



Title	Frequency-domain four-wave mixing(FD-4WM) spectroscopy
Author(s)	渡邊, 由紀夫
Citation	大阪大学, 2002, 博士論文
Version Type	
URL	https://hdl.handle.net/11094/43615
rights	
Note	著者からインターネット公開の許諾が得られていないため、論文の要旨のみを公開しています。全文のご利用をご希望の場合は、 〈a href="https://www.library.osaka-u.ac.jp/thesis/#closed"〉 大阪大学の博士論文について 〈/a〉 をご参照ください。

The University of Osaka Institutional Knowledge Archive : OUKA

<https://ir.library.osaka-u.ac.jp/>

The University of Osaka

氏名	渡邊 由紀夫
博士の専攻分野の名称	博士(理学)
学位記番号	第 16746 号
学位授与年月日	平成14年3月25日
学位授与の要件	学位規則第4条第1項該当 理学研究科物理学専攻
学位論文名	Frequency-domain four-wave mixing (FD-4WM) spectroscopy (周波数領域四光波混合分光法)
論文審査委員	(主査) 教授 木下 修一 (副査) 教授 野末 泰夫 教授 小川 哲夫 教授 大山 忠司 助教授 渡辺 純二

論文内容の要旨

レーザの出現によって容易に観測されるようになった非線形光学現象は、分光法へ広く応用されている。特に三次の非線形効果に基づく分光法は、時間、周波数、両領域で様々な方法が存在する。本論文では、新しく開発した周波数領域四光波混合 (FD-4WM) 分光法の原理とその応用について理論的、実験的に示される。この FD-4WM 分光法では、2本のフェムト秒パルスを励起光として、それに対して十分時間幅の長いナノ秒パルスを探プローブとして用い、これら3本のパルスをサンプル中で集光し、四光波混合過程を通して発生する信号光のスペクトル (FD-4WM スペクトル) を測定する。この測定から 200cm^{-1} 以下の物質の周波数情報を直接得ることができる。

液体などにおいて $<200\text{cm}^{-1}$ の低振動数領域に見られる光散乱スペクトルには、物質を構成する多くの分子の協同的な運動に由来するスペクトルが観測され、フェムト秒レーザを用いたこの領域に対する研究は、低振動数モードの時間挙動を直接観測する手段としてこれまで主に時間領域で行われてきた。時間領域四光波混合や光カー効果の測定はその代表的な例である。しかし、一般に四光波混合による測定はホモダイン検出で行うため、単純なフーリエ変換の解析では周波数情報を得ることは難しい。また、光ヘテロダイン検出の光カー効果分光法からはフーリエ解析によって周波数応答関数を得ることができるが、用いる光学系の配置から、選択できる光の偏光や波数が制限される。FD-4WM 分光法は四光波混合の配置で行われる周波数領域での測定のため、実験上の自由度を残しながら、物質の周波数情報を容易に得ることができるという利点をもつ。

この FD-4WM 分光法を液体や結晶などに対して非共鳴条件下で適用し、 $<200\text{cm}^{-1}$ の物質の周波数情報を得ることができた。これらの結果を光カー効果分光法から得られる周波数応答関数と比較し、よく一致していることを確かめた。さらに、光の偏光を自由に選べる利点を生かし、物質の核の応答と電子応答の寄与を分ける実験を行った。

一方、試料として水やガラスなど電子応答の強い物質を選んだとき、この分光法によって得られる FD-4WM スペクトルは、用いたポンパパルスの強度相関波形となり、よってそのスペクトルは物質の情報というよりむしろポンパパルスの情報を反映したものとなる。用いるパルスの違いによって FD-4WM スペクトルは変化し、このことを利用してこの分光法のパルス診断としての応用を示した。特にポンパパルスの相対的な時間差を変えながら得られる二次元 FD-4WM スペクトルは、パルスの位相についての情報を反映する。このような測定方法をいくつかの異なる変調のかかったパルスに適用するとともに、三次、四次などの高次の分散に対して二次元 FD-4WM スペクトルがどのように変化するかシミュレーションを行い、この分光法がパルス診断として有効であることを示した。

論文審査の結果の要旨

本研究では、時間幅の短いフェムト秒レーザーをポンプ光に、周波数幅の狭いQスイッチ YLF レーザーをプローブ光に用いた新しい周波数領域の4光波混合分光法の開発を行った。この分光法は、低振動数領域の物質の応答を効率よく測定することができ、蛍光の強い物質などに有利なほか、偏光を変えることで非線形感受率のテンソル成分を自由に選択して測定できるなど、時間領域固有の利点のほか、1) 物質の周波数応答関数が直接求められる、2) 測定にかかる時間を大幅に短縮できるなどの新しい特徴を備えていることを示した。このような特徴は、特に結晶成長過程、振動反応過程など時間的に変動する系の周波数応答を刻々と記録するのに特に優れている。また、試料に電子応答の強い光学ガラスを用い、二つのポンプ光の時間差を変数として、周波数応答を測定することにより、用いているパルスの位相情報を含めたパルス診断ができることを証明した。これらの研究は、非線形分光の新しい分野を切り開くとともに、さまざまな非平衡過程の研究などの広い学問分野に寄与するものである。よって、本論文は博士（理学）の学位論文として十分価値あるものと認める。