

2022 年度  
創発的研究支援事業 年次報告書

研究担当者	奥野将成
研究機関名	東京大学
所属部署名	大学院総合文化研究科広域科学専攻
役職名	准教授
研究課題名	新規非線形ラマン過程の開拓による振動分光の革新
研究実施期間	2022 年 4 月 1 日～2023 年 3 月 31 日

**研究成果の概要**

2022 年末に導入されたフェムト秒レーザーおよび光パラメトリック増幅器 (OPA) を用いて、本研究の主目的のひとつである、コヒーレント・アンチストークス・ハイパーラマン散乱 (CAHRS) 分光の実験系を構築した。計画通り、以下のような装置開発を行った。フェムト秒レーザーの基本波を透過型回折格子を用いた 4f スペクトルフィルターにより狭帯域ピコ秒レーザーへと変換し、中心波長 1025 nm 程度の  $\omega_1$  光とした。また、OPA の idler 光を第二高調波へと変換し、波長 540 nm 程度のフェムト秒  $\omega_2$  光とした。これらの二つの光をまず、位相整合条件を満足する入射角で水晶結晶へと集光することによって、可視域に CAHRS 信号と同じ波長に出力される  $4\omega_1 - \omega_2$  の波長をもった信号の検出に成功した。これは、 $\omega_1$  光および  $\omega_2$  光が時間的・空間的に重なっていること、さらに検出された光の波長から、CAHRS 信号と同じ 5 次 (以上) の非線形光学過程によって信号が発生していることを見出した。また、信号の空間的な拡がりから、この信号は CAHRS 信号と同じコヒーレント信号であることが分かった。一方、石英結晶を二つの光の焦点に対して走査したところ、石英/空気界面で主に信号が発生していることがわかり、これは界面における  $\omega_1$  光の第二高調波発生に続く、高次のカスケード過程により  $4\omega_1 - \omega_2$  光が発生していることを示している。以上のように、石英結晶から CAHRS 信号ではないものの、高次非線形信号を得ることができたことから、適切な試料を測定すれば CAHRS 信号が得られる可能性が示唆された。