

3P080

縮退四光波混合によるコヒーレント振動の制御：溶質・媒体依存性

(阪大院基礎工・極限セ) ○伊藤祥一、洲之内 智、小笠原麻友、長澤 裕、宮坂 博

【序】

3 次の非線形光学現象の一つとして知られている縮退四光波混合 (DFWM) は、分光学的には電子位相緩和時間の測定に利用され、またフェムト秒超短パルスレーザーを用いれば、振動のコヒーレンスを誘起することも可能である。我々は、フェムト秒 DFWM 分光法による、種々の溶質-媒体系におけるコヒーレント振動の制御に関する研究から、パルスの照射時間差によって溶質分子の特定の分子内振動が増幅、あるいは抑制できることを報告してきた[1]。今回は、電子位相緩和時間に対する媒体の影響、また DFWM によって、増幅、抑制が可能な振動モードに関する詳細な知見を得ることを目的として、1-プロパノール (ガラス転移点: ~96 K) ガラス中の色素 NK-2990 の DFWM 信号の測定結果を中心に報告する。

【実験】

測定には当研究室で開発したキャビティダンプ型自己モード同期 Cr:Forsterite レーザーの第二高調波 (635 nm) を使用した。4~5 nJ のパルスをパルス圧縮用のプリズム対を通過させたのちに、2 枚のビームスプリッターで 3 分割し、そのうち 2 つを遅延ステージに導き時間差を設けた後に、焦点距離 10 cm のアクロマートレンズですべての 3 つのパルスをサンプルに集光した。サンプルの代わりに LBO 結晶を置くことにより、3 つのパルス間の自己相関関数を測定したところ、そのパルス幅は~30 fs であった。測定温度は 10 K とし、冷却にはヘリウムガス循環式のクライオスタットを用いた。パルス 1 と 3 の時間差 t_{13} を固定し、パルス 1 と 2 の時間差 t_{12} をスキャンして得られたサンプルの DFWM 信号を、フォトダイオードとロックインアンプにより検出した。

【結果と考察】

DFWM 信号強度は、不均一極限下では理論的に以下の式で表されることが知られている[2]。

$$S(t_{12}, t_{13}) \sim \exp[-4D_{\text{vib}}^2(1 - \cos \omega t_{12})(1 - \cos \omega t_{13})] \exp[-4t_{12} / T_2]$$

T_2 は電子位相緩和時間、 D_{vib} は電子-格子カップリングパラメータ、 ω は振動の角周波数を表している。我々はこれまでに、過渡回折格子信号 ($t_{13}=0$ fs) に観測される振動モードが、 t_{13} を振動周期に同調 (in phase、 $t_{13}=2\pi n/\omega$ 、 $n=0, 1, 2, \dots$) させると抑制され、 t_{13} を振動周期から半周期ずらす (out of phase、 $t_{13}=2\pi(n+1/2)/\omega$) と増幅されることを実験的に確かめている[1]。

図 1 に、 t_{13} を様々に変化させたときに観測された DFWM 信号を、図 2 にはそれらの振動成分のフーリエ変換スペクトルの実数部を示した。今回のサンプルの過渡回折

格子信号からは、93、165、310 cm^{-1} の主に3つの振動モードが観測された。

そのうち、 $t_{13}=0$ fs で強度が最大の 165 cm^{-1} の振動モードの強度変化を調べたところ、上式から振動の増幅が予想される 165 cm^{-1} の半周期に相当する $t_{13}=101$ fs でほとんど振動の増幅は観測されず、およそ 1/4 周期に相当する $t_{13}=54$ fs で顕著な増幅が観測される結果となった。1 周期の $t_{13}=202$ fs で観測されなくなったこの振動モードは、1.5 周期の $t_{13}=303$ fs でわずかに回復するという結果も得られた。また、より低波数の 93 cm^{-1} (周期: 358 fs) の振動モードの増幅も観測された。一方、高波数の 310 cm^{-1} (周期: 108 fs) の振動モードの増幅は観測されなかった。 t_{13} を長くするにつれその強度は徐々に弱まった。また、低波数モードの強度の割合が高くなる傾向も見られた。

以上の結果から、低波数モードの振動ほど増幅されやすく、またその強度も長時間持続されることが分かった。

振動の増幅に関して、理論式から予想される結果と異なった原因として、サンプルの電子位相緩和時間 T_2 が短い可能性が考えられる。 T_2 が短い場合、上式第二項の電子位相緩和の寄与が、第一項のコヒーレント振動の寄与と比べ支配的となるため、振動の増幅効果は期待できない。詳細は当日報告する。

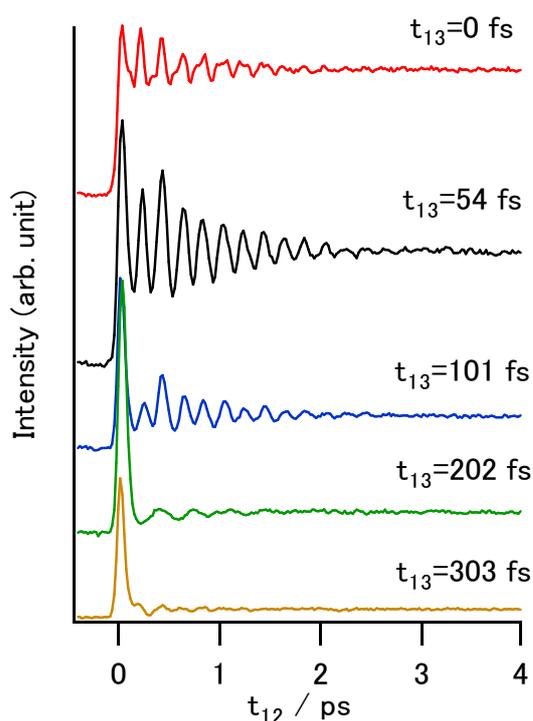


図 1. 1-プロパノールガラス中の NK-2990 の縮退四光波混合信号 (10 K)

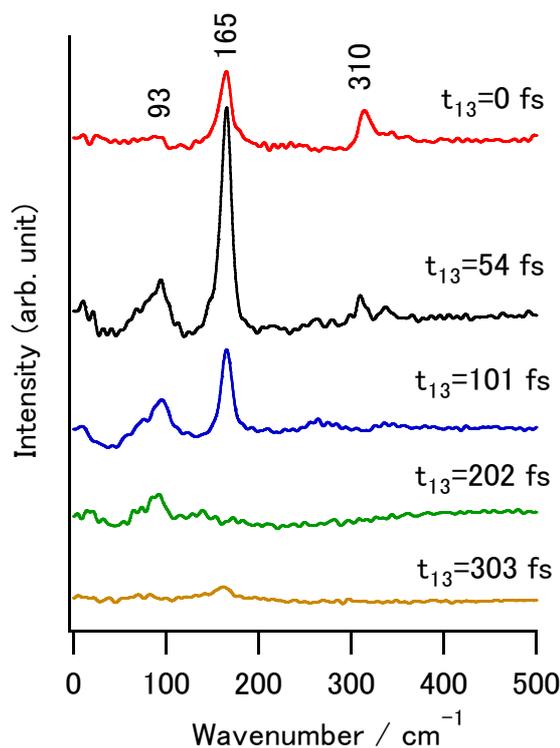


図 2. 図 1 で観測された信号の振動成分のフーリエ変換スペクトルの実数部

- [1] Y. Nagasawa, et al., *J. Phys. Chem. B* **109**, 11946-11952 (2005).
- [2] R. W. Schoenlein, et al., *Phys. Rev. Lett.*, **70**, 1014-1017 (1993).