

アト秒分光の第一原理的解析

First-principles analysis on attosecond spectroscopy

佐藤駿丞

筑波大学 計算科学研究センター

1. 研究目的

近年のレーザー技術の発展により、光によって物質中の電子ダイナミクスを時間領域で制御・観測することが可能となって来た。特に最近では、アト秒(10^{-18} 秒)超短パルス光を用いた分光実験により、フェムト秒(10^{-15} 秒)の時間幅を持つ高強度超短パルスレーザーが固体中に引き起こす非平衡電子ダイナミクスをアト秒の時間分解能で測定することが可能となった。このような最先端の時間分解分光実験は、物質内の非平衡量子ダイナミクスを理解する上で極めて重要な知見をもたらす一方で、その実験結果は固体中の複雑な電子ダイナミクスを反映した巨視的な物理量となっており、実験結果から直接的に量子ダイナミクスの微視的知見を引き出すことは困難を極めてい。本研究課題では、微視的な電子ダイナミクス計算を行い、光が固体中に駆動する非平衡な電子ダイナミクスを解析することで、マクロな実験結果の背後にあるミクロな物理機構を解明することを目的とする。

2. 研究成果の内容

本研究課題では、ダイヤモンドに対するアト秒過渡反射分光の第一原理計算に取り組んだ。ポンプ光とプローブ光と呼ばれる二つの光パルスの下での第一原理電子ダイナミクス計算を実行し、ポンプ光によって変調されたダイヤモンドの光学応答を二つ目のプローブ光に対する応答から評価した。この第一原理計算結果と、共同研究を行っているミラノ工科大の実験グループの実験結果を比較したところ、非常に良い一致が確認できた。これにより、これまで透過配置で行われてきたアト秒過渡吸収分光に加えて、反射配置で行われるアト秒過渡反射分光においても第一原理計算に基づく微視的な解析が有効であることが明らかとなった。

さらに本研究課題では、京都大学化学研究所の実験グループとの共同研究により、固体 GaAs(ガリウムヒ素)からの高次高調波発生現象の微視的解析を行った。本課題を遂行するために、強束縛近似を用いたハミルトニアンを基に量子マスター方程式を解いて光駆動非平衡電子ダイナミクスを解析するための新たな計算コード開発を行った。さらに開発したコードを用いて GaAs からの高次高調波発生を解析したところ、実験的に測定されている高調波発生効率の結晶方位依存性や励起光楕円率依存性を良く再現する計算結果を得ることが出来た。

3. 学際共同利用プログラムが果たした役割と意義

学際共同利用プログラムによって大規模な電子ダイナミクス計算が実行可能となり、現実の実験と比較可能な理論シミュレーションを行うことが出来た。これにより、マクロな量を測定する実験では解析の難しいミクロな物理機構を、微視的な理論計算から探求することが可能となった。

4. 今後の展望

本研究課題では、ダイヤモンドに対する過渡反射分光、及び GaAs に対する高次高調波発生の微視的な解析を行い、実験結果を再現するような理論計算結果を得ることが出来た。今後は、ここで得られた結果をもとに、これらの超高速現象・非線形光学現象の背後にあるミクロな物理機構を解明し、光による物性制御を行うための学理構築を行っていく。

5. 成果発表

- (1) 学術論文
- (2) 学会発表
- (3) その他

本研究課題の成果は、現在、論文投稿準備中である。

使用計算機	使用計算機に ○	配分リソース※	
		当初配分	追加配分
Cygnus		0	0
Wisteria/BDEC-01	○	191,250	50000
※配分リソースについてはノード時間積をご記入ください。			