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) 非断熱相互作用による量子固有状態分布移動の実現
- b) 非断熱励起によって生成する量子波束の実験的特定
- c) 大振幅な構造変形運動に関する量子波束の生成と観測
- d) 右 / 左方向に回転する量子波束の生成と観測
- e) 高分解能非線形コヒーレント分光の開発
- f) 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) 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なっている。特に非共鳴光によるインパルスラマン励起と状態選択的プローブを組み合わせた実験手法を独自に開発し、回転運動に関する非断熱励起の実現と励起プロセスの詳細な追跡に利用してきている。これまでの2原子分子に関する研究に加えて、多原子分子の典型例としてベンゼンについて重点的に研究を行なっている。初期回転状態によって励起経路が顕著に変化することが理論的に予想されており、現在、ダブルパルス励起を用いた実験的検証を進めている。
- b) 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。そこで、ダブルパルス励起後の状態選択的プローブに基づいた新規決定法を提案し、さらに、ベンゼンを対象として実験を行なうことにより、回転量子波束の振幅および位相情報を初めて決定した。
- c) 上記 a) の非断熱励起は分子の分極に起因する現象であるため振動に関しても実現可能であり、特に、分子間振動のような低波数の振動モードの励起に有効と考えられる。このような発想に基づいて、ベンゼンクラスターを対象として実験を行い、分子間振動状態分布の非断熱移動を初めて実現した。さらに、振動量子波束の干渉を実時間領域のスペクトルとして直接観測することにも成功した。特に、通常のポンプ - プローブ法ではイオン化後の解離によって中性クラスターのサイズ選別が困難であるのに対して、状態選択的プローブの利点を活用することにより、2量体と3量体のスペクトルを明確に分離して測定することができた。
- d) 通常の非断熱励起では、古典的な右もしくは左回転に対応する量子波束の生成は不可能である。チャープした円偏光パルスを用いる手法が提案されているが、実験的な検証例はない。今回始めて、直線偏光を利用して適切にタイミングと偏光面を調節すれば、右 / 左方向回転の量子波束が生成できることを理論的に明らかにした。さらに、提案したスキームに則って回転励起した後に円偏光プローブによってスペクトルを観測することにより、空間的な orientation が実現されていることを実験的に検証した。
- e) 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た高分解能非線形コヒーレント分光用光源として、半導体レーザー出力をシード光とするパラメトリック発振レーザーの製作を行なっている。光学系に様々な改良を加えることにより、 ~ 7 mJ/pulse という十分な出力のもとに安定に単一縦モード発振するシステムを完成した。

- f) 強レーザー場中における分子のトンネルイオン化過程について，分光学的手法を活用して解明する研究を行っており，イオン化の影響によって回転状態分布が有意に変化することを実験的に明らかにした。

B-1) 学術論文

H. HASEGAWA and Y. OHSHIMA, “Nonadiabatic Rotational Excitation of Benzene by Nonresonant Intense Femtosecond Laser Fields,” *Chem. Phys. Lett.* **454**, 148–152 (2008).

H. HASEGAWA and Y. OHSHIMA, “Quantum State Reconstruction of a Rotational Wave Packet Created by a Nonresonant Intense Femtosecond Laser Field,” *Phys. Rev. Lett.* **101**, 053002 (4 pages) (2008).

P. ANTOINE, E. FOUMOUO, B. PIRAUX, T. SHIMIZU, H. HASEGAWA, Y. NABEKAWA and K. MIDORIKAWA, “Two-Photon Double Ionization of Helium: An Experimental Lower Bound of the Total Cross Section,” *Phys. Rev. A* **78**, 023415 (11 pages) (2008).

B-4) 招待講演

Y. OHSHIMA, “Quantum-state manipulation of molecular motions with intense coherent light pulses,” The 2008 Asian-Core Symposium and Annual Meeting, Biomedical Research Center, KAIST, Deajeon (Korea), March 2008.

Y. OHSHIMA, “Coherent rotational dynamics of molecules in intense laser field,” The 15th International School on Quantum Electronics “Laser Physics and Applications,” Bourgas (Bulgaria), September 2008.

Y. OHSHIMA, “Coherent rotational/vibrational dynamics of molecules induced by intense ultrafast laser fields,” 8th Symposium on Extreme Photonics, Gamagori (Japan), November 2008.

Y. OHSHIMA, “Coherent rotational/vibrational dynamics of molecules induced by intense ultrafast laser fields,” 8th Asian International Seminar on Atomic and Molecular Physics, Perth (Australia), November 2008.

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

学協会役員等

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–).

分子科学会幹事 (2008–).

日本分光学会先端レーザー分光部会幹事 (2006–).

学会の組織委員等

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).

分子科学討論会実行委員 (2008–2009).

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

総合研究大学院大学物理科学研究科, 「精密構造化学」 2007年7月9日–10日.

東京大学教養学部, 大学院総合文化研究科「基礎科学特別講義XIII, 関連基礎科学特殊講義VIII (光と分子のコヒーレントダイナミクス)」 2008年7月15日–17日.

横浜市立大学理学専攻, 「基盤科学序説(レーザー光で分子の運動を制御する)」 2008年11月17日.

B-10) 競争的資金

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(公募研究)「強光子場分子制御」「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).

萌芽研究, 「マルチカラー同時発振レーザーの開発とコヒーレント分子科学への展開」, 大島康裕 (2008年–2009年).

特定領域研究(公募研究)「高次系分子科学」「非線形コヒーレント分光による分子間相互作用の精密決定」, 大島康裕 (2008年–2009年).

C) 研究活動の課題と展望

非共鳴な高強度極短パルス光との非断熱相互作用によって、振動自由度に関する量子状態分布や量子波束の操作を実現できたことは、極めて大きな前進であったと言える。当研究グループ独自の的方法論は、多様な分子系への適用の可能性を有しており、特に、サイズを明確に規定した分子クラスターにおける分子間振動の実時間ダイナミックスの研究に威力を発揮すると期待される。ベンゼンを含むヘテロクラスターへと対象を広げ、汎用性を実際に検証したい。また、回転励起の場合同様に、多段階のラマン過程が関与した量子波束生成も可能のはずである。光強度の制御や多重パルス励起の利用などによって実際に多段階励起を実現し、高振動励起分子の生成や構造異性化の誘起などへ繋げたい。また、右 / 左方向回転の量子波束を生成する方法論は実験的にも確立したので、イオンイメージング技術と結合することによって量子力学的な「右もしくは左回転」の画像化に取り組む。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たので、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する。