

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状態分布や量子波束の制御
- b) 超高速分子回転オリエンテーションの実現
- 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) ベンゼンを含む分子クラスターの高分解能レーザー分光
- 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きた。特に，状態選択的プローブを利用した独自の実験的方法論により，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た。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い，特に，ダブルパルス励起を用いた実験により，初期回転状態によって励起経路が顕著に変化することを明らかにした。
- b) 角運動量ベクトルの方向が揃った状態であるオリエンテーションを実現することは，原子・分子に関する様々な物理過程で重要視されてきている。従来の研究では円偏光が利用されてきたが，タイミングと偏光面を調節した直線偏光パルス対による非断熱励起を用いれば，回転角運動量のオリエンテーションが実現できることを初めて明らかにした。本手法は，ピコ秒程度でオリエンテーションが完了し，さらに，古典的な右もしくは左回転に対応する量子波束を生成することが大きな特徴である。
- 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である。これまで既に，ベンゼンクラスターにおいて分子間振動分布に関する非断熱移動を実現し，さらに，振動波束干渉を実時間領域のスペクトルとして観測することにも成功している。本年度は，分子間相互作用ポテンシャルが精度良く決定されている NO-Ar クラスターを対象に取り上げ，非断熱励起後の状態分布について詳細に検討を加えるために，電子励起スペクトルの系統的な測定を行った。この際，新規に真空チャンバーと高繰り返しパルス色素レーザーを導入して，測定効率の大幅な向上を実現した。
- d) 芳香環の関与する分子間相互作用を詳細に特定する目的で，ベンゼンを含む分子クラスターに関する分光学的研究を進めている。本年度は，その中でも最も結合の弱いベンゼン-He 系について，2色のレーザーを利用した共鳴2光子イオン化によって電子スペクトルを測定した。単一縦モードナノ秒パルス光源を利用した高分解能の計測によって，各種分光定数を高精度で決定することができた。
- e) コヒーレント状態分布移動における新しい方法論として，チャープパルスを利用した非共鳴誘導ラマン分光を理論的に検討し，高い分布移動能力と汎用性を両立しうることを明らかにした。さらに，当分光法を実現しうる新奇なコヒーレント光源として，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なっている。イオン化の影響による回転状態分布の変化を実験的に定量し、モデル計算との比較によってイオン化ダイナミクス、特に、角度依存性との相関関係を明らかにした。

B-1) 学術論文

K. KITANO, H. HASEGAWA and Y. OHSHIMA, “Ultrafast Angular-Momentum Orientation by Linearly Polarized Laser Fields,” *Phys. Rev. Lett.* **103**, 223003 (4 pages) (2009).

Y. SENBA, K. YOSHIDA, S. KASAHARA, C. -K. NI, Y. -C. HSU, S. H. LIN, Y. OHSHIMA and M. BABA, “Rotationally Resolved Ultrahigh-Resolution Laser Spectroscopy of the $S_2 \ ^1A_1 \leftarrow S_0 \ ^1A_1$ Transition of Azulene,” *J. Chem. Phys.* **131**, 024303 (6 pages) (2009).

M. BABA, M. SAITOH, Y. KOWAKA, K. TAGUMA, K. YOSHIDA, Y. SENBA, S. KASAHARA, T. YAMANAKA, Y. OHSHIMA, Y. -C. HSU and S. H. LIN, “Vibrational and Rotational Structure and Excited-State Dynamics of Pyrene,” *J. Chem. Phys.* **131**, 224318 (10 pages) (2009).

B-2) 国際会議のプロシーディングス

H. HASEGAWA and Y. OHSHIMA, “Coherent Rotational Dynamics of Molecules in Intense Laser Field,” *Proc. SPIE Vol. 7027*, 70271F (10 pages) (2008).

B-4) 招待講演

H. HASEGAWA, “Coherent dynamics of molecular rotation and vibration induced by nonresonant intense femtosecond laser fields,” East Asian Workshop on Chemical Reaction, National Taiwan University, Taipei (Taiwan), March 2009.

H. HASEGAWA, “Coherent rotational and vibrational dynamics of small molecules induced by nonresonant intense femtosecond laser fields,” The Chemical Society of Japan, the 89th Annual meeting, Asian international symposium, Nihon University, Funabashi (Japan), March 2009.

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).

北野健太, 平成21年度分子科学会優秀講演賞 (2009).

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,「分子分光基礎論」2009年12月7日-9日.

岡山大学大学院自然科学研究科,「光と分子のコヒーレントダイナミクス」2009年11月30日-12月1日.

B-10) 競争的資金

日本学術振興会科研費基盤研究(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).

日本学術振興会科研費基盤研究(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).

文部科学省科研費特定領域研究「強光子場分子制御」(公募研究)「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).

日本学術振興会科研費基盤研究(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).

文部科学省科研費若手研究(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).

日本学術振興会科研費萌芽研究,「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).

文部科学省科研費特定領域研究「高次系分子科学」(公募研究)「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).

文部科学省科研費若手研究(B),「高強度レーザー場を用いた新しい振動分光法による孤立分子クラスター研究の新展開」長谷川宗良 (2009年-2010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による非断熱回転励起においては、単なる状態分布移動のみでなく、生成する回転量子波束の実験的再構築や角運動量が配列した量子波束の生成など、高度なコヒーレント制御・観測が実現できる体制が整いつつある。今後は、イオンイメージング技術と結合した回転運動の画像化や、光分解・光イオン化などの反応ダイナミクス研究への展開を目指す。また、非断熱励起を振動自由度へ適用する研究も順調に進行しており、分子回転で発展させてきた様々な方法論を利用するフェーズに間もなく移行できると期待している。特に、多段階のラマン過程が関与した量子波束生成を実現し、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。

ナノ秒コヒーレント光源を利用した周波数領域分光では、ベンゼン-Heについて極低温(0.3 K)条件下の高分解能スペクトル測定を行うなど、ようやく本格的に実験に取り組める体制が整った。今後は、超流動との関連性から興味を持たれているベンゼン-(He)_n や 水素結合の典型であるベンゼン-水など、順次、研究対象を拡大する。また、現在、早急に進めているナノ秒チャープ光源の開発が完了次第、複数のコヒーレントパルス光源を利用した断熱的分布移動の実現に着手する。これによって、クラスターの内部運動に関する振動準位構造を詳細に特定することが可能となる。