

2024 年度年次報告書

独創的原理に基づく革新的光科学技術の創成

2020 年度採択研究代表者

芦原 聡

東京大学 生産技術研究所

教授

赤外テラレーメイド励起を機軸とする革新的振動分光

研究成果の概要

本研究では、新しい赤外光源技術によって振動分光法に飛躍をもたらすことを狙いとする。すなわち、新規固体レーザーに立脚した高輝度赤外コヒーレント光とその電場波形自由度を活用することにより、微量分子検出法、および、所望の反応を促進する化学反応制御法を創出する。本年度は、主たる3つの研究項目を以下の通り推進した。

『赤外光源』に関しては、Cr:ZnS 赤外モード同期レーザー(中心波長 $2.3\ \mu\text{m}$)を起点にして、より長波長の中赤外パルスを発生するための光パラメトリック増幅器および差周波発生システムの開発を進めた。並行して、常圧気相分子の吸収線幅と同等のスペクトル幅をもつ狭帯域モード同期レーザーを開発した¹⁾。

『微量分子検出』に関しては、これまでにバックグラウンドフリー吸収分光システムを開発し、光源の輝度向上に伴う高感度化を実証するとともに、それを吸収と分散の両方を計測できるシステムへ拡張した。本年度は、微弱なバックグラウンドフリー分光信号を多波長にわたってマルチプレックス検出する「バックグラウンドフリー相関分光法」を提案し、その有効性を実証した²⁾。

『化学反応制御』に関しては、線形チャープを与えた高強度赤外パルスを用いて液相の二酸化炭素分子の逆対称伸縮振動モードの第9振動励起状態に至る、過去に類を見ない高振動励起を達成した³⁾。その際、励起パルスのチャープに応じて、占有数が下準位から上準位へ時間とともに段階的に移行する様子、および、高振動準位の励起寿命を初めて明らかにした。同様に、気相の二酸化炭素分子に関しても第11振動励起状態への多段階振動励起を達成するとともに、振動励起状態における回転波束の生成を初めて観測した⁴⁾。本成果は、赤外波形整形パルスによって振動と回転の自由度を同時に制御する可能性を示す点で重要である。

以上の通り、各研究項目に関して重要な進展を得た。

【代表的な原著論文情報】

- 1) Z. Zhang, X. Bu, D. Okazaki, W. Song, I. Morichika, and S. Ashihara, “Tunable mode-locked laser in the 2.0–2.6 μm range with GHz-level spectral width and sub-nanosecond pulse duration,” *Applied Physics Letters* Vol. 126, 051104 (2025).
- 2) K. Fujiwara, W. Song, I. Morichika, and S. Ashihara, “Background-free correlation spectroscopy using an infrared mode-locked laser,” *Optics Letters* Vol. 49(14), pp. 3898-3901 (2024).
- 3) I. Morichika, H. Tsusaka, and S. Ashihara, “Generation of High-Lying Vibrational States in Carbon Dioxide through Coherent Ladder Climbing,” *Journal of Physical Chemistry Letters* Vol. 15, pp. 4662-4668 (2024).
- 4) H. Tsusaka, I. Morichika, and S. Ashihara, “Coherent multistep rovibrational excitation using intense midinfrared pulses,” *Physical Review Research* 6, L042058 (2024).