

## 二国間交流事業 共同研究報告書

平成 23 年 4 月 14 日

独立行政法人日本学術振興会理事長 殿

共同研究代表者所属・部局 東京大学・大学院理学系研究科

職・氏名 <sup>(ふりがな)</sup> 教授・山内 薫 <sup>やまのうち かおる</sup>

1. 事業名 相手国(オーストリア)との共同研究 振興会対応機関 ( FWF )

2. 研究課題名 CEPロックパルスによる超高速水素マイグレーション

3. 全採用期間

平成 21 年 4 月 1 日 ~ 平成 23 年 3 月 31 日 ( 2 年        ヶ月 )

4. 研究経費総額

(1) 本事業により交付された研究経費総額 5,000 千円

初年度経費 2,500 千円、 2年度経費 2,500 千円、 3年度経費        千円

(2) 本事業による経費以外の国内研究経費総額 674 千円

## 5. 研究組織

### (1) 日本側参加者

氏名 (ふりがな)	所属・職名	研究協力テーマ
山内 薫 かおる やまのうち	東京大学大学院理学系研究科・教授	研究全体の統括
加藤 毅 つよし かとう	東京大学大学院理学系研究科・准教授	水素マイグレーションに関する理論計算
畑中 耕治 こうじ はたなか	東京大学大学院理学系研究科・准教授	テラヘルツ光発生
歸家 令果 れいか かみや	東京大学大学院理学系研究科・助教	イオンを起点とした水素マイグレーション観測
沖野 友哉 ともや おきの	東京大学大学院理学系研究科・助教	搬送波包絡線位相制御パルスの発生
徐 淮良 ほあいらん しゅう	東京大学大学院理学系研究科・特任助教	コインシデンス運動量画像法を用いた水素マイグレーションの観測
岩崎 純史 あつし いわさき	東京大学大学院理学系研究科・特任助教	搬送波包絡線位相制御パルスを用いた水素マイグレーションの観測
三浦 瞬 しゅん みうら	東京大学大学院理学系研究科・修士課程	単一アト秒パルスの発生およびオージェ過程の観測
安藤 俊明 としあき あんどう	東京大学大学院理学系研究科・修士課程	COLTRIMS を用いた水素マイグレーション観測
大神 征爾 せいじ おのがみ	東京大学大学院理学系研究科・修士課程	超短パルスレーザー光のキャラクタリゼーション

### (2) 相手国側研究代表者

所属・職名・氏名 ウィーン工科大学 光科学研究所・教授・Andrius Baltuska

### (3) 相手国参加者（代表者の氏名の前に○印を付すこと）

氏名	所属・職名（国名）	研究協力テーマ
○Andrius Baltuska	Vienna University of Technologies, Professor	研究全体の統括
Markus Kitzler	Vienna University of Technologies, University Assistant	高エネルギープロトン発生過程の解明
Daniil Kartashov	Vienna University of Technologies, Project Assistant	ブタジエンにおける水素マイグレーション過程の観測
Oliver D. Muecke	Vienna University of Technologies, Project Assistant	COLTRIMS を用いた水素マイグレーション過程の観測
Audrius Pugzlys	Vienna University of Technologies, Project Assistant	高エネルギーOPA の開発
Stefan Roither	Vienna University of Technologies, Project Assistant	炭化水素分子からの高エネルギープロトンの放出過程
Johannes Wild	Vienna University of Technologies, Project Assistant	高エネルギープロトン発生過程の解明
Li Zhang	Vienna University of Technologies, Project Assistant	ブタジエンにおける水素マイグレーション過程の観測

## 6. 研究概要（研究の目的・内容・成果等の概要を簡潔に記載してください。）

（研究の目的）本研究の目的は、強レーザー場の分子科学において、世界をリードしている東京大学側の研究グループ（日本側：代表 山内 薫 教授）と、超短パルス発生とそのキャラクタリゼーションにおいて、世界のトップにあるオーストリア側の研究グループ（オーストリア側：代表 Andrius Baltuska 教授）が、協力・連携することによって、数フェムト秒（ $\sim 5$  fs）という極めて短い時間に起こる分子と光との相互作用の本質を、超高速水素マイグレーションの研究を通じて明らかにすること、そして、強レーザー場によって化学結合の組み換えを制御する方法を開発することを目的とする。

（研究の内容）日本側が発見し、その機構解明に取り組んでいる「超高速水素マイグレーション」を、ウィーン側が開発した「安定 CEP ロック技術」を用いて、2 国間の国際連携の下に取り組む。また、双方のチームともに、強光子場と物質の相互作用に関する理論研究に取り組んでおり、超高速水素マイグレーションのメカニズムの理論面からの解明においても協力を行う。具体的には以下の項目の研究を遂行する。

（1）高強度数サイクルパルスの CEP をロックし、集光することによって強光子場を生成し、強光子場下での分子ダイナミクスを研究できるように実験システム体制を、両国において確立する。

〔日本〕ウィーン側の数サイクルパルス発生技術および搬送波位相の制御技術を取り入れ、独自のコインシデンス運動量画像計測装置の分解能を向上させるとともに、強光子場中における炭化水素分子の分子内超高速水素マイグレーション過程をポンプ・プローブ計測する。

また、高次高調波発生を行い、単一アト秒パルスを発生し、強光子場中における超高速水素マイグレーション過程の機構を明らかにする。

〔ウィーン〕既存の 800 nm 付近における搬送波位相制御パルスとイオン電子の同時計測装置である COLTRIMS を用いて、日本側で既に、超高速水素マイグレーション過程の存在が明らかと成っているメタノールやエタノールなどの炭化水素分子中における、水素マイグレーション過程を数サイクルパルスによるポンプ・プローブ法によって計測する。また、光パラメトリックチャープパルス増幅法に基づく波長可変パルスの極短パルス化および搬送波位相制御を行う。

### （2）Born-Oppenheimer 近似を超えた理論の構築

超高速水素マイグレーション機構解明のための、新しい電子-核相関量子動力学理論および計算コードの開発を行う。水素原子の運動と電子の運動の両者を分離することなく同時に取り扱うことのできる「断熱近似を超えた」全く新しい理論の枠組みの構築を行う。

### （研究の成果）

日本側では、（1）ブタジエンとその異性体を用いた水素マイグレーション過程の追跡をコインシデンス運動量画像計測装置、（2）メタノール分子における水素マイグレーション過程のレーザーパラメーター依存性の観測を行った。その結果、ブタジエン分子においては、2 体解離過程において、中央の炭素原子上にある水素原子が末端の炭素原子側に移動してから、C-C 結合が切れる解離過程（ $\text{CH}_3^+ + \text{C}_3\text{H}_3^+$ ）が支配的であることが明らかとなった。また、メタノール分子においては、レーザー場強度が  $1.5 \times 10^{14}$  to  $8.5 \times 10^{14}$  に増加するにつれて水素マイグレーションを伴う解離過程の割合が小さくなることが明らかとなった。また、レーザーパルスをチャープしたほうが、水素マイグレーションを伴う解離過程の割合が大きくなることが明らかとなった。

一方、ウィーン側では、（1）ブタジエンとその異性体を用いた水素マイグレーション過程の追跡、および（2）炭化水素分子（メタン、エチレン、ブタジエン、ヘキサン）におけるプロトン放出過程のレーザー場強度依存性の観測を行った。その結果、ブタジエンでは、日本側と同様の結果が得られた。一方、炭化水素分子から高エネルギーのプロトンを放出する過程が観測された。