

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

2022年度  
年次報告書

芦原 聡

東京大学 生産技術研究所  
教授

赤外テーラ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大きな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、微量分子を高感度に捉える振動分光法、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。2022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、これまでに開発した Cr:ZnS 赤外モード同期レーザー(中心波長 2.3 ミクロン、時間幅 30 フェムト秒)に基づき、スペクトルを大きく変調させた新しい形態のモード同期発振を実現した<sup>1)</sup>。具体的には、レーザー共振器中に気相分子を導入することにより、複数の分子振動の共鳴線において鋭いスペクトルピーク構造をもつモード同期発振を実現し、ピーク形成メカニズムを明らかにした。また、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を試作した。さらに、赤外パルスの瞬時電場を検知するデバイス原理を考案し原理実証した<sup>2)</sup>。

『微量分子検出』に関しては、Cr:ZnS 赤外モード同期レーザーを用いたバックグラウンドフリー吸収分光システムを構築し、光源の輝度向上に伴う高感度化を実証するとともに、光源の強度雑音および検出器雑音を考慮した系の最適化により従来法をしのぐ検出感度を達成した<sup>3)</sup>。

『化学反応制御』に関しては、赤外パルスを用いた振動ラダークライミングの理論的検討と実験を行った。密度演算子の時間発展の数値計算により、高振動準位へ励起するために必要な赤外パルスの電場波形に関する知見を深めた。また、赤外フェムト秒パルスを用いて液相分子の振動励起実験を実施し、過去に報告されているレベルを大きく凌駕する高振動励起を達成した。気相分子に関しては、高振動準位における振動回転波束の生成・観測に成功した。

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) “Mode-locked laser oscillation with spectral peaks at molecular rovibrational transition lines,” D. Okazaki, W. Song, I. Morichika, and S. Ashihara, *Optics Letters* Vol. 47, No. 23, pp. 6077-6080 (2022).
- 2) “Optical manipulation of electron emission at metal-insulator interface for all-solid-state light phase detector,” K. Arai, D. Okazaki, I. Morichika, and S. Ashihara, *Proceedings of SPIE* Vol. 12479, 124790O (2022).
- 3) “Broadband background-free vibrational spectroscopy using a mode-locked Cr:ZnS laser,” W. Song, D. Okazaki, I. Morichika, and S. Ashihara, *Optics Express* Vol. 30, No. 21, pp. 38674-38683 (2022).
- 4) “Ultrafast infrared plasmonics advances vibrational spectroscopy,” I. Morichika and S. Ashihara, *Photonics Review* 220204 (2022).
- 5) “High harmonic generation from GaSe in a deep-UV range well above the bandgap,” K. Imasaka, Y. Shinohara, T. Kaji, K. Kaneshima, N. Ishii, J. Itatani, K. Ishikawa, and S. Ashihara, *Optics Continuum* Vol. 1, No. 5, pp. 1232-1247 (2022).