

学位論文の内容の要約

氏名	千葉雄平
学位の種類	博士（工学）
学府又は研究科・専攻	大学院工学府 電子情報工学専攻
指導を受けた大学	東京農工大学
学位論文題目	可視域超短パルスファイバーレーザー光源の開発と有機分子における光誘起核波束運動の観測

【論文の内容の要約】

化学反応制御に関する研究は古くから数多くの手法を用いて進められているが、多くの場合で反応の中間状態はブラックボックスとなっており、反応の間で分子がどのような変化を経ているかはわからない。しかし、そのような反応途中における分子の構造変化は極めて短い時間スケールの現象であり、その観測は難しかった。だが、近年の超短パルスレーザー技術の発展によって、光誘起化学反応における分子の振動や解離等の中間状態を実時間で観測することが可能になった。このような研究では主に Ti:Sapphire レーザーが光源として用いられているが産業利用等の広い分野を見据えた場合、次世代光源であるファイバーレーザーに置き換わることが期待される。しかし、応用実験の時間分解能を決める波長帯域、パルス幅という特性において既存の光源に劣っているため、現状広く利用されているとは言い難い。

そこで、本研究では第一に新型広帯域ファイバー光源の開発を目的とした。本研究で製作した光源は光増幅における波長帯域の狭窄化を補正し、中間状態観測を行うに十分なパルスエネルギー、パルス幅を有している。また、波長帯域において既存の Ti:Sapphire レーザーの基本波や第二高調波がカバーしていない 500nm 帯の可視域という点、非線形性利用が少なく、スペクトルが安定している点、高度な分散補償ができる点で優位性がある。そして、第二の目的を製作した光源を用いた有機分子の中間状態観測とした。具体的には分子の振動に対応する核波束運動を観測した。構造の似た分子に対して先行研究の成されているシアニン系分子 DTCl、純粋なアゾベンゼンに比べてまだ超高速現象の研究が進んでいない push-pull 型アゾベンゼン系分子 DR1 に対して実験を行い、光励起直後におけるそれぞれの分子の核波束運動の観測に成功した。それらを第一原理計算の結果や先行研究と比較し、測定された結果がどのような分子振動に対応しているかという予測や分子構造による振動への影響を考察した。

第1章では化学反応における中間状態の観測や制御に関する背景、本研究の目的について述べる。

第2章では製作した可視域超短パルスファイバーレーザー光源について述べる。波長帯域の狭窄化を誘電体多層膜フィルターで補正し、液晶型空間光変調器が組み込まれた4-f光学系を導入することで高度な分散補償を行った。これらにより既存の非線形性利用の少ないファイバー増幅器光源では到達の難しい可視域で50fs以下のパルス幅を持った光源が可能になった。その結果、波長500nm帯でパルスエネルギー35nJ、パルス幅41fsの光源の開発に成功した。

第3章では核波束運動観測法の原理や実験に使用した試料、光学系、測定系、使用した第一原理計算の原理、条件について述べる。

第4章ではシアニン系分子DTCI、アゾベンゼン系分子DR1に対して行った核波束運動観測の結果、第一原理計算結果との比較による振動モードの予測、先行研究との比較について述べる。実験ではどちらの分子でも複数の周波数帯の核波束運動が観測できた。DTCIでは実験結果を計算結果と対応付けることで炭素鎖や六員環由来の振動が観測されたと予測され、この結果を炭素鎖長の異なる分子で行われた先行研究と比較すると一部の炭素鎖由来の振動は炭素鎖長が短いと強く観測できると推定された。DR1では実験と計算の対応付けにより、観測できた周波数帯では主に平面的な振動や置換基の動きが測定されたと考えられる。この結果よりDR1の異性化メカニズムにおいて置換基の平面異性化への影響が実験的に示唆される。これら、シアニン系分子における構造による特定振動の観測割合の違いやpush-pull型アゾベンゼン系分子の超高速ダイナミクスは本研究で開発した非線形性利用の少ない、安定したスペクトル形状の超短パルス可視域光源により観測が可能になった。

第5章では本論文のまとめを述べる。