

令和 2 年 6 月 10 日現在

機関番号：12601

研究種目：基盤研究(C) (一般)

研究期間：2017～2019

課題番号：17K05070

研究課題名(和文) 高強度場・アト秒科学のための時間依存結合クラスター理論の開発

研究課題名(英文) Time-dependent coupled-cluster method for strong-field and attosecond science

研究代表者

佐藤 健 (Sato, Takeshi)

東京大学・大学院工学系研究科(工学部)・准教授

研究者番号：30507091

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 3,600,000円

研究成果の概要(和文)：超短パルス・高強度レーザーを用いた実験は物質の高励起や多重電離、電子相関の絡む複雑な現象を観測するため、実験単独では、あるいは不完全な理論では、その解釈や予測が極めて難しい。確実な予言力のある精密な理論・計算手法の飛躍的発展が不可欠である。本研究ではこの課題を解決するために時間依存の軌道関数を用いた時間依存結合クラスター理論を定式化し、多項式計算コスト、サイズ無矛盾性、ゲージ普遍性を同時に満たす新しい時間依存多電子理論を確立した。

研究成果の学術的意義や社会的意義

アト秒科学は光物質科学の最先端として注目を集めているが、実験単独では解釈が極めて難しい。例えば Calegariらはフェニルアラニン分子に極端紫外X線パルス照射して一重電離状態の波束を生じさせ、近赤外プローブによる二重電離収率の振動から超高速電荷マイグレーション(核の動きを伴わない電荷移動)を観測したと報告した[Calegari et al. (2014)]。しかしその根拠は「核の動きにしては速過ぎる」という消去法的論法に大きく依存している。本研究では、当該分野が永続的な学問領域として確立し、実社会に貢献する成果を生み出すために必要な信頼性の高い新理論を確立した。

研究成果の概要(英文)：Experiments using ultrashort and high-intensity laser pulses observe complex phenomena such as bound excitations, multiple ionizations involving electron correlations, so it is extremely difficult to interpret or predict the experiments alone or with incomplete theory. It is indispensable to make rapid progress in accurate theory and calculation methods with reliable prediction.

To solve this problem, in this study, we formulate a time-dependent coupled cluster theory using time-dependent orbital functions and establish a new time-dependent multi-electron theory that simultaneously satisfies polynomial calculation cost, size consistency, and gauge invariance.

研究分野：理論化学

キーワード：結合クラスター理論 アト秒科学 高次高調波発生

1. 研究開始当初の背景

アト秒科学は光物質科学の最先端として注目を集めているが、実験単独では解釈が極めて難しい。例えば Calegari らはフェニルアラニン分子に極端紫外 X 線パルスを照射して一重電離状態の波束を生じさせ、近赤外プローブによる二重電離収率の振動から超高速電荷マイグレーション (核の動きを伴わない電荷移動) を観測したと報告した [Calegari et al. (2014)]. しかしその根拠は「核の動きにしては速過ぎる」という消去法的論法に大きく依存している。

2. 研究の目的

1. で述べたように、超短パルス・高強度レーザーを用いた実験は物質の高励起や多重電離、電子相関の絡む複雑な現象を観測するため、実験単独では、あるいは不完全な理論では、その解釈や予測が極めて難しい。確実な予言力のある精密な理論・計算手法の飛躍的発展が不可欠である。そこで本研究では、時間に依存する軌道関数を用いた時間依存結合クラスター理論を定式化し、多項式計算コスト、サイズ無矛盾性、ゲージ普遍性を同時に満たす新しい時間依存多電子理論を確立することを目的とする。

3. 研究の方法

時間に依存する軌道関数を用いた時間依存結合クラスター理論を定式化し、多項式計算コスト、サイズ無矛盾性、ゲージ普遍性を同時に満たす新しい時間依存多電子理論を確立するために、

- (i) 時間依存変分原理に基づき時間依存結合クラスター理論における軌道関数と展開係数の運動方程式を導出する。
- (ii) 原子における多電子ダイナミクスに適用するために極座標上の球面調和関数展開と同系座標の有限要素離散値表現基底を用いた計算コードを開発する。
- (iii) 分子における多電子ダイナミクスに適用するために一般の曲線座標上の有限差分法を用いた計算コードを開発する。
- (iv) 上記コードを OpenMP+MPI によって並列化する。
- (v) 上記コードを原子・分子における強レーザー場誘起多電子ダイナミクスに適用する。

4. 研究成果

次式で与えられる、時間に依存する軌道関数を用いた時間依存結合クラスター理論を定式化し、多項式計算コスト、サイズ無矛盾性、ゲージ普遍性を同時に満たす新しい時間依存多電子理論を確立した。

$$\Psi = \exp \left[\tau_0 + \sum_{ia} \tau_i^a \hat{E}_i^a + \sum_{ijab} \tau_{ij}^{ab} \hat{E}_{ij}^{ab} + \sum_{ijkabc} \tau_{ijk}^{abc} \hat{E}_{ijk}^{abc} + \dots \right] \Phi_{\text{ref}}$$

ここで Ψ は全電子波動関数、 Φ_{ref} は参照波動関数、 τ は励起強度、 \hat{E} は励起演算子である。具体的には

- (i) 時間依存変分原理に基づき、時間依存結合クラスター理論における軌道関数と展開係数の運動方程式を導出した。
- (ii) 原子における多電子ダイナミクスに適用するために極座標上の球面調和関数展開と同系座標の有限要素離散値表現基底を用いた計算コードを開発した。
- (iii) 分子における多電子ダイナミクスに適用するために一般の曲線座標上の有限差分法を用いた計算コードを開発した。
- (iv) 上記コードを OpenMP+MPI によって並列化した。
- (v) 上記コードを原子・分子における強レーザー場誘起多電子ダイナミクスに適用した。原子においては、アルゴン原子 (図 1 参照)、アルカリ金属、および遷移金属元素の高次高調波発生における動的電子相関の役割を明らかにした。分子においてはアセチレン分子の高次高調波スペクトルにおけるレーザー偏光方向依存性を解析した。

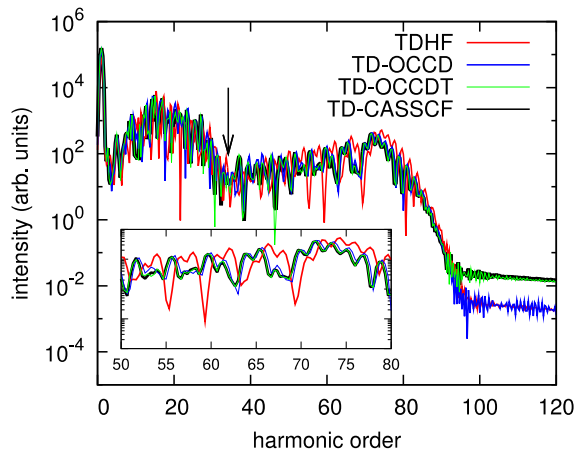
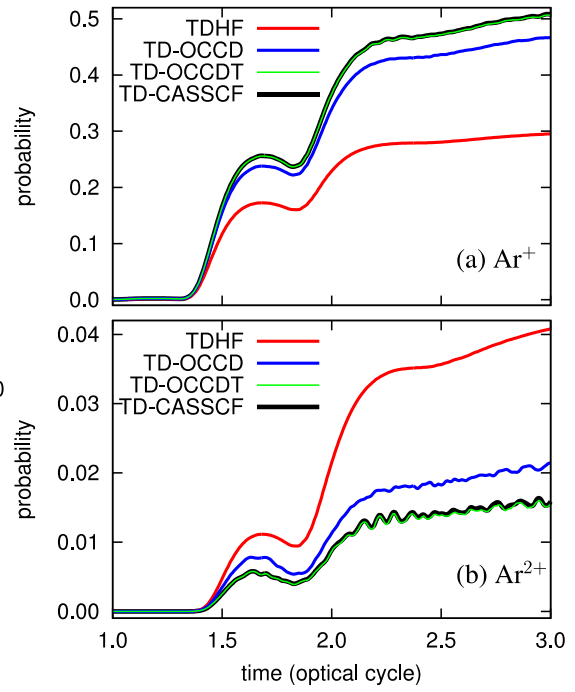


Figure 1: (Top) The HHG spectra of **Ar** exposed to a laser pulse with a wavelength of **800 nm** and an intensity of **$6 \times 10^{14} \text{ W/cm}^2$** . (Right) The probabilities, as a function of time, of finding one (a) and two (b) electrons outside a sphere of radius $R_c = 20 \text{ au}$. **13 orbitals for 8 electrons**. FEDVR with angular momenta $L < 64$.



5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計4件（うち査読付論文 4件/うち国際共著 0件/うちオープンアクセス 1件）

1. 著者名 T. Ikemachi, Y. Shinohara, T. Sato, J. Yumoto, M. Kuwata-Gonokami, and K. L. Ishikawa	4. 巻 97
2. 論文標題 Time-dependent Hartree-Fock study of electron-hole interaction effects on high-order harmonic generation from periodic crystals	5. 発行年 2018年
3. 雑誌名 Phys. Rev. A	6. 最初と最後の頁 023423-1/9
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1103/PhysRevA.98.023415	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -
1. 著者名 R. Anzaki*, Y. Shinohara, T. Sato, and K. L. Ishikawa	4. 巻 98
2. 論文標題 Gauge Invariance beyond the Electric Dipole Approximation	5. 発行年 2018年
3. 雑誌名 Phys. Rev. A	6. 最初と最後の頁 063410-1/5
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1103/PhysRevA.98.063410	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -
1. 著者名 Y. Li, T. Sato, and K. L. Ishikawa	4. 巻 99
2. 論文標題 High-harmonic generation enhanced by laser-induced electron recollision	5. 発行年 2019年
3. 雑誌名 Phys. Rev. A	6. 最初と最後の頁 043401-1/5
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） https://doi.org/10.1103/PhysRevA.99.043401	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -
1. 著者名 T. Sato, H. Pathak, Y. Orimo, and K. L. Ishikawa	4. 巻 148
2. 論文標題 Time-dependent optimized coupled-cluster method for multielectron dynamics	5. 発行年 2018年
3. 雑誌名 Journal of Chemical Physics	6. 最初と最後の頁 051101/1-5
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） https://doi.org/10.1063/1.5020633	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスとしている（また、その予定である）	国際共著 -

〔学会発表〕 計6件（うち招待講演 5件 / うち国際学会 5件）

1. 発表者名 Takeshi Sato
2. 発表標題 Time-dependent optimized coupled-cluster method for intense laser-driven multielectron dynamics
3. 学会等名 7th JCS Symposium, Institute of Organic Chemistry and Biochemistry of the Czech Academy of Sciences, Praha (招待講演) (国際学会)
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 Takeshi Sato
2. 発表標題 Application of time-dependent multiconfiguration and coupled-cluster methods to intense-laser driven multielectron dynamics in atoms and molecules
3. 学会等名 9th AWCXR, Hokkaido University, Sapporo (招待講演) (国際学会)
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 Takeshi Sato
2. 発表標題 Time-dependent wavefunction-based methods for intense laser-driven multielectron dynamics
3. 学会等名 AIEDS18, Epochal Tsukuba (招待講演) (国際学会)
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 Takeshi Sato
2. 発表標題 Time-dependent multiconfiguration and coupled-cluster methods for intense-laser driven multielectr
3. 学会等名 SILAP 2018, Fields Institute, University of Toronto (招待講演) (国際学会)
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 Takeshi Sato
2. 発表標題 Time-dependent wave function-based methods for intense laser-driven multielectron dynamics in atoms and molecules
3. 学会等名 International symposium on ultrafast electronic and structural dynamics, International center of educational research, Institute for Materials Research, Tohoku University, Sendai, Japan (招待講演) (国際学会)
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 佐藤 健、パサック ヒマドリ、石川 顕一
2. 発表標題 高強度レーザー場中の多電子ダイナミクスのための時間依存結合クラスター理論の開発
3. 学会等名 分子科学討論会
4. 発表年 2018年

〔図書〕 計0件

〔産業財産権〕

〔その他〕

-

6. 研究組織

	氏名 (ローマ字氏名) (研究者番号)	所属研究機関・部局・職 (機関番号)	備考