

擬デュアルコム光源による高速コヒーレントラマン分光法

High-speed coherent Raman spectroscopy with a quasi-dual-comb source

東大院理¹, JST さきがけ², KISTEC³, UCLA⁴, 武漢大学⁵

○(M1) 亀山 理紗子¹, 滝沢 繁和¹, 平松 光太郎^{1, 2, 3, 4, 5}

Univ. Tokyo¹, JST PRESTO², KISTEC³, UCLA⁴, Wuhan Univ.⁵

○Risako Kameyama¹, Shigekazu Takizawa¹, Kotaro Hiramatsu^{1, 2, 3}, and Keisuke Goda^{1, 4, 5}

E-mail: kameyama@chem.s.u-tokyo.ac.jp

【序】

デュアルコムコヒーレント反ストークスラマン散乱分光法 (Dual-comb coherent anti-Stokes Raman scattering spectroscopy, DC-CARS spectroscopy) は、2 台の繰り返し周波数の異なるパルスレーザを用いた時間領域振動分光法である[1]。分子特有の振動スペクトルを高分解能・高速に取得できるため、高速現象の追跡、イメージングへの応用が期待されている。しかし、パルスの繰り返し周期(>1 ns)が分子振動のコヒーレンス寿命(<3 ps)より二桁以上長いために、99 %以上の入射パルス・計測時間はスペクトル取得に利用されていない[2]。

本研究では、従来の DC-CARS 分光法では固定されていた繰り返し周波数を高速に変調 (擬デュアルコム光源、Quasi-DC source) し、励起・プローブパルス間の時間遅延を分子振動のコヒーレンス寿命以内で変化させることで、DC-CARS 分光の効率向上を目指した。従来法では未使用だったパルスを計測に用い、計測速度が従来法の 10 倍の、新たな DC-CARS 分光法「Quasi-DC-CARS 分光法」を開発した[3]。

【方法 (装置・理論)】

本研究では、Fig. 1 に示した実験装置を用いて時間領域 CARS 分光計測を行った。2 台の Ti:sapphire レーザのうち、一方は繰り返し周波数を固定し、他方は励起光強度を高速に制御することで、繰り返し周波数を変調した。本手法で生じるパルス間の時間遅延の変化は一樣ではないため、CARS 信号と同時計測した二色干渉信号 (Two-color

interferogram, TCI) から、パルス間の群遅延をモニタリングし、CARS インターフェログラムの時間軸の校正に用いた。

【結果】

原理実証実験として、50 kHz での繰り返し周波数変調を行いながら、Quasi-DC-CARS 分光計測を行った結果を Fig. 2 に示す。計測した TCI (Fig. 2a) から計算された群遅延 (Fig. 2b) を用いて、同時計測した時間領域 CARS 信号 (Fig. 2c) の時間軸を校正した (Fig. 2d)。校正後の CARS 信号をフーリエ変換し、Fig. 2e のようなトルエンの Quasi-DC-CARS スペクトルを得た。測定効率が約 100 % になったことで、スペクトル取得レートは従来法の 10 倍にあたる 100,000 スペクトル/秒、感度は約 21 倍に向上した。Quasi-DC-CARS 分光法により得られる CARS スペクトルの時間変化により、未だメカニズムが解明されていない「表面増強ラマン散乱の明滅」などの高速現象の観察・分析に応用できると期待される。

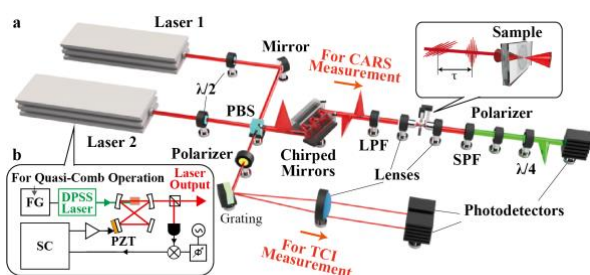


Figure 1. Experimental Apparatus of Quasi-DC-CARS spectroscopy.

a. optical setup; $\lambda/2$: half-wave plate, PBS: polarizing beam-splitter, LPF: long-pass filter, SPF: short-pass filter, $\lambda/4$: quarter-wave plate b. electric circuit for the operation of quasi-DC source; FG: function generator, DPSS laser: diode-pumped solid-state laser, PZT: piezo-electric transducer, SC: servo controller.

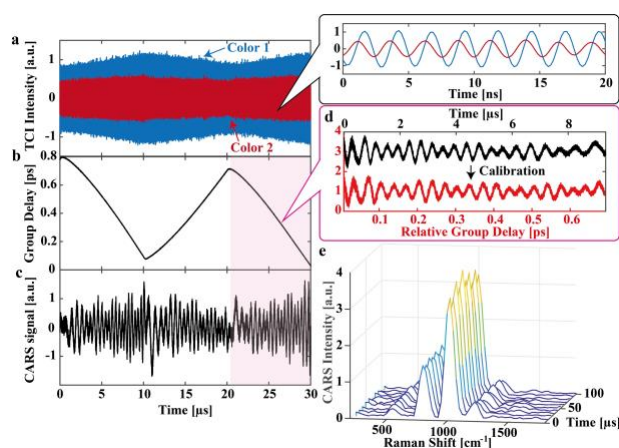


Figure 3. Quasi-DC-CARS spectroscopy of toluene at 100,000 spectra/s.

a. measured TCIs, b. calculated group delay by using TCIs, c. measured CARS signal, d. calibration of CARS interferogram according to the calculated group delay, e. Quasi-DC-CARS spectra of toluene obtained at 100,000 spectra/s.

【参考文献】

[1] T. Ideguchi, *et. al.*, *Nature*. **502** (7471), 355-358 (2013). [2] K. Mohler, *et. al.*, *Opt. Lett.* **42** (2), 318-321 (2017). [3] R. Kameyama, *et. al.*, *ACS Photonics*. XXXX, xxx, xxx-xxx (2020).