

平成21年 4月 30日現在

研究種目：基盤研究 (A)  
研究期間：2006～2009  
課題番号：18205005  
研究課題名 (和文) 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  
研究課題名 (英文) Observation and control of conformation dynamics by intense coherent light  
研究代表者  
大島 康裕 (OHSHIMA YASUHIRO)  
分子科学研究所・光分子科学研究領域・教授  
60213708

研究分野：化学

科研費の分科・細目：基礎化学・物理化学

キーワード：分子分光学、強レーザー場、フェムト秒化学

## 1. 研究計画の概要

高輝度コヒーレント光の活用をキーテクノロジーとして、flexibleに構造を変化しうる分子系について、そのコンフォメーションダイナミックスを量子力学的現象として観測し、さらにその制御を目指す。対象としては、構成分子が内部で大きく配置を変えうる気相分子クラスターなどを取り上げ、以下のように、段階的に研究を進行させる。

(1) コンフォメーションの変化をもたらす一般には多次元の運動自由度について、振動準位構造を幅広いエネルギー領域で詳細に特定する。

(2) (1)の実験情報に基づき、コンフォメーション変化に対応するポテンシャル曲面を決定し、運動状態の量子力学記述を確立する。

(3) 高励起量子準位へ内部状態分布を高い効率で移動する方法を開拓し、(2)の結果をもとにして構造異性化などのコンフォメーション制御を実現する。

## 2. 研究の進捗状況

研究計画概要中の(1)に対応するため、非線形高分解能コヒーレント分光の開発に取り組んでおり、そのために不可欠なフーリエ限界ナノ秒パルス光源の開発を進めている。まず、連続発振リングチタンサファイアレーザーの出力をパルス的に増幅するシステムを導入し、共鳴2光子イオン化によってベンゼンの高分解能電子スペクトルの測定を行った。紫外領域においても400 MHz以下の周波数分解能が

得られ、十分に高いコヒーレンスを有することを確認し、Neや水がベンゼンと結合したクラスターのスペクトル測定にも成功した。また、連続発振半導体レーザーをシード光とするパラメトリック増幅により単一縦モードのナノ秒パルス光を発生するシステムを独自に製作した。さらに、新規な非線形コヒーレント分光の方法論開拓を行い、シード光を適切に位相変調したコヒーレントパルスを利用すると、非共鳴な誘導ラマン過程によっても状態分布の完全移動を実現できることを理論的に明らかにした。

計画概要の(3)に対応しては、非共鳴な高強度フェムト秒パルスとの相互作用によって分子運動のコヒーレントな励起状態を生成する方法論を用いて、ベンゼン2・3量体について分子間振動モードの量子波束の生成と観測を実現できた。具体的には、フェムト秒パルス光をベンゼンクラスターに照射し、その後ナノ秒色素レーザーを用いてREMPIスペクトルを測定したところ、振電バンドが変化することを見出した。さらに、2量体のバンドをプローブしながらフェムト秒パルス対によって励起を行なったところ、明確な量子ビートが観測された。ビートの周期は、既報の分子間振動バンドの振動数に対応しており、インパルスラマン過程によって電子基底状態の分子間振動波束が誘起されたことを示す。同様の実験を3量体についても行い、分子間振動数に関する初めての実験データを得ることができた。

### 3. 現在までの達成度

②おおむね順調に進展している。

(理由)

(1) ベンゼンの2・3量体を対象として、コンフォメーション変化に直接対応する分子間振動について、量子波束を実験的に生成・観測することに初めて成功した。特に、3量体については、分子間振動に関する初めての分光学的データである。

(2) 非共鳴な高強度フェムト秒パルスとの相互作用によって分子運動のコヒーレントな励起状態を生成する方法論を確立した。特に、生成した量子波束について位相・振幅情報の全てを実験的に決定する手法を考案し、さらに、実験的に検証した。

(3) 世界的にも極めて限られているナノ秒のコヒーレント光源を独自に製作した。さらに、適切な位相変調を行うことにより完全な状態分布移動が実現できることを見出した。

### 4. 今後の研究の推進方策

(1) 分子間振動量子波束の生成・観測において、通常の分光学的手法では極めて困難な段階的な多重遷移を誘起し、高励起状態を効率良く生成してコンフォメーション変化の実現へと繋げることを目指す。適切な間隔のマルチパルスを利用するなど、適切な励起条件を理論的に予測しつつ、実験を進行させる。

(2) ナノ秒コヒーレント光源を利用した非共鳴な誘導ラマン分光によって、ベンゼンを含む分子クラスターの分子間振動に関するエネルギー準位構造を詳細に決定する。この際、本研究で初めて考案された位相変調パルスの利用により、完全状態分布移動を実現し、高品質のスペクトル測定を行う。

### 5. 代表的な研究成果

(研究代表者、研究分担者及び連携研究者には下線)

[雑誌論文] (計3件)

- ① 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**, 053002-1-4 (2008). 査読あり
- ② H. Hasegawa and Y. Ohshima, “Nonadiabatic rotational excitation of benzene by nonresonant intense femtosecond laser fields,” *Chem. Phys. Lett.* **454**, 148-152 (2008). 査読あり

- ③ H. Hasegawa and Y. Ohshima, “Decoding the state distribution in a nonadiabatic rotational excitation by a nonresonant intense laser field,” *Phys. Rev. A* **74**, 061401-1-4(R) (2006). 査読あり

[学会発表] (計3件)

- ① Y. Ohshima, “Coherent rotational/vibrational dynamics of molecules induced by intense ultrafast laser fields,” *8th Asian International Seminar on Atomic and Molecular Physics*, the University of Western Australia, Perth, Australia, 2008.11.28.
- ② Y. Ohshima, “Coherent rotational dynamics of molecules in intense laser field,” *The 15th International School on Quantum Electronics “Laser Physics and Applications,”* Bourgas, Bulgaria, 2008.9.18.
- ③ Y. Ohshima, “Nonadiabatic rotational excitation by nonresonant intense ultrafast laser fields,” *The 2nd Canada-Japan SRO-COAST Symposium on Ultrafast Intense Laser Science*, Laval University, Quebec, Canada, 2007.3.8.

[その他]

研究内容紹介ホームページ

<http://www.ims.ac.jp/know/light/oshima/ohshima.html>