

大 島 康 裕 (教 授)(2004 年 9 月 1 日 着 任)

A-1) 専門領域：分子分光学、化学反応動力学

A-2) 研究課題：

- a) 大振幅な構造変形運動に関する量子波束の生成と観測
- b) 非断熱相互作用による量子固有状態分布移動の実現
- c) 非断熱励起によって生成する量子波束の実験的特定
- d) 高分解能非線形コヒーレント分光の開発
- e) 強レーザー場イオン化ダイナミクスについての分光学的研究

A-3) 研究活動の概略と主な成果

- a) 大振幅なねじれ運動のプロトタイプであるメチル基の内部回転について、その振動量子波束の実時間観測に取り組んでいる。既に、各種のトルエン置換体に対して非線形フェムト秒時間分解分光を適用し、電子励起状態ならび電子基底状態における波束生成とその時間発展を実験的に明らかにしている。本年度は、これまでの実測結果を解析するために動力学計算を進め、測定に用いる共鳴フェムト秒パルスの波長と観測される量子干渉信号との相関関係を定量的に再現することができた。
- b) 高強度な極短パルス光と分子との相互作用によって量子状態分布を非断熱的に移動する手法の開発を行っており、最も基本的な系である2原子分子については非断熱回転励起の実現に成功している。本年度は、この方法論をさらに推し進めて多原子分子であるベンゼンに適用した。動力学計算も併用することによって、初期状態の回転量子数によって非断熱励起の経路が顕著に変化することを明らかにした。
- c) 前項で述べた非断熱回転励起では、高強度極短パルス光による多段階のラマン過程によって回転波束が生成する。この波束生成は極めて鋭敏に光強度に左右されるため、量子波束の実験的な特定が本質的に重要となる。新たな波束特定法として、ダブルパルス励起と状態選択的プローブを組み合わせた方法を提案し、モデル計算によってその有効性を検証した。現在、ベンゼンを対象とした実験に着手したところである。
- d) 分子間相互作用ポテンシャルの詳細決定などへの展開を目指して、高分解能非線形コヒーレント分光の開発を行っている。そのために不可欠な光源の1つとして、連続発振 Ti:Sapphire レーザーの出力をパルス的に増幅するシステムの整備を完了した。ベンゼンの高分解能電子スペクトル測定を行い、紫外領域におけるバンド幅は ~300 MHz であり、測定システム全体として ~30 MHz の精度で遷移周波数を決定できることが確認された。また、ベンゼンを含む幾つかの分子クラスターに関して、高分解能電子スペクトルの測定も行った。さらに、もう1つの独立な光源として、半導体レーザーの出力をシード光とするパラメトリック発振レーザーを自作した。単一縦モード発振を実現し、~5 mJ/pulse という十分な出力が得られることを確認した。
- e) 強レーザー場中における分子のトンネルイオン化過程を、特に、分子の配向や回転状態との相関に着目して、分光学的手法を活用して解明する研究を開始した。上記 b), c) で展開している非断熱回転励起に関する動力学計算に、分子の配向に依存したイオン化過程を取り込んだ解析コードの開発を行っている。

B-1) 学術論文

T. OKINO, K. YAMANOUCI, T. SHIMIZU, K. FURUSAWA, H. HASEGAWA, Y. NABEKAWA and K. MIDORIKAWA, “Attosecond Molecular Coulomb Explosion,” *Chem. Phys. Lett.* **432**, 68 (6 pages) (2006).

T. SHIMIZU, T. OKINO, K. FURUSAWA, H. HASEGAWA, Y. NABEKAWA, K. YAMANOUCI and K. MIDORIKAWA, “Observation and Analysis of an Interferometric Autocorrelation Trace of an Attosecond Pulse Train,” *Phys. Rev. A* **75**, 033817 (12 pages) (2007).

B-4) 招待講演

Y. OHSHIMA, “Nonadiabatic rotational excitation by nonresonant intense ultrafast laser fields,” The 2nd Canada-Japan SRO-COAST Symposium on Ultrafast Intense Laser Science, Quebec (Canada), March 2007.

Y. OHSHIMA, “Methyl internal-rotation wavepackets probed by femtosecond time-resolved spectroscopy,” Institute of Atomic and Molecular Sciences, Taipei (Taiwan) and National Tsing Hua University, Hsinchu (Taiwan), March 2007.

H. HASEGAWA, “Rotational-state control by nonadiabatic excitation with nonresonant intense femtosecond laser fields,” Institute of Atomic and Molecular Sciences, Taipei (Taiwan) and National Tsing Hua University, Hsinchu (Taiwan), March 2007.

K. SUMA, “Spectroscopic studies of transient molecules relevant to the atmospheric chemistry,” Institute of Atomic and Molecular Sciences, Taipei (Taiwan) and National Tsing Hua University, Hsinchu (Taiwan), March 2007.

H. HASEGAWA, “Generation and control of rotational wave-packet by intense nonresonant femtosecond laser fields,” Asian CORE Symposium on Advanced Laser Spectroscopy, Kobe (Japan), September 2007.

B-6) 受賞、表彰

大島康裕, 分子科学研究奨励森野基金 (1994).

北野健太, 第23回化学反応討論会ベストポスター賞 (2007).

B-7) 学会および社会的活動

学協会役員、委員

日本分光学会装置部会企画委員 (1995–1999).

日本化学会近畿支部幹事 (2001–2003).

日本化学会東海支部幹事 (2005–2006).

分子科学研究会委員 (2004–2006).

分子構造総合討論会運営委員 (2004–2006).

分子科学会運営委員 (2006–).

日本分光学会先端レーザー分光部会幹事 (2006–).

学会の組織委員

The East Asian Workshop on Chemical Reactions, Local Executive Committee (1999).

分子構造総合討論会実行委員 (2002–2003).

化学反応討論会実行委員 (2005–2006).

学会誌編集委員

日本化学会誌(化学と工業化学)編集委員(2001-2002).

その他

総研大アジア冬の学校実行委員(2006-2007).

B-8) 大学での講義、客員

京都大学大学院理学研究科,「化学特別講義(分子クラスターの構造と反応)」, 2007年6月26日-27日.

神戸大学大学院理学研究科,「特別講義(分子クラスターの構造と反応)」, 2007年7月11日-12日.

総合研究大学院大学物理科学研究科,「分子分光基礎論」, 2007年12月10日-12日.

B-10) 外部獲得資金

一般研究(B),「溶媒とクラスター内エネルギー散逸過程の実時間領域測定」, 大島康裕(1996年-1997年).

三菱油化学研究奨励基金,「分子配置の量子波束制御と化学反応コントロール」, 大島康裕(1998年).

基盤研究(B),「微視的溶媒和による無輻射過程の制御機構の解明」, 大島康裕(1998年-2000年).

日本証券奨学財団研究調査助成,「1重項酸素生成機構の分子論的解明」, 大島康裕(2000年-2001年).

旭硝子財団研究助成,「1重項酸素生成機構の分子論的解明」, 大島康裕(2000年-2001年).

日本原子力研究所黎明研究,「気体分子の配向完全制御と動的構造決定への応用」, 大島康裕(2002年).

住友財団基礎科学研究助成,「気体分子の配向完全制御と動的構造決定への応用」, 大島康裕(2002年).

基盤研究(B),「孤立少数自由度系における構造相転移の実験的探索」, 大島康裕(2002年-2004年).

光科学技術振興財団研究助成,「コヒーレント光による分子運動の量子操作」, 大島康裕(2003年-2004年).

特定領域研究(強光子場分子制御)(公募)「強光子場による分子配列・変形の分光学的キャラクタリゼーション」, 大島康裕(2003年-2005年).

基盤研究(A),「高輝度コヒーレント光によるコンフォメーションダイナミックスの観測と制御」, 大島康裕(2006年-2009年).

三菱財団自然科学研究助成,「量子準位分布制御を利用した分子間相互作用の精密決定」, 大島康裕(2006年-2007年).

若手研究(B),「気相分子の回転固有状態の波動関数イメージング」, 長谷川宗良(2006年-2007年).

C) 研究活動の課題と展望

分子研で新たに研究室を立ち上げてから3年が経過し,非共鳴な高強度極短パルス光との非断熱相互作用を利用した量子状態分布や量子波束の操作について,基本的な原理検証ならびに実験施設の整備はほぼ完了した。ただし,これまでの一連の研究を通じて,高精度の操作を行なう上で極短パルス光の空間的不均一性が大きな問題となることが明らかになった。均一なレーザー場中での観測を可能とする測定系へと早急に改良し,量子波束の完全な特定や高効率な状態分布移動の実現を目指す。また時間依存偏光回転などの高度な光パルス制御技術の確立にも取り組みたい。その上でより多様なターゲットへの展開や,光解離や光イオン化などの化学反応ダイナミックス研究への適用をはかる。一方,高分解能レーザーを用いた非線形コヒーレント分光に関しては,複数のコヒーレントパルス光源の開発・整備がようやく完了しつつあり,高い状態選択性を保持した断熱的分布移動の実現に早急に着手したい。特に,クラスターにおける分子間振動準位構造の詳細決定への適用を図る。