

Title	Frequency-domain four-wave-mixing spectroscopy applied to a wide frequency-range excitation
Author(s)	平位, 和也
Citation	大阪大学, 2007, 博士論文
Version Type	
URL	https://hdl.handle.net/11094/47645
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。

Osaka University Knowledge Archive : OUKA

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

Osaka University

氏 名 平 位 和 也

博士の専攻分野の名称 博士(理学)

学位記番号 第 20851 号

学位授与年月日 平成 19 年 3 月 23 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 spectroscopy applied to a wide frequency-range excitation
(広周波数範囲に対応した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 田島 節子 教授 藤井 研一 助教授 鷹岡 貞夫

助教授 渡辺 純二

論文内容の要旨

ポンプ光にフェムト秒、プローブ光にナノ秒のパルスを用いた「周波数領域四光波混合分光法」は、物質の周波数応答関数を直接測定できる分光法であり、これを用いて二硫化炭素や水など様々な液体の応答関数が測定され、感受率の偏光依存性などが調べられている。またこの方法は、時間-周波数軸での 2 次元的なパルス診断が可能であることも示されるなど、非常に有用な実験手法である。今回、この手法を応用し発展させた、2 種類の新しい分光法の開発を行なった。

四光波混合分光法では、励起される振動状態は 2 本のポンプ光の周波数差に一致する。そこで、一つ目の方法は、この四光波混合に於いて、一方のポンプ光に **supercontinuum generation** によって発生した 4000 cm^{-1} 以上の周波数広がりを持つ白色パルスを用いる方法である。これによって、短時間で広い周波数範囲のラマン振動を一度に励起し、そのスペクトルを測定することが可能となった。また、この方法を蛍光除去ラマンスペクトルの測定に応用した。非線形分光法では、信号光の指向性から空間的に蛍光を除去することが出来る。さらに今回の方法では、ポンプ光とプローブ光の波長が異なることを利用し、蛍光の共鳴波長から離れた波長を持つ入射光の強度を強くすることによって、信号光の強度だけを強めることが出来る。本研究での実験条件下では、非常に強い蛍光を発する色素であるローダミン 6G の濃度が 10^{-5} mol/l 程度になっても、色素を溶かした溶媒分子の分子内振動スペクトルを測定できることが確認された。

もう一つの方法は、2 本のポンプ光に同量の線形チャープがかかったパルス光を用いる方法である。線形チャープしたパルス光は、中心周波数が時間に対して線形に変化するという特徴を持つ。即ち 2 本のチャープ光に時間差を与えると、その中心周波数の差はどの時間で見ても変わらず一定であり、この差は 2 本のパルス光の時間差を変えることによって自由に選ぶことが出来る。また線形チャープ光では、ある瞬間で見た周波数広がりにはチャープ量が大きいほど狭くなる。従って、この 2 本のポンプ光によって励起される分子のダイナミクスは、中心周波数の差によって決まる振動数を中心として、チャープ光の周波数広がり程度のスペクトル幅を持つことになる。即ちこの方法を用いると、励起されるスペクトルの中心周波数と、そのスペクトル幅を任意に変更できることがわかる。今回我々は、周波数領域四光波混合で線形チャープした 2 本のポンプ光による測定を行ない、実際に中心周波数とスペクトル幅が変更

可能な励起方法であることを確認することが出来た。この手法は、時間領域に於いて、状態の時間発展の測定などに応用可能であると考えられる。

論文審査の結果の要旨

本研究は、周波数領域四光波混合分光法に、2種類の新しい分光法の開発を行なった点にその新規性がある。周波数領域四光波混合で励起される振動状態は、2本のポンプ光の周波数差に一致する。本研究では、一方のポンプ光にスーパーコンティニューム光によって発生した広い周波数広がりを持つ白色パルスを用い、短時間で広い周波数範囲のラマン振動を一度に励起し、そのスペクトル測定を可能にした点に重要性がある。申請者は、この方法を蛍光存在下でのラマンスペクトルの測定に応用した。ポンプ光とプローブ光の波長が異なることを利用し、蛍光の共鳴波長から離れた波長を持つ入射光の強度を強くすることによって、信号光の強度だけを強めることが出来た。実際、非常に強い蛍光を発する色素であるローダミン 6G の濃度が 10^{-5} mol/l 程度になっても、色素を溶かした溶媒分子の分子内振動スペクトルを、明確に測定できることが確認された。

もう一つの方法は、2本のポンプ光に同量の線形チャープをかけたパルス光を用いる方法である。線形チャープしたパルス光は、中心周波数が時間に対して線形に変化するという特徴を持つ。即ち2本のチャープ光に時間差を与えると、その中心周波数の差はどの時間で見ても変わらず一定であり、この差は2本のパルス光の時間差を変えることによって自由に選ぶことが出来る。また線形チャープ光では、ある瞬間で見た周波数広がりにはチャープ量が大きいほど狭くなる。従って、この2本のポンプ光によって励起されるエネルギー領域は、中心周波数の差によって決まる振動数を中心として、チャープ光の周波数広がり程度のスペクトル幅を持つことが予測される。申請者は、周波数領域四光波混合で線形チャープした2本のポンプ光による測定を行ない、実際に、中心周波数とスペクトル幅が変更可能な励起方法であることを確認することが出来た。この手法は、フォノンの選択励起とその後の緩和過程の測定などに特に有効であると考えられる。これらの研究は、今後のレーザー分光学、凝縮系物理学において新しい研究手段を提供するものとして大いに貢献するものと期待できる。

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。