

氏名	岡林 裕介		
授与した学位	博士		
専攻分野の名称	理学		
学位授与番号	博乙第	4487	号
学位授与の日付	平成30年 3月23日		
学位授与の要件	博士の論文提出者 (学位規則第4条第2項該当)		
学位論文の題目	赤外レーザーを用いたコヒーレント分光, 非線形分光による緩和過程の研究		
論文審査委員	教授 唐 健	教授 金田 隆	准教授 植竹 智
学位論文内容の要旨			
<p>分子集団のコヒーレントな挙動は物理および化学において広く利用され, それに競合する現象としての分子の緩和過程の研究も重要である。本研究では, 非線形分光の Lamb dip 観測と二重共鳴観測およびコヒーレント分光の光学的 Free Induction Decay 観測とフォトエコー観測を用いて, CH₃F 気体分子の周波数領域と時間領域において縦緩和時間と横緩和時間の測定を行ない, 分子の緩和過程の知見を得ることを目的として以下4つの実験を行なった。(1) 「シュタルク変調を用いた Lamb dip 観測からの気体分子 CH₃F ν_4 振動回転遷移の圧力幅測定」では, Lamb dip スペクトルを観測し, 8個の圧力幅定数を得た。これまでの ν_4 振動遷移の圧力幅データは高い回転量子数だったが, 本実験では低い回転量子数 J, K の圧力幅係数を得ることができ, 圧力幅係数の J, K 依存性を知るための貴重なデータを得ることができた。本圧力幅測定実験で測定された ${}^1Q(7, 4)$ 遷移の圧力幅定数は, 他の圧力幅測定実験のそれと一致していた。そして, 得られた圧力幅定数は他3つの実験との比較データとして活かされた。(2) 「気体分子 CH₃F ν_4 振動バンドにおける光学的 Free Induction Decay の観測と解析」では, 計5つの遷移 ${}^1R(0, 0)$, ${}^1Q(1, 0)$, ${}^1R(1, 0)$, ${}^1R(1, 1)$, ${}^1P(2, 1)$ の FID 信号を観測し, 解析から均一横緩和時間を算出した。そして, ${}^1R(0, 0)$ 遷移の均一横緩和時定数の値は, シュタルク変調 Lamb dip 実験から得られた圧力幅定数とは異なっていた。過去の文献においてシュタルク効果が生じている時の衝突断面積がシュタルク効果がない時に比べて大きいことが予想されており, 我々はこの理論を参考にして collision induced reorienting transition 効果としてこの違いを説明し, シュタルク効果がある時の緩和過程を理解した。(3) 「気体分子 CH₃F ν_4 振動バンドにおけるフォトエコー観測と解析」過去のフォトエコー研究で波長 10 μm 帯のフォトエコーから得られた緩和時間が他の実験結果と合わない問題があった。そこで本研究では異なる波長 3 μm 帯で初めてフォトエコーを観測した。そして信号の圧力依存性から緩和時間を得ることができた。そして, 結果は(2)の光学的 FID から得られた結果と一致した。(4) 「赤外-赤外時間分解 2重共鳴分光法を用いた CH₃F ガス ν_4 振動励起状態, 基底状態の縦緩和時間測定」では, ポンプとプローブ両方で赤外光を用いて時間分解 2重共鳴信号を観測し, 信号の時間プロファイルに対してフィット解析を行ない $\nu_4 = 1$ 振動励起状態における計4つの回転状態の縦緩和時間 T_1 を得た。また, 基底状態の縦緩和時間 T_1 も測定した。振動励起状態の縦緩和時間は本研究の Lamb dip 実験と共通の準位で測ったものもあり緩和過程を理解するためのデータとして活用した。</p>			

論文審査結果の要旨

分子集団のコヒーレントな挙動は物理および化学において広く利用され、それに競合する現象としての分子の緩和過程に関する研究も重要である。本研究では、非線形分光の Lamb dip 観測と二重共鳴観測、及びコヒーレント分光の光学的 Free Induction Decay (FID) 観測とフォトエコー観測を用いて、 CH_3F 気体分子の周波数領域と時間領域における縦緩和時間と横緩和時間を測定した。さらに、分子の緩和過程に関する知見を得ることを目的として、それぞれの実験から得られた緩和時間の理論的な解析を行なった。 CH_3F の ν_4 振動バンドにおける回転遷移の Lamb dip 観測によって、過去の測定で欠けていた振動励起状態の低い回転量子数 J , K 準位での圧力幅係数を測定することに成功し、初めて低い J , K 準位における横緩和時間の依存性を明らかにした。 CH_3F の ν_4 振動バンドにおける光学的 FID の観測、フォトンエコーの観測、およびポンププローブ二重共鳴観測での時間分解信号から、さらに低い J , K 準位の緩和時間が解析によって得られた。これらの結果から、一致した振動回転依存的な緩和時間を導くことができ、理論計算の比較基準となることが期待される。これらの成果は国内外の学会で発表され、国際的な学術誌である *Chemical Physics Letters* に二報の論文として掲載された。

CH_3F 気体分子について多様な分光手法において、緩和時間の振動回転依存性に関する緩和過程の研究は新しい知見を与えるものであり、博士（理学）の学位を授与するに値するものと判断する。