

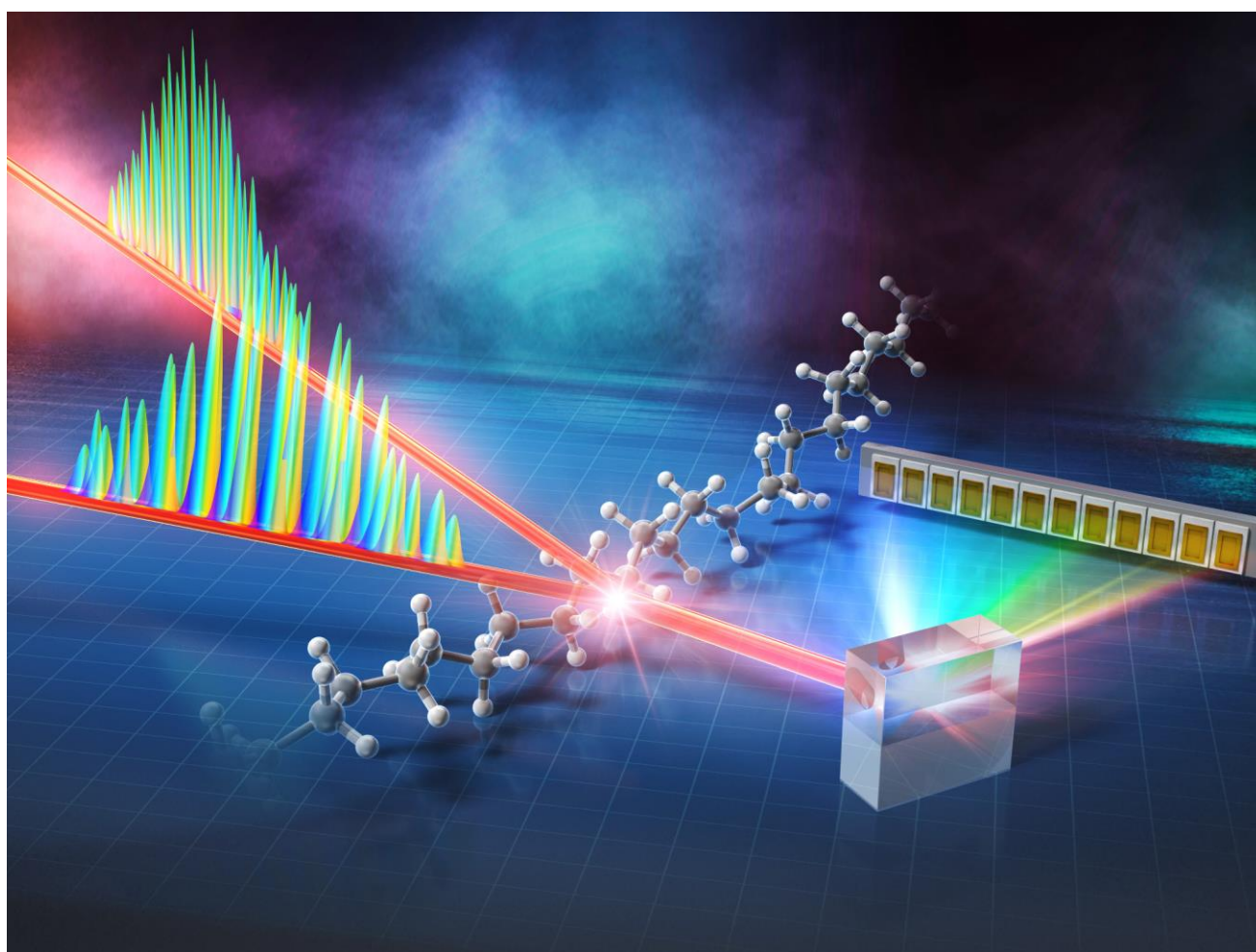
ツインビーム光源による新たな非線形ラマン分光法の開発

—低コスト・小型な高分解能ラマン計測装置へ—

概要

京都大学大学院工学研究科 衛藤雄二郎 准教授（研究当時、現：京都大学大学院理学研究科）、慶應義塾大学 医学部 塗谷睦生 准教授、慶應義塾大学理工学部生命情報学科 加納英明 教授らの研究グループは、従来は複数の高価なフェムト秒の超短パルス光源が必要だったスペクトルフォーカシング^{注1)}による非線形ラマン分光^{注2)}を、ナノ秒励起のツインビーム^{注3)}光源 1 台で実現することに成功しました。本成果は、実用化が進む量子光源技術を用いた新たな計測手法を提示し、低コストでコンパクト、かつ高性能な次世代の分子構造解析装置への応用展開が期待されます。

本研究成果は、2025 年 6 月 6 日に国際学術誌「*Physical Review Applied*」にオンライン掲載されました。



チャープ構造を持つツインビームによる非線形ラマン分光のイメージ図

1. 背景

非線形ラマン散乱は、生体分子を標識なしで識別・可視化できる強力な分子構造解析手法で、化学・生命科学分野に加えて医療や産業分野でも利用が進んでいます。特に、モード同期超短パルスレーザーに周波数チャープ^{注4)}を施し、広帯域かつ高分解能な測定を実現するスペクトルフォーカシング法は、その優れた性能から活用が広がっています。しかし、この方式では高性能で高価なレーザー光源が必要となるため、装置導入のハードルが高く、応用拡大の障壁になっていました。

2. 研究手法・成果

本研究では、超短パルス光源を一切用いず、ナノ秒パルスで生成した高輝度ツインビーム光源のみを用いて、スペクトルフォーカシング非線形ラマン分光が実現可能であることを、理論および実験の両面から初めて示しました（図1：実験装置図）。本技術の鍵は、パラメトリック下方変換^{注5)}により生成されるツインビーム間の量子相関を巧みに利用し、従来は超短パルスによって得られていた周波数チャープの特性を模擬的に再現した点にあります（図2：チャープの観測結果とシミュレーション結果）。これにより、単一のナノ秒ツインビーム光源による高分解能な分光測定が可能となり、装置の大幅な小型化・低コスト化の道が開かれました。ツインビームの発生源に使用されている非線形光学結晶の温度を変えるだけで、波長を幅広く調整できるため、簡便な操作で広い帯域の分光測定が可能になると期待されます。さらに、本成果はツインビームを用いた分光技術の全く新しい展開を示すものです。従来は超短パルスを時空間的に制御することによって実現されてきた時間ストレッチ分光や時間フォーカシング分光といった最先端分光法を、ツインビーム相関を用いて実現する新たな可能性が開かれました。

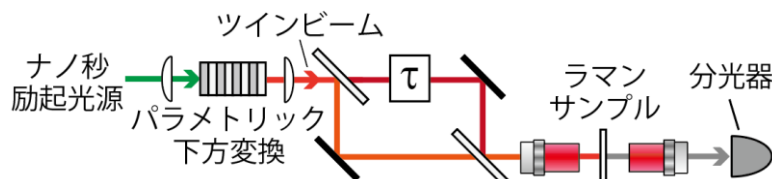


図1：ツインビームを使った非線形ラマン分光装置図。 τ はツインビーム間の遅延時間差を表す。スペクトルフォーカシングでは、 τ を変えながら分光測定を行う。

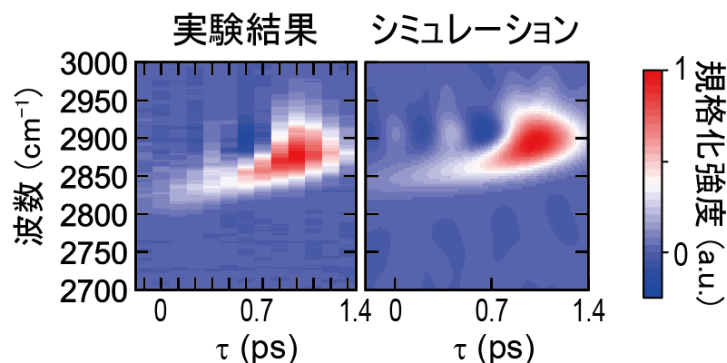


図2：ツインビームの量子揺らぎに形成されるチャープ構造の観測（左：実験結果、右：シミュレーション）。ツインビームの遅延時間差（ τ ）を変化させるに伴い、波数のピーク値が上昇している。 τ に依存した波数の変化がチャープ構造に対応している。

3. 波及効果、今後の予定

開発した高輝度ツインビーム光源は、すでに市場に流通している Optical Parametric Generation (OPG)^{注6)} 光源技術に基づいており、実用化に向けた技術的ハードルも低いと見られます。今後は、光源と分光系のモジュール化を進め、装置開発や実証実験の展開を予定しています。既存顕微イメージング技術との互換性も高く、比較的短期間での実用化が見込まれています。本成果は、将来的に診断用摘出組織、さらには生きた組織そのものの病理学的検査、食品検査、環境モニタリングなど多様な現場でのラマン分光装置の低コスト化・ポータブル化を実現し、社会実装の加速に大きく貢献することが期待されます。

4. 研究プロジェクトについて

本研究は、科学技術振興機構（JST） 戦略的創造研究推進事業 さきがけ（「高輝度量子光源によるフーリエ限界を超えた時間分解ラマン分光」（代表者：衛藤雄二郎、JPMJPR2352））、同 未来社会創造事業（「統合的可視化解析を実現する汎用型マルチモダル多光子顕微鏡の開発」（代表者：塗谷睦生、JPMJMI22G5））、文部科学省光・量子飛躍フラッグシッププログラム（Q-LEAP「量子もつれ光子対を利用した量子計測デバイスの研究」（代表者：竹内繁樹、JPMXS0118067634））、日本学術振興会科学研究費の支援を受け実施しました。

<用語解説>

注1) スペクトルフォーカシング

光パルス内部で中心周波数成分が変化する光パルス（チャープパルス）を用いて、広帯域で高い周波数分解能を実現する分光計測手法のこと。

注2) 非線形ラマン分光

非線形ラマン分光とは、光と物質との高次の相互作用を利用したラマン分光計測のこと。微弱なラマン散乱光を選択的に増強したり、ラマン不活性な振動モードを観測したりすることができる。非線形ラマン過程の例として、コヒーレント・アンチストークスラマン散乱（coherent anti-Stokes Raman scattering: CARS）などがある。

注3) ツインビーム

パラメトリック下方変換（注5参照）によって生成した対を成す2つのビームのこと。時間や周波数に関して量子相関を形成する。

注4) 周波数チャープ

光パルスの時間波形内部で中心周波数成分が変化的ること。モード同期超短パルスレーザーを分散のある媒質に通すことで実現することができる。

注5) パラメトリック下方変換

周波数 2ω のポンプ光から周波数 $\omega + \Delta\omega$ と $\omega - \Delta\omega$ の光を発生させる非線形光学過程のこと。周波数 $\omega + \Delta\omega$ と $\omega - \Delta\omega$ の光をツインビームと呼ぶ。

注6) Optical Parametric Generation (OPG)

パラメトリック下方変換やパラメトリック増幅過程を利用した波長可変光源のこと。イメージングや分光応用にすでに幅広く利用されている。

<研究者のコメント>

「高強度量子光源の応用可能性については未解明な点が多く、今後の展開に大きな可能性を秘めています。今

後も、高強度量子光源が光計測にどのような新たな可能性を拓くのかを明らかにする研究を進めていきます。」
(衛藤雄二郎)

<論文タイトルと著者>

タイトル：Spectral-focusing coherent anti-Stokes Raman scattering driven by bright correlated twin beams
(高輝度な相関のあるツインビームによるスペクトルフォーカシング コヒーレント・アンチストークスラマン散乱)

著 者：衛藤雄二郎（京大）、塗谷睦生（慶大）、加納英明（慶大）

掲 載 誌：*Physical Review Applied* DOI：10.1103/7pvj-3dqt