

# 論文審査の結果の要旨

氏名 ホサイン・モハンマド マルフ

本論文は5章からなる。第1章はイントロダクションであり、分子配列(alignment)および分子配向(orientation)の定義と、その制御技術を確立することの意義、さらに当該分野の研究の流れと、全光学的手法による配向制御の重要性について述べられている。

第2章では物理的背景と理論的側面について解説されている。座標系の定義とともに、光電場を含むハミルトニアン $H$ の導出とその計算手法が説明されている。分極率の異方性による対称なポテンシャルによって分子配列が進行する一方で、分子配向を目指す上では超分極率の異方性に起因する非対称ポテンシャルが重要であることが示されている。また光パルスによる分子配向制御においては、分子回転周期(本研究のOCS分子の場合には82 ps)に対して十分長いまたは短い包絡線を持つ光パルスを用いることで、実験条件が断熱的または非断熱的領域に分類して考えるのが一般的である。それぞれの励起環境下において系の時間発展がどのように計算されるかの手法が詳細に解説されている。

第3章では、実際に分子配向制御を行った実験系の説明と結果について述べられている。気体分子パルスを試料とし、プローブパルスによって生成されたフラグメントイオンの速度分布をカメラで計測することで分子配向度を評価している。本研究では、気体分子パルスに対して偏向器を設置することで、静電場によるシュタルクシフトにより固有状態のエネルギーを操作し、 $J=0$ の状態にある分子の割合が50%に達する条件を実現した。さらに正負非対称な光電場による配向制御のため、波長1064 nmの基本波およびその二次高調波を用いた。互いのパルス幅は12 nsおよび9 nsであり、そのまま使用すると光電場の崩落線の立ち上がり時間に時間差が生じることで照射直後に正負対称な光電場が印加され、分子配向ではなく分子配列が進行してしまう。それを避けるため、2色の光路を分岐して時間遅延を制御することで照射直後から非対称な光電場が印加されるように設計したことが本研究の重要な工夫である。一方で光路を分岐して長い遅延を設けたために、2色間の位相差が不安定になり、巨大な揺らぎが生じる問題が発生した。そこで速度分布の画像計測を繰り返し行い分子配向度のヒストグラムを取得して、その分布関数の裾野を評価することで、瞬間的には配向度が正方向に+0.28、負の方向に-0.32に達していることを確認した。この値は2色レーザーによる分子配向制御の先行研究で報告された0.04を一桁近く上回る極めて高い配向度が実現したことを意味している。さらに光強度に対して分子配列度は単調に増加するものの、分子配向度は非単調に変化してやがて減少に転じることを見出した。この振る舞いは断熱近似による計算では説明できず、非断熱的励起を想定した数値シミュレーションによって再現されることを確かめた。この

結果は、回転周期よりも遥かに長いパルスレーザーを用いた場合においても断熱近似が破綻することを示しており、高強度電場下では分極率による対称なポテンシャルが支配的に働いて分子配列が進む一方、より深いポテンシャルへのトンネリングが起こりにくくなるため分子配向度は抑制されていると考えられる。

第3章の実験結果を受けて、第4章では新たな分子配向技術として、直線偏光した基本波とともに楕円偏光の二次高調波を用いる手法を考案し、そのシミュレーションを行っている。これにより対称なポテンシャルによって分子配列が進む過程が抑制され、より効率的に分子配向が進むことが期待される。ここでは時間依存シュレディンガー方程式を数値的に解くことにより、楕円率と光強度を制御することで分子配向度を向上させることができることを示した。

第5章では本研究の結果と今後の課題及び展望が述べられている。

本研究内容は、偏向器の導入および光学遅延制御により、過去に報告された分子制御の配向度を一桁近く向上させることに成功したという点で重要な研究であると認められる。さらに時間依存シュレディンガー方程式による詳細な理論計算と照らし合わせることで、従来の評価基準では断熱的励起に分類される実験環境下においても、断熱近似が成り立っていないことを示した。さらにこの状況を改善するために、楕円偏光した二次高調波を用いる手法を考案し、ポテンシャルの対称性を崩すことで分子配列のさらなる向上が期待できる可能性を提案した。論文提出者は精密な光学実験と複雑な数値計算の両方をこなし、独自のアイデアを提案し分子配向制御研究の進展に大きく貢献したと認められる。

なお、本論文第3章は酒井広文氏、峰本紳一郎氏、Xiang Zhang氏、山田涼平氏との共同研究であり、また第4章は酒井広文氏との共同研究であるが、いずれも論文提出者が主体となって実験とその解析および理論計算を行ったもので、論文提出者の寄与が十分であると判断する。

したがって、博士（理学）の学位を授与できると認める。