

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) 大振幅な構造変形運動に関する量子波束の生成と観測
- c) 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
- 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
- f) 円錐交差ダイナミクスに対する高分解能分光学的アプローチ

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ている。昨年度，高繰り返しでデータ取得が可能ないように真空チャンパーならびにパルス色素レーザーを整備し，高いS/N比を短時間で達成できるようになった。この新測定システムを利用することにより，NO分子を対象として，回転量子波束の位相・振幅情報を完全に実験的に決定することに成功した。さらに，パルス対を利用した励起において，パルス間隔を適切に調節することによって単一の回転準位に70~80%まで分布を集中させることが可能であることを初めて実験的に示した。
- b) 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2-3量体やNO-Ar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，NO-Arについて詳細な実験的検討を行ない，様々なホットバンドをモニターして系統的に時間領域のデータを取得するとともに，2次元振動量子波束の時間発展を厳密に数値的に解くためのプログラム整備を行なった。
- c) 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。中でも最も結合の弱いベンゼン-He系を重点的に取り上げ，単一縦モードナノ秒パルス光源を利用して高分解能で電子スペクトルを測定した。分子間振動励起状態への振電遷移を初めて観測することに成功し，特に，He原子が1個ついた系では大規模な構造変形運動によるトンネル分裂を見出した。
- d) コヒーレント状態分布移動の新技术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提案し，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。
- 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た。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強光電場イオン化の角度依存性との相関を明らかにした。

- f) 韓国 KAIST の研究グループは、イオウを含む芳香族分子の光解離過程において、反応分岐比が特定の振電バンド近傍で急激に変化することを見出した。この観測事実は、初期励起状態が解離性の電子状態と円錐交差を通じて相互作用していることを実験的に明示した結果として、高い注目を集めている。この円錐交差ダイナミクスについて分光学的側面からアプローチするために、KAIST グループと協力して、当該分子の電子スペクトルを高分解能で測定する研究に着手した。

B-1) 学術論文

Y. SUMIYOSHI, I. FUNAHARA, K. SATO, Y. OHSHIMA and Y. ENDO, “Microwave Spectroscopy of the Ne–OH($^2\Pi_i$) Complex and Three-Dimensional Intermolecular Potentials,” *Phys. Chem. Chem. Phys.* **12**, 8340–8349 (2010).

R. ITAKURA, H. HASEGAWA, Y. KUROSAKI, A. YOKOYAMA and Y. OHSHIMA, “Coherent Correlation between Nonadiabatic Rotational Excitation and Angle-Dependent Ionization of NO in Intense Laser Fields,” *J. Phys. Chem. A* **114**, 11202–11209 (2010).

Y. SUMIYOSHI, I. FUNAHARA, K. SATO, Y. OHSHIMA and Y. ENDO, “Three-Dimensional Intermolecular Potential Energy Surface of the Kr–OH Complex,” *Mol. Phys.* **108**, 2207–2218 (2010).

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 Induced by Intense Ultrafast Laser Fields,” *J. Phys.: Conf. Series* **185**, 012014 (4 pages) (2009).

B-3) 総説, 著書

Y. OHSHIMA and H. HASEGAWA, “Coherent Rotational Excitation by Intense Nonresonant Laser Fields,” *Int. Rev. Phys. Chem.* **29**, 619–663 (2010).

大島康裕, 「極短パルスレーザー光による分子回転の高速制御」, *パリティ* 12月号, 34–36 (2010).

B-4) 招待講演

大島康裕, 「高強度レーザー場によって誘起される分子振動・回転のコヒーレント光ダイナミクス」, レーザー学会第30回年次大会, 千里ライフサイエンスセンター, 大阪府豊中市, 2010年2月.

Y. OHSHIMA, “Coherent rotational/vibrational dynamics of gas-phase molecules induced by intense ultrafast laser fields,” Seminar, National Chiao Tung University, Hsinchu (Taiwan), March 2010.

Y. OHSHIMA, “Coherent rotational/vibrational dynamics of molecules induced by intense ultrafast laser fields,” Symposium on “Physics and Chemistry of Coherently Controlled Quantum Systems,” Meitestu Inuyama Hotel, Inuyama (Japan), March 2010.

Y. OHSHIMA, “Intermolecular vibrational dynamics of molecular clusters investigated by frequency- and time-domain spectroscopy,” PACIFICHEM 2010, Honolulu (U.S.A.), December 2010.

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).
分子科学総合討論会運営委員 (2004–2006).
分子科学会運営委員 (2006–2010).
分子科学会幹事 (2008–2010).
日本分光学会先端レーザー分光部会幹事 (2006–).
日本化学会物理化学ディビジョン主査 (2010–).

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, 2010–2011).

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, 「分子分光学」 2010年7月8日–12日.
総合研究大学院大学物理科学研究科, 「量子分子科学」 2010年11月24日–26日.

B-9) 学位授与

北野健太, 「分子の回転角運動量オリエンテーションに関する新手法の開拓」 2010年3月, 博士(理学)

B-10) 競争的資金

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).
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).
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).
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).
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).
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).
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-2011年).
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).
科研費基盤研究(A),「分子運動量子状態のデザインと再構築」大島康裕 (2010年-2013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った。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段階である。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)_{1,2}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、実験システムの整備はほぼ完了した。今後は、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。その際、複雑かつ不規則な回転構造の帰属を確定させるために、複数の高分解能ナノ秒パルス光源を利用した非線形分光を活用する。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、新規な断熱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。