

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
2015 年度採択研究代表者

2019 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、2019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結合電子対近似を導入した手法をもとに、高強度レーザーパルス中の原子を対象とした数値計算プログラムを開発しました。従来よりも少ない計算量で高い精度が得られ、大きな分子や固体への発展が期待できます。また、ゲージ不変時間依存一電子励起配置間相互作用法によるプログラムも、原子を対象として開発しました。小さい計算コストで電子相関を取り込み、また、結果を直感的に理解しやすい利点があります。加えて、原子間距離が高次高調波発生に与える影響を明らかにしたり、分子からの高次高調波分光の計算プログラムの開発を順調に進めたりしています。さらに、重要な実験プローブである角度分解光電子スペクトルを計算できるようになりました。図に、Arに高強度レーザーパルスを照射した場合に放出される光電子の角度分解スペクトルを示します。このような計算は、我々が開発してきた第一原理計算、高効率の吸収境界、スマートな光電子スペクトル計算法の組み合わせで初めて可能になりました。核ダイナミクスのシミュレーションについても、2原子2電子分子が計算できるようになりました。世界的にも他の追従を許さない理論開発を進めています。

光源については、オクターブ赤外光パラメトリック(OPA)増幅レーザーシステムの、3段目のOPA後の搬送波包絡線位相(CEP)計測およびその安定化を実施しました。Mach-Zehnder型干渉計(MZI)の位相エラーを計測し相対位相を安定化するための手法を開発したことで、3段目のOPA後でCEPエラーを493mradにおさえ、十分なCEP安定性を得ることができました。また、このときのパルス幅は4.3fsで、搬送波周期6fsを下回るサブサイクルパルスの増幅に成功しました。

分光については、フェムト秒極端紫外(EUV)光源を用いることにより初めて、大気中の有機エアロゾルを構成するo-nitrophenol(o-NP)から解離して生成する亜硝酸(HONO)の生成過程を時間分解光電子分光で観測し、HONO解離に至る過程を逐次観測し帰属することができました。また、高調波発生における円二色性検知の感度をあげるために、反射光学系で構成されるEUV領域の波長板を提案しました。半波長板を製作し、高調波の円偏光度を計測しました。予想通りに動作すれば1/4波長板を作ることができます。

分子制御の予備実験については、2原子あるいはそれ以上の数の原子から構成される多原子分子について、速度マップ画像型(VMI)イオン分光を用いて分子制御性を検証しました。酸素では、周期1.3fsの超高速電子波束の存在を確認し、自動イオン化による解離経路を同定できました。アセチレンでは、7次高調波によるイオンの共鳴励起・解離が、320アト秒の超高速相関と共存していることと、解離イオン種による相関幅の違いを明らかにしました。また、VMIイオン分光器を電子分光器に対応できるように改造しました。

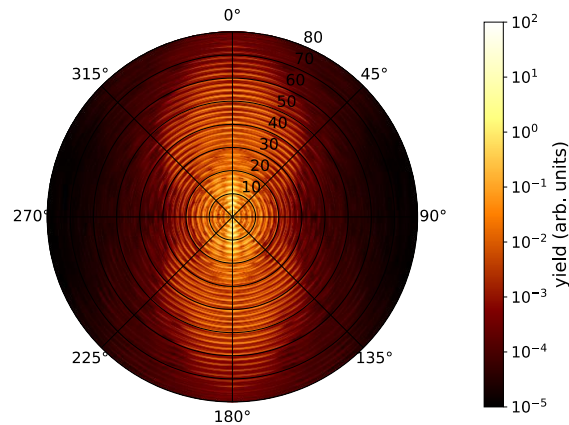


図 Ar に、波長 532 nm、強度 2×10^{14} W/cm² のレーザーパルス照射した場合に放出される、光電子の角度分解光電子スペクトルの計算結果。

【代表的な原著論文】

1. Yuki Orimo, Takeshi Sato, and Kenichi L. Ishikawa, “Application of the time-dependent surface flux method to the time-dependent multiconfiguration self-consistent-field method”, *Physical Review A* 100, 013419 (8 pages), 2019
2. Himadri Pathak, Takeshi Sato, and Kenichi L. Ishikawa, “Time-dependent optimized coupled-cluster method for multielectron dynamics. II. A coupled electron-pair approximation”, *Journal of Chemical Physics* 152, 124115 (10 pages), 2020
3. Kengo Ito, Eisuke Haraguchi, Keisuke Kaneshima, and Taro Sekikawa, “Polarimetry of a single-order circularly polarized high harmonic separated by a time-delay compensated monochromator”, *Optics Express* 27, 38735–38743, 2019

§ 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
- ・核ダイナミクスシミュレーション

(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

- ・時間分解光電子分光による光化学反応のダイナミクスの研究
- ・時間分解高次高調波分光
- ・キラル分子からの円偏光高次高調波発生