

「新たな光機能や光物性の発現・利活用を基軸とする次世代フォトニクスの
基盤技術」

H27 年度
実績報告書

平成27年度採択研究代表者

石川 顕一

国立大学法人東京大学
教授

アト秒ダイナミクスコントローラーの創生

§ 1. 研究実施体制

(1) 東大グループ

- ① 研究代表者: 石川 顕一 (国立大学法人東京大学大学院工学系研究科、教授)
- ② 研究項目
 - ・ 高次高調波発生計算コードの最適化・高速化
 - ・ アト秒電子ダイナミクスのシミュレーション

(2) 理研グループ

- ① 主たる共同研究者: 鍋川 康夫 (国立研究開発法人理化学研究所光量子工学研究領域、専任研究員)
- ② 研究項目
 - ・ IROPA 用励起光源の設計
 - ・ アト秒パルス列光源による水素分子の超高速ダイナミクスの観測

(3) 北大グループ

- ① 主たる共同研究者: 関川 太郎 (国立大学法人北海道大学大学院工学研究院、准教授)
- ② 研究項目
 - ・ 1,4-cyclohexadiene からの水素原子光解離ダイナミクスの研究

§ 2. 研究実施の概要

アト秒反応ダイナミクスコントローラーを構成する理論・光源・分光のそれぞれについて、平成 27 年度は以下の研究を実施しました。

東大グループが担当する理論については、これまでに開発してきた第一原理計算コードの改良を進めるとともに、アト秒レーザーの原理である高次高調波発生やアト秒電子ダイナミクスのシミュレーションを行いました。特に、全電子波動関数を複数の電子配置の線形結合として表現する時間依存多配置自己無撞着場理論に基づき、高強度レーザーやアト秒パルスに照射された原子・分子中の多電子ダイナミクスを第一原理計算するコードの開発を進めました。例えば、このコードで計算した水素分子からの高次高調波スペクトル(図 1)において、25 次を超える成分は電子相関に起因するものです[1]。このような電子相関は近年特に注目され、アト秒電子ダイナミクスを理解・制御する上でも重要と考えられます。

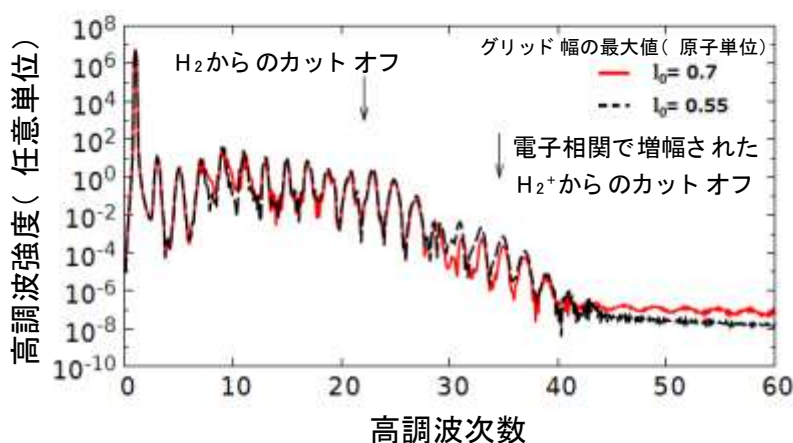


図 1 波長 800 ナノメートル、ピーク強度 10^{14} W/cm² のレーザーに照射された水素分子からの高次高調波スペクトル

理研グループが担当する光源については、超広帯域真空紫外/極端紫外アト秒パルスを発生するためのレーザーシステムの概念設計を行いました。これによれば、基本波となるレーザー光は、950 ナノメートルから 2.8 ミクロンに渡り 1 オクターブを超える非常に広いスペクトル幅を持ちます。これを使って高次高調波を発生すれば、そのスペクトルは、次数の違うもの同士が重なり合い、波長の短い領域(紫外～真空紫外)では連続スペクトルになると予想されます。また、これを実現するためのレーザーシステムを設計しました。

北大が担当する分光では、化学結合を直接観測する実験を進めました。1, 4-シクロヘキサジエンは、光照射により水素原子が解離することが知られています。これまではイオン化質量分析法により解離した生成物を観測して、解離時間を決めていましたが、効率良く生成物が観測される時間と解離する時間は必ずしも同じではありません。我々は、光電子分光によって原子と原子を結びつける化学結合を構成している電子を直接観測することにより、結合が光照射後 37 ± 21 fs 後に切れることを見出しました。

代表的な原著論文

[1] R. Sawada, T. Sato, and K. L. Ishikawa, “Implementation of the multiconfiguration time-dependent Hartree-Fock method for general molecules on a multi-resolution Cartesian grid,” *Phys. Rev. A* **93**, 023434 (2016). (DOI: 10.1103/PhysRevA.93.023434)