

論文審査の結果の要旨

氏名 文 堤 會

本論文は9章からなる。第1章はイントロダクションであり、分子の回転状態を制御する技術の必要性、およびこれまでに行われてきた分子の配列、配向実験の概要が述べられている。第2章では、外場中の分子の回転状態の剛体回転子モデルを用いた量子力学的記述法がまとめられている。第3章では、レーザーパルスによる分子の回転状態の非断熱的時間発展を数値的に解くための数学的手法が述べられている。第4章では実験装置および実験手法が性能評価実験の結果とともにまとめられている。第5章では、レーザー電場のない条件下での非対称コマ分子の配向実験の結果が示され、第6章では、第5章で得られた実験結果を第3章で導入された数学的手法を用いて解析している。第7章では、完全に外場がない条件下における分子の配向実験の結果がまとめられている。第8章では、本研究のまとめと今後の展望が示され、第9章は付録に充てられている。

分子の配向は、化学反応のダイナミクスや、分子構造の異方性に由来する様々な現象を研究するための基盤技術である。本論文では、分子の配向技術に関する3つの研究成果が報告されている。最初の研究は、レーザー電場のない条件下での非対称コマ分子の配向である。これまでの分子の配向実験では、構造が簡単な直線状分子が主に用いられており、直線状分子に比べて複雑な回転スペクトルを持つ非対称コマ分子は配向させるのが困難な分子であった。本研究では電場勾配による分子線の偏向を利用して非対称コマ分子（ヨードベンゼン）の回転量子状態を選別し、レーザー電場をプラズマシャッターと呼ばれる技術を用いて高速に遮断することによって、0.65 という高い配向度を初めて実現した。更に、レーザー電場を遮断後も 20 ps という長い時間にわたって高い配向度が維持される現象も初めて観測された。しかしながら、期待された配向度の回帰現象は観測されず、これはレーザー電場および DC 電場によって作られるポテンシャルの変化に分子の回転量子状態が断熱的に追従していない可能性を示唆するものであった。ここまでの研究成果は、Physical Review A 誌に 2014 年に公表済みである。

次の研究は、振幅が時間変化するレーザー電場と DC 電場がつくるポテンシャルに対する非対称コマ分子の非断熱的な時間発展の解析である。この研究は、先の研究において未解決であったレーザー電場遮断後の配向度の維持の起源を探るものでもある。非対称コマ分子は複雑でエネルギー的に密な回転スペクトルを持ち、計算に関与する回転量子状態が非常に多いため、本研究では時間依存するユニタリー変換の手法を用いて計算コストを大幅に削減した。解析の結果、非対称コマ分子では、比較的弱いレーザー電場強度において

回転量子状態のエネルギーレベルの交差反発 (avoided crossing) が頻繁に起こり、断熱条件が容易に崩れることが見出された。この結果は、レーザー電場と DC 電場の作るポテンシャルに分子の回転量子状態が断熱的に追従することによって分子の配列や配向が生じるというこれまでの通説に修正を迫る重要な結果である。また、先の研究で見出されていたレーザー電場遮断後の分子配向の維持が、特定の初期状態の下では起こりうることを数値計算によって示した。

最後の研究は、レーザー電場のみならず、DC 電場もない、完全に外場のない状態における分子の配向実験である。2 波長 (基本波と 2 倍波) のレーザーパルスを重ねて分子に照射すると、分子の超分極率の異方性およびレーザー電場の 3 乗の積に比例する相互作用によって異方的なポテンシャルが形成され、これに分子が断熱的に追従することによって分子が配向することは先行研究で知られていた。本研究は、直線分子である OCS (硫化カルボニル) を 2 波長レーザーパルスで配向させ、プラズマシャッターでレーザーパルスを遮断することによって、完全に外場のない条件下で分子を配向させるものである。現実の実験装置では、2 波長のレーザーパルスの幅を揃えるのは技術的に困難であるが、既に開発した分子の回転量子状態の非断熱的時間発展の計算手法によって、2 波長のパルス間に適切な遅延を設ければ高い配向度が得られることを理論的に示した。また、2 波長のレーザーパルス間の位相がプラズマシャッターの動作によって揺らぐことを実験的に確認した。この位相揺らぎは適切なフィードバックシステムによって抑えることが可能であり、現存の技術で完全に外場のない条件下での分子配向が実現可能であるという見通しをつけた。

以上、3つの研究成果は、何れも分子配向技術に新たな知見をもたらす重要な結果である。本論文の第 5 章は、武井大祐氏、峰本紳一郎氏、酒井広文氏、第 6 章および第 7 章は峰本紳一郎氏、酒井広文氏との共同研究であるが、論文提出者が主体的に研究を遂行したものであり、論文提出者の寄与が十分であると判断する。

したがって、審査委員全員一致で博士 (理学) の学位を授与できると認める。