



「強光子場中分子の超高速構造変形の追跡」

(平成 19～23 年度 特別推進研究 (課題番号: 19002006)  
「超高速水素マイグレーション」)

所属 (当時)・氏名: 東京大学・大学院理学系研究科・  
教授・山内 薫

1. 研究期間中の研究成果

・背景: 研究代表者らによる研究から、強光子場中において、分子内の水素原子の集団が超高速で動き回る「超高速水素マイグレーション」が発見されていた。レーザーパルス特性に鋭敏に反応するこの新しい形の化学反応は、国内外から多くの関心が寄せられ、実験・理論の両面からの反応機構の解明が期待されていた。

・研究内容及び成果の概要

超短パルスレーザー光源を用いたコインシデンス運動量画像法によって、強光子場下で進行する超高速水素マイグレーションの機構を明らかにした (図 1)。また、超短パルスレーザーによるレーザーアシステッド散乱信号を初めて観測し、超高速の水素移動を追跡できる程の高い時間分解能を持つ電子回折法が実現可能であることを示した。さらに、水素マイグレーション過程を理論的に取り扱うために、電子とプロトンから成る系の粒子間相関ダイナミクスを記述できる量子動力学理論を新たに構築した。

2. 研究期間終了後の効果・効用

・研究期間終了後の取組及び現状: 2つ以上の水素原子が同時に移動する水素スクランプリングという現象を発見した。さらに、数サイクルパルスを用いて高い時間分解能で水素マイグレーションを追跡し、水素マイグレーションが 25fs 以下の時間領域で起こることを明らかにした。また、提案段階であったレーザーアシステッド電子回折像の測定に成功した (図 2)。さらに、レーザーアシステッド電子散乱実験を推進し、散乱電子から標的原子・分子の電荷分布の変化を追跡できることを示すなどの成果を得るとともに、テラヘルツ場の中での電子散乱過程を観測することによって極めて高い時間分解能で電子回折像を測定する手法を提案した。また、CI 行列分割法を提案し、MCTDHF 計算の効率化を実現させるなど、強光子場における原子・分子内の電子と核の相関を記述するための方法論を開発した。

・波及効果: 特別推進研究の成果が公表された後、超高速水素マイグレーション過程が国内外の研究グループによって注目され、実験および理論計算が盛んに行われるようになった。また、レーザーアシステッド電子回折法が、極めて有力な超高速分子イメージング法の一つとして認知されるに至った。さらに、拡張された MCTDHF 法は、強光子場中の原子・分子系を記述するための汎用性の高い手法として広く知られるようになった。

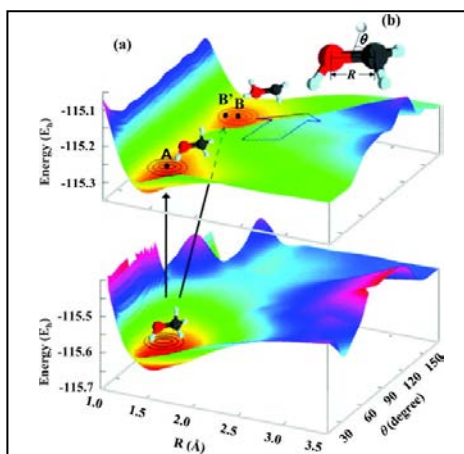


図 1. 中性メタノールとイオンのポテンシャル曲面上で進行する超高速水素マイグレーション。

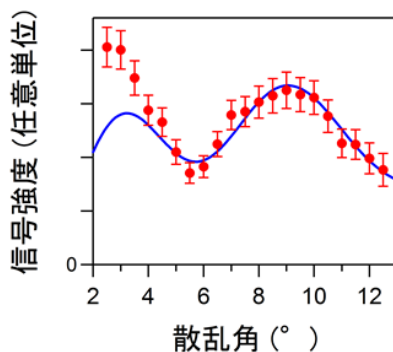


図 2. 四塩化炭素(CCl<sub>4</sub>)のレーザーアシステッド電子回折信号。