

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中盤技術  
平成 27 年度採択研究代表者

H28 年度 実績報告書
-----------------

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

アト秒反応ダイナミクスコントローラーの創成

## § 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
  - ・赤外 OPA レーザーシステムの概念設計と予備実験
  - ・既存高強度アト秒パルス列光源とイオン分光器を用いた分子制御予備実験

### (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
  - ・時間分解光電子分光装置における励起波長可変性
  - ・1, 3-ブタジエンとその誘導体における、緩和ダイナミクスの比較
  - ・高次高調波分光(HHS)にむけた分光器の立ち上げ

## § 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・分光のそれぞれと、分子制御の予備実験について、平成 28 年度は以下の研究を実施しました。

理論については、これまでに開発してきた世界最先端の第一原理計算コードの高速化を進めるとともに、アト秒レーザーパルスによって分子中に誘起される超高速電子ダイナミクスのシミュレーションを行いました。まず、イオン化後に遠ざかっていく電子を計算領域の境界で効率よく吸収するために、無限範囲外部複素スケーリングを世界で初めて多電子系の第一原理計算コードに組み込みました。これによって、計算時間を 80%削減することができました。また、コードの並列化にも着手し、時間依存ハートリーフォック法を並列化しました。さらに、アト秒レーザーパルスでイオン化された分子中で始まる電子のダイナミクスを解析する新しい方法を開発しました。電子密度分布の時間変化を画像化することはこれまででもできましたが、今回、反応ダイナミクスを制御するために有用な、イオン化状態(中性分子、1 価のイオン、2 価のイオン…)毎の電子の動きを計算できるようになりました。

光源については、赤外 OPA システムの概念設計を行ないました。励起波長を 710nm に設定することで現実的なチタンサファイアレーザーシステムを開発でき、BIBO 結晶による 800nm 励起の OPA よりも広帯域なスペクトル増幅が BBO 結晶によって可能であることがわかりました。実際に 710nm の励起レーザーを開発し、OPA の予備実験を行ないました。これにより 1 オクターブを超える波長帯域での赤外光増幅を確認できました。2 波長レーザーについてはチタンサファイアレーザー光と OPA の赤外光の間のタイミングジッターを安定化させることに成功しました。

分光については、共役ジエン系における光励起後の緩和経路の制御を目的として、1, 3-ブタジエン誘導体での緩和ダイナミクスを時間分解光電子分光により研究しました。メチル基を水素原子の代わりに導入することにより、円錐交差と呼ばれる励起状態から基底状態へ乗り変わるポテンシャル面での分子構造が変わることが期待されます。基底状態へ緩和後、誘導体の光電子スペクトルに大きな変化が観測される一方、1, 3-ブタジエンではわずかな変化でした。一方、量子科学計算によるエネルギー面によると、予期したとおり円錐交差における分子構造が 1, 3-ブタジエンと誘導体では異なっていることがわかりました。このことから、実験結果は、緩和経路の違いを反映しているものと考えています。置換基導入の効果を定量的に評価できれば、緩和経路の制御ができるようになると期待しています。

これらを統合する分子制御の予備実験については、高強度の極端紫外波長域のアト秒パルス列を 2 ビームに分け、両者の間の遅延時間を掃引することで、水素分子の二つの解離過程(第一励起状態経路と第二励起状態経路)を 8 フェムト秒という超高速で切り替えることに成功しました(図 1)。これはアト秒反応ダイナミクスコントローラーの実現に向けて重要な一歩となります。

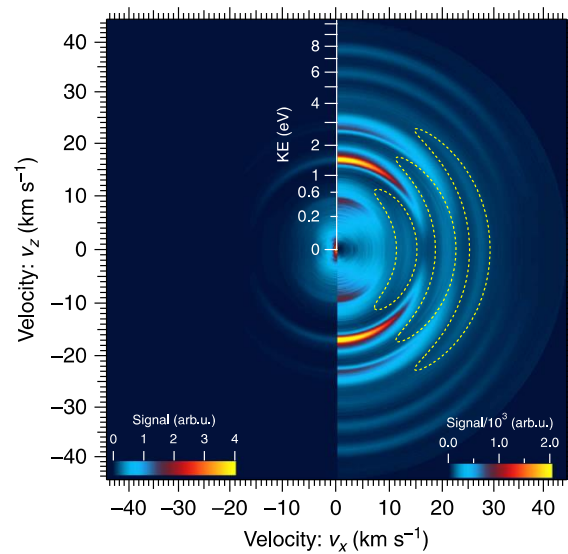


図1 生じた水素イオンの運動量分布を測ることで解離過程を判定できます。

代表的な原著論文

- Takeshi Sato, Kenichi L. Ishikawa, Iva Březinová, Fabian Lackner, Stefan Nagele, and Joachim Burgdörfer, “Time-dependent complete-active-space self-consistent-field method for atoms: Application to high-order harmonic generation,” *Phys. Rev. A* **94**, 023405-1~14 (2016). (DOI:10.1103/PhysRevA.94.023405)
- Yasuo Nabekawa, Yusuke Furukawa, A. Amani Eilanlou, Eiji J. Takahashi, Kaoru Yamanouchi, and Katsumi Midorikawa, “Sub-10-fs control of dissociation pathways in the hydrogen molecular ion with a few-pulse attosecond pulse train,” *Nat. Commun.* **7**, 12835-1~11 (2016). (DOI: 10.1038/ncomms12835)
- Ryo Iikubo, Taro Sekikawa, Yu Harabuchi, and Tetsuya Taketsugu, “Bond Selective Probe by Time-Resolved Photoelectron Spectroscopy: Ring-Opening Dynamics of 1,3-Cyclohexadiene,” *Farad. Discuss.* **194**, 147-160 (2016). (DOI: 10.1039/C6FD00063K)