

論文審査の結果の要旨

論文提出者氏名 園田浩太郎

高強度短パルスレーザー光と分子の相互作用は、光強度が弱い時には観測されない様々な新しい現象を誘起するため、それらのメカニズムについて興味を持たれている。そのうちクーロン爆発や分子構造変形といった現象については、生成した陽イオンの観測から、解離過程や、構造変形について数多くの研究がなされてきた。一方、クーロン爆発が誘起されるまでの過程、例えば分子の内部状態の励起過程や、イオン化過程も研究がなされているが、その多くはクーロン爆発によって生成した解離イオンの観測に基づく間接的なものである。本研究では、解離イオンの測定とは異なり、親イオンの計測および生成した1価イオンの分光測定にもとづき、高強度光と分子の相互作用における初期過程であるイオン化過程と内部状態の変化、特に回転状態の変化を直接調べ、以下3点を明らかにした。(1) OCS分子の高強度光によるイオン化では、高強度光の偏光方向と分子軸が平行の時にイオン化確率が高くなる。これはOCS分子もしくはOCS⁺イオンのHOMO軌道の形状から説明されることを明らかとした。(2) OCS分子をレーザー偏光方向に揃える分子配向技術を改良し、OCS分子の向きを制御できることを示した。(3) 高強度光によってイオン化する際に、光の中で中性分子の回転状態が励起され、さらにイオン化の後に回転励起が起こることを明らかにした。

論文は全体で6章からなり、第1章は序論であり、高強度レーザー光と分子の相互作用の研究背景が述べられ、特にイオン化過程について述べられている。

第2章は、本研究で取り扱うOCS分子、N₂O分子およびN₂O⁺イオンの回転準位について述べられている。特にN₂O⁺は不対電子を持ち、電子の軌道角運動量とスピン角運動量が分子の回転運動と結合するために複雑な回転準位となるが、その詳細が記載されている。また、高強度光と分子の分極率異方性による相互作用によって誘起される回転状態の変化についての理論的な枠組みが述べられ、分子配列および分子配向について理論的な枠組みを用いて説明している。

第3章以降は、本論文で行なった実験結果が示されている。行われた実験は、

ポンプ-プローブ法によるもので、ポンプ光によって現象を引き起こし、遅延時間ののちプローブ光を照射することによって、ポンプ光によって誘起された現象の時間変化を測定するものである。第3章では、OCS分子のイオン化過程が調べられている。高強度光をOCS分子に照射して回転状態を変化させ、その時間変化をプローブ光によって生成したOCS²⁺およびOCS³⁺のイオン収量の測定を行なった。そこからレーザーの偏光方向と分子軸のなす角度に応じてイオン化確率が変化することを明らかにした。特に、レーザー偏光方向と分子軸が平行の時に、イオン化確率が增大するが、これはOCS分子もしくはOCS⁺イオンのHOMO軌道の形状によってうまく説明できることを示した。

第4章では、高強度光を用いてOCS分子を空間に並べる技術、分子配向技術、の結果が示されている。特に、配向させる前に高強度光を照射し分子を配列させることで、配列度が10倍以上に増大することを示し、また、配列させる光と配向させる光の遅延時間を制御することで、OCS分子の向きが制御できることを実験的に初めて示した。

第5章では、N₂O分子に高強度光を照射して生成したN₂O⁺イオンの回転状態を周波数領域の分光によって観測した。実験において、光強度1.1 x 10¹⁴ TW/cm²の光によって生成したN₂O⁺イオンは角運動量量子数J=61.5という高い回転状態へ励起されていることが観測された。その観測結果を再現するために理論モデルを構築し、中性分子だけでなくイオンも光の中で回転励起していることを示した。また、生成したイオンに対してポンプ-プローブ実験を行い、回転状態の時間発展を測定することで、イオンの回転状態は位相関係を保っておりコヒーレントに複数の回転状態が励起されていることを実験的に明らかにした。

本研究では、これまでほとんど直接的に観測されていなかった、高強度光によって誘起される分子配向やクーロン爆発に至らないイオン化の初期過程を親イオンに着目して調べたもので、その学術的価値は非常に高いと結論できる。これらの研究結果のうち、OCSの分子配向に関してはすでに査読付き論文として印刷公表されている。また、OCSのイオン化過程およびN₂Oの分光研究の研究結果は論文として投稿準備中である。これらの結果は、岩崎純史、山内薫、長谷川宗良との共同研究であるが、全ての研究において論文提出者が主体的に実験、解析、考察を行っており、提出者の寄与が充分であると判断した。

したがって、本審査委員会は、論文提出者を博士（学術）の学位を授与するにふさわしいものと認定する。