

論文 / 著書情報
Article / Book Information

題目(和文)	アンモニア分子の反転振動に関する状態選別と分布制御
Title(English)	
著者(和文)	上野一樹
Author(English)	Kazuki Ueno
出典(和文)	学位:博士(理学), 学位授与機関:東京工業大学, 報告番号:甲第12029号, 授与年月日:2021年6月30日, 学位の種別:課程博士, 審査員:大島 康裕,石内 俊一,腰原 伸也,森 健彦,山崎 優一
Citation(English)	Degree:Doctor (Science), Conferring organization: Tokyo Institute of Technology, Report number:甲第12029号, Conferred date:2021/6/30, Degree Type:Course doctor, Examiner:,,,,
学位種別(和文)	博士論文
Category(English)	Doctoral Thesis
種別(和文)	論文要旨
Type(English)	Summary

論文要旨

THESIS SUMMARY

系・コース： Department of, Graduate major in	化学 エネルギー	系 コース	申請学位 (専攻分野)： Academic Degree Requested	博士 Doctor of	(理学)
学生氏名： Student's Name	上野 一樹		指導教員 (主)： Academic Supervisor(main)	大島 康裕	
			指導教員 (副)： Academic Supervisor(sub)	山崎 優一	

要旨 (和文 2000 字程度)

Thesis Summary (approx.2000 Japanese Characters)

本論文は、「アンモニア分子の反転振動に関する状態選別と分布制御」と題し、アンモニア (NH_3) がその三角錐型の構造を大きく反転させる運動である傘反転振動について、対応する量子固有状態を空間的に選別し、さらに量子固有状態をコヒーレントに結合して分布移動を実現した研究について記載したものである。アンモニアの傘反転振動は、トンネル効果があらわれる代表例として物理化学の標準的な教科書に必ず記載されている。また、レーザーの開発へとつながったメーザー発振は、アンモニアの反転分裂準位間の遷移を用いて初めて実現され、さらに、この反転分裂間の遷移は、アンモニアが星間空間中で多原子分子として初めて検出された際にも利用されている。このようにアンモニア分子の反転振動は、物理化学において極めて重要な位置を占めてきているが、アンモニアが反転振動とともに刻々と形をかえる様子を実験的に捉えることは、現時点でも実現されていない。アンモニアの傘反転振動の実時間観測のためには、幾つかの先端的計測技術の融合が必須であり、本論文はそれら基盤技術の開発と応用について詳述している。以下、各章ごとに要約する。

第1章では、分子運動の制御と実空間観測に関する従来の研究について簡潔にまとめた上で、アンモニア反転振動に関する量子論的な取り扱いを詳しく紹介した。特に、反転振動の2極小ポテンシャルに対する量子固有状態は対称と反対称の2つがペアとなること、この反転分裂間の遷移に共鳴するマイクロ波によって対称と反対称の準位をコヒーレントに結合することにより、時間とともに反転する運動状態である量子波束が生成されること、ただし、初期状態として反転分裂の両方に等しく分布した場合には全体として波束の時間発展が観測できないこと、を議論した。つまり、反転分裂の片方を選択的に取り出すこと、その上で、共鳴マイクロ波によるコヒーレント励起で反転振動波束を生成すること、の2点を実験的要請として明示した。

第2章では、第一の要請である反転分裂に関する量子固有状態選別の実現について述べた。ここでは、不均一な静電場中では反転振動や回転の量子状態に依存して力を受けることを利用して、量子状態の空間選別を行う「分子偏向器」を製作することを選択した。まず、不均一電場中での分子の軌道を計算するプログラムを開発し、それを用いたシミュレーションに基づいて不均一電場用の電極の設計を行った。その上で実際に「分子偏向器」を製作し、アンモニアの反転分裂状態が空間的に分離できることを実証した。その際、波長可変レーザーを利用した共鳴多光子イオン化によって量子状態選択的な検出を実現し、「分子偏向器」によって単一の量子状態が選別できることを、初めて実験的に検証した。

第3章では、前章の成果に引き続いて、第二の要請である共鳴マイクロ波による反転振動波束生成の実現について述べた。まず、共鳴2光子イオン化用の電極間にマイクロ波を照射する必要があることから、電極との干渉をできるだけ避けるようにマイクロ波を集光する光学系の設計を行った。その上で、立体形状の製作性に優れた3Dプリンティング技術を利用して、マイクロ波用のアンテナならびにミラーを自作し、前章の研究で利用した実験系に組み込んだ。この、「分子の量子状態選別」「マイ

クロ波励起」「共鳴多光子イオン化検出」の3要素を結合した実験装置は、世界的に見ても初めてである。本装置を用いて、反転分裂の対称もしくは反対称な固有状態を選択した後にマイクロ波を照射すると、反転分裂間で分布が移動することを確認することができた。特に、マイクロ波との相互作用時間に対する依存性を検討したところ、分布移動効率が時間とともに変動する挙動が見出された。これは、光章動とよばれる光と物質間のコヒーレント相互作用に特有の現象であり、マイクロ波との相互作用によって生成した状態が量子波束であることの明確な証左となっている。さらに、光章動が数マイクロ秒程度で減衰することも確認されたことから、その原因についても考察を行った。

第4章では、2章および3章の結果が、量子状態の空間選択とマイクロ波によるコヒーレント状態結合という先端技術を融合してアンモニア分子の反転振動に関する量子波束生成を実証したものであることを総括し、アンモニアの傘反転振動の実時空間観測に向けた重要な一歩としての意義を明らかにした。

備考：論文要旨は、和文 2000 字と英文 300 語を 1 部ずつ提出するか、もしくは英文 800 語を 1 部提出してください。

Note : Thesis Summary should be submitted in either a copy of 2000 Japanese Characters and 300 Words (English) or 1copy of 800 Words (English).

注意：論文要旨は、東工大リサーチリポジトリ(T2R2)にてインターネット公表されますので、公表可能な範囲の内容で作成してください。

Attention: Thesis Summary will be published on Tokyo Tech Research Repository Website (T2R2).

(博士課程)
Doctoral Program

論文要旨

THESIS SUMMARY

系・コース： Department of, Graduate major in	化学 エネルギー	系 コース	申請学位 (専攻分野)： Academic Degree Requested	博士 Doctor of	(理学)
学生氏名： Student's Name	上野 一樹		指導教員 (主)： Academic Supervisor(main)	大島 康裕	
			指導教員 (副)： Academic Supervisor(sub)	山崎 優一	

要旨 (英文 300 語程度)

Thesis Summary (approx.300 English Words)

This Thesis, entitled as “State selection and population control of ammonia inversion,” describes the study on inversion motion of ammonia (NH_3), with which the triangular cone form of the molecule is inverted up and down. This motion is one of the most important large-amplitude motions and has been given in most of all fundamental text books on physical chemistry. Still, real-space capturing this motion is challenging for experiments. The Thesis describes the development of state-of-the-art experimental methods, which will be indispensable for spatiotemporal observation of ammonia inversion motion.

Energy levels of ammonia are split into doublet due to quantum tunneling via inversion motion. Coherently coupling the two split levels (so called “inversion doublet”) will provide a quantum wave packet that exhibits spatiotemporal propagation. However, when the upper and lower levels of the inversion doublet are equally populated, the molecular ensemble does not exhibit up and down inversion dynamics, since the motion of the wave packets from the two levels are in counter directions to each other. Thus, one component of the inversion doublet should be selectively prepared.

In the present study, the state selection for ammonia inversion doublet has been realized by implementing a Stark deflector, in which an inhomogenous electric field is applied to molecular beams and ammonia is deflected depending of the quantum states. The deflector was constructed by consulting on the Monte-Carlo simulation and its capability for single-quantum state selection from inversion doublets was verified by recording resonance multi-photon ionization (REMPI) spectrum.

Coherent coupling of the inversion doublet was realized by microwave (MW) irradiation. The microwave antenna and mirror used herein were home-made with a 3D printer and conductive painting. Population transfer between the inversion doublet was verified by monitoring REMPI signals. Population exhibited oscillatory change against the interaction time with MW. This observation is well described as “optical nutation,” which is a clear manifestation of coherent field-matter interaction.

In summary, this Thesis describes successful demonstration of creation of quantum wave packets pertinent to the inversion motion of ammonia, by implementing spatial selection of quantum states via the Stark deflector and coherent coupling by the MW irradiation. This is an important step for real-space capturing of the inversion motion of ammonia.

備考：論文要旨は、和文 2000 字と英文 300 語を 1 部ずつ提出するか、もしくは英文 800 語を 1 部提出してください。

Note：Thesis Summary should be submitted in either a copy of 2000 Japanese Characters and 300 Words (English) or 1copy of 800 Words (English).

注意：論文要旨は、東工大リサーチリポジトリ(T2R2)にてインターネット公表されますので、公表可能な範囲の内容で作成してください。

Attention: Thesis Summary will be published on Tokyo Tech Research Repository Website (T2R2).