

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
平成 27 年度採択研究代表者

2018 年度 実績報告書

石川 顕一

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生

§ 1. 研究成果の概要

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、2018年度は以下の研究を実施しました。

理論については、時間依存結合クラスター理論に、電子対近似や2次の多体摂動論による補正を入れることで電子相関の精度を高め、より多くの電子を含む原子・分子でのシミュレーションに道を開きました。また、内殻電子を擬ポテンシャルで置き換えたり曲線座標を導入したりすることで、1, 3-シクロヘキサジエンなど従来は不可能であったサイズの有機分子でのシミュレーションに成功しました。開発したコードを活用し、遷移金属元素からの高次高調波スペクトルに実験で見られる共鳴ピークを再現したり、アト秒パルスでイオン化された原子中に生成する電子波束のコヒーレンスを計算したりすることにも成功しています。さらに、分子キラリティー検出を第一原理計算するために必要な相互作用ハミルトニアンを明らかにしました。このように、世界的にも他の追随を許さない理論開発を進めています。

光源については、オクターブ赤外 OPA レーザーシステムに於いて評価した分散に基づき、これを補償する分散を分散制御装置(Dazzler)に与え、再び分散を評価することでパルス圧縮を行いました。パルス幅 5.3fs であり、キャリア周波数周期の 0.94 倍に相当します。これにより所望のモノサイクルパルス発生に成功しました。

分光については、光電子分光と高次高調波分光の二つの分光法による研究を展開しています。光電子分光では、大気汚染物質であるニトロフェノールの光解離過程の実験研究を行いました。高次高調波分光では、高次高調波発生における電子のアト秒ダイナミクスを利用して、分子の電子状態を調べます。キラル分子のキラリティーの検出に応用するとともに、1, 3-シクロヘキサジエン(CHD)の励起緩和過程とそれに引き続く開環過程を観測しました。図は、光励起後の高次高調波発生量の差分の時間変化を示します。励起分子と非励起分子は異なる位相をもつ高調波を発生するので、時間変化は励起分子の緩和に伴う干渉の変化を表しています。また、次数ごとの干渉の違いは、次数固有の電子のアト秒運動時間を反映していたためです。励起状態から基底状態まで緩和する様子を、初めてアト秒電子ダイナミクスを利用して観測しました。

分子制御の予備実験に関しては、既存の高次高調波ビームラインに於いて、励起・制御の2ビーム光学装置系(attocorrelator)にプローブ用の光学経路(MZI)をさらに付け加えました。MZIからのビームによって重水素分子から D⁺を生成し、この生成量を attocorrelator のスキャンにより 300as 以下の周期で変調させることができました。これにより3ビームでの制御実験が可能であることを実証しました。

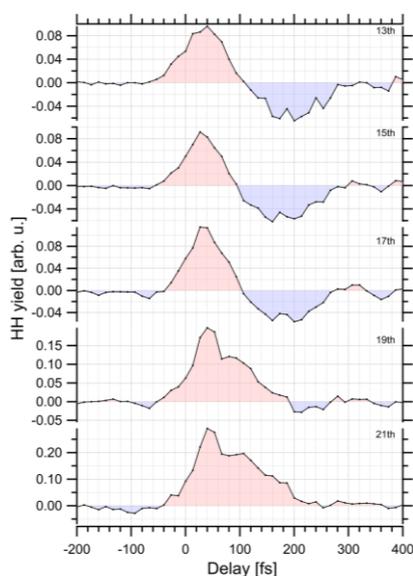


図 1,3-シクロヘキサジエンからの 13 次～21 次高次高調波発生量の差分の時間変化

【代表的な原著論文】

1. Ryoji Anzaki, Yasushi Shinohara, Takeshi Sato, and Kenichi L. Ishikawa, “Gauge invariance beyond the electric dipole approximation”, *Physical Review A* 98, 063410 (8 pages), 2018
2. Yoichi Harada, Eisuke Haraguchi, Keisuke Kaneshima, and Taro Sekikawa, “Circular dichroism in high-order harmonic generation from chiral molecules”, *Physical Review A* 98, 021401(R) (5 pages), 2018
3. Keisuke Kaneshima, Yuki Ninota, and Taro Sekikawa, “Time-resolved high-harmonic spectroscopy of ultrafast photoisomerization dynamics”, *Optics Express* 26, 31039-31054, 2018

§ 2. 研究実施体制

(1) 東大グループ

- ① 研究代表者: 石川 顕一 (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
 - ・高次高調波光源のシミュレーション
 - ・高次高調波分光のシミュレーション
 - ・アト秒電子ダイナミクスのシミュレーション
 - ・核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
(理化学研究所光量子工学研究センター 専任研究員)
- ② 研究項目
 - ・超広帯域高強度光源開発及び超広帯域真空紫外極端紫外アト秒パルス光源の開発
 - ・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 (北海道大学大学院工学研究院 准教授)
- ② 研究項目
 - ・励起波長可変時間分解光電子分光
 - ・高次高調波分光による化学反応ダイナミクスの観測
 - ・円偏光高次高調波発生による分子キラリティーの検出