスは波長が長波長にシフトすると群遅延により遅れることがわかっており、この遅延時間を補償する必要がある。このときのソリトンパルスの波長と遅延時間の関係はこれまでの研究からほぼ線形に変化することが分かっている [4]。本研究ではこの群遅延をストークス光を高屈折率ガラスに通すことで非常に簡単に補償することができた。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て得られた CARS スペクトルを Fig. 2 に示す。約 $900 \sim 3100 \text{ cm}^{-1}$ の範囲の広帯域で CARS スペクトルが得られており、 1000 cm^{-1} や 3000 cm^{-1} 付近のポリスチレンに特徴的なピークが得られていることがわかる。

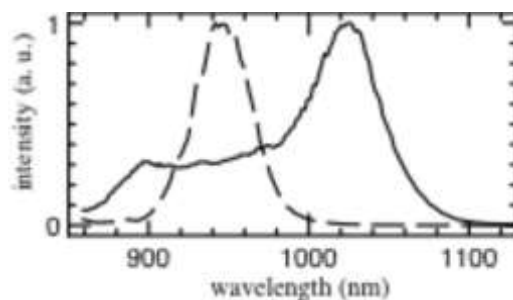


Fig.1 The spectrum of quasi-SC of Stokes soliton pulses (solid curve) compared with the spectrum of a single soliton pulse (dashed curve) measured at a fixed AOM voltage.

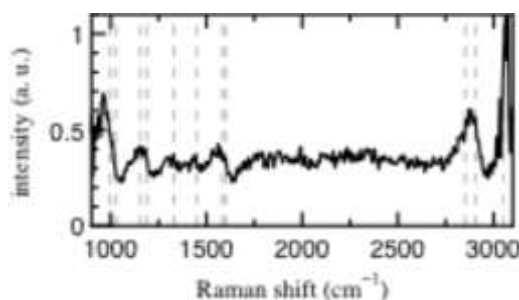


Fig.2 The broadband CARS spectra of a single $6\text{-}\mu\text{m}$ -diameter polystyrene bead sample measured. Dotted lines are the Raman shift positions of the polystyrene beads.

参考論文

1. K. Tada and N. Karasawa, Opt. Commun., 282 (19), 3948 (2009).
2. K. Tada and N. Karasawa, CLEO/QELS'10, JTuD72, San Jose Convention Center in San Jose, California, USA (2010).
3. K. Sumimura, T. Ohta and N. Nishizawa, Opt. Lett., 24, 2892 (2008).
4. K. Tada, S. Kobayashi and N. Karasawa, IEICE Technical Report, 109 (179), 55 (2009)