

## 論文審査結果の要旨

氏名 西村久美子

本論文は、光パラメトリック増幅による近紫外～可視域サブ 10 フェムト秒パルス発生とそれによる J 会合体等の分子の超高速時間計測分光分野を新たに開拓する目的と意図により立案され研究されたものである。

本論文は 6 章及び補足説明より構成され、第 1 章では、本研究の主眼である超高速時間分解分光の意義、本研究で実施された近紫外～可視域サブ 10 フェムト秒分光の位置づけが述べられている。

第 2 章においては、申請者グループにより開発されたフェムト秒 TiS の第 2 高調波励起の NOPA (非共直線光パラメトリック増幅) によるスペクトル幅 470～800nm、時間幅 3.9fs の超短パルス光源による、J 会合体、擬イソシアニン (PIC) の 2 次元分光実験の結果と、ラマン分光測定や時間分解吸収差スペクトルの解析結果とそれによる J 会合体の分子構造に関する研究が記述されている。

第 3 章においては、第 2 章の結果をふまえてさらに近紫外に近い光源の開発を目指しての TiS の第 3 高調波励起の NOPA の開発結果と、そのパルス幅計測法としてクロスコリレーションを取り入れた X-FROG (周波数分解オプティカルゲート方式) によるパルス幅計測の概要が述べられている。

第 4 章は第 3 章で述べられている、NOPA 方式による近紫外光のパルスを圧縮して得られた超短パルス光の特性を X-FROG により解析した実験結果、及び、X-FROG 方式の特色と数値計算シミュレーションによる X-FROG によるパルス計測アルゴリズムに関する記述である。

第 5 章では生成された近紫外光 NOPA をパルス圧縮法により超短パルス化した際に入りうる誤差や揺らぎ等雑音の影響、2 パルスコリレーションにおけるリファレンスパルスの特性が及ぼす測定結果への影響、主なる雑音源の推定等、実験結果とシミュレーション結果の妥当性等の議論が記述され、第 6 章においてはまとめと結論、今後の展望も述べられている。

本論文において一貫して取り上げられているのは、進歩著しいフェムト秒レーザーの短波長化とそれによる分子特性等の時間分解分光法の開発と、それによる新しい物性測定を進展させる事である。

サブ 10 フェムト秒パルスの生成が可視域においては 4fs 程度が示され、さらには近紫外

への発展が望まれている。特に近紫外のサブ 10 フェムト光源の開発によりボンド破壊の初期過程、光反応の中間体の出現と動的過程や関与する電子構造、凝縮系の緩和等の研究等、飛躍的に進展する可能性を持っているが、申請者の取り組んだ独創的な視点はまさにこの点である。

まず、申請者達のグループにより開発された第 2 高調波励起の NOPA 光の圧縮により、500~800nm 域で 5fs を得ており、この光源を用いて、擬イソシアニン(PIC)J 会合体の 2 次元分光の研究を行った。その結果、ポンプ・プローブ法と検出系にマルチチャンネルロックイン方式を取り入れ、多波長での同時計測を可能とし、時間分解吸収差スペクトルの解析により、定常ラマン散乱に一致する 10 個の振動モードの他に  $152\text{cm}^{-1}$  に新たなモードを見出している。これらは会合体の新モデルにより検討され、ノンコンドン型のエキシトナーフォノン結合によるものであるとの結論を得ている。これらは新たな計測系の開発によりはじめて見出されたもので、手法と結果に十分に独創性、新規性が認められ、分子の超短時間分光における新たな知見と見なされる。

これらの結果とモチベーションを発展させたものが第 3 高調波や励起による近紫外超短パルス生成である。

実験的に得られた結果は 6fs 程度と推定され、X-FROG の誤差、推論等の議論をふまえて  $6 \pm 0.3\text{fs}$  と結論された。

本手法の開発途中において、レーザー圧縮系の分散、補償の方法の改善の努力がなされ、フーリエ限界の 4.5fs はえられなかったものの、その原因が光学系の補償が不十分で分散補償がとりきれなかった事に起因するとして、次への課題を指摘している。

本研究においては第 3 高調波励起の NOPA 開発においてフーリエ限界の達成、生成パルス光による分子物性への応用等の超高速分光に、踏み込む事は、今後に残されたものの、研究の意図に基づく研究成果は得られている。又、議論の中で X-FROG 法によるアルゴリズムの収束性、雑音、ゆらぎ等による位相やパルス幅への影響等も議論されており、X-FROG による収束法の一意性の問題等、今後の議論を待つ問題も見られるが、近紫外のサブ 10 フェムト秒分光分野に一步踏み込んだ点は、独創性、新規性も評価でき、今後の発展も期待しうる。

又、第 2 高調波励起による J 会合体の計測に使用されたレーザー系はグループとしての成果を用いたものであるが、それを発展させて第 3 高調波励起光の圧縮系を X-FROG で実時間計測し、その安定性、ゆらぎ報告の原因の検討等、申請者自らの寄与によるところが大である事は明らかに評価できる。

上記の理由により、論文提出者が主体となって行った研究は独自性が高く、又、新規性独創性も評価し、博士論文として妥当なものと認められる。

従って、論文提出者のレーザー物性物理、特に超短パルス分光への寄与が十分に大であり博士(理学)の学位を授与できるものと認める。