

**科学研究費助成事業 研究成果報告書**

平成 28 年 6 月 16 日現在

機関番号：12102

研究種目：基盤研究(C) (一般)

研究期間：2012～2015

課題番号：24540421

研究課題名(和文) 赤外線レーザーの付加による原子・分子高速過程の制御の理論研究

研究課題名(英文) Theoretical study of controlling atomic molecular process in ultrafast time domain by infrared lasers

研究代表者

トン ショウミン (TONG, Xiao-Min)

筑波大学・数理物質系・准教授

研究者番号：80422210

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 4,000,000円

研究成果の概要(和文)：(1)我々の理論研究によって、中赤外線強レーザー場における原子電離過程を明らかにした。特にレーザー中低エネルギー電子半周期の電離と多周期の干渉過程の起用を解明した。(2)(1)の研究成果により、強レーザーによる原子・分子の光吸収過程の制御メカニズムを明らかにした。(3)実空間、実時間の密度汎関数計算法で物質の導電性を研究した。強レーザーを絶縁体に照射すると、絶縁体は瞬間的に導体になるメカニズムを明らかにした。強レーザーで物質性能を改造する方法を探索した。

研究成果の概要(英文)：(1) Based on our theoretical simulations, we have discovered the mechanism of the atomic ionization process in the strong laser field, by decomposing the contributions of half-cycle ionization and the interference of multi-cycle. (2) Based on the results of (1), we investigated the control mechanism of atomic, molecular photo-absorption process by intense laser. (3) Based on real space, real time density functional theory simulation, we discovered the mechanism of how an insulator can become a conductor in the femtosecond time domain by strong field.

研究分野：原子・分子と光

キーワード：原子分子 強レーザー 超高速 制御

### 1. 研究開始当初の背景

当時、レーザー技術の進展に伴う、中赤外線強レーザーやアト秒レーザーが実用可能になった。このアト秒軟X線と赤外線を同時に原子・分子に照射すると、軟X線の到着時間によって、原子電離確率を大きく変化させることが可能であることが報告された。この現象は、赤外線における電子の運動を Floquet 理論で解析することにより解明できることが我々の理論研究により示されている。その理解の上に、アト秒軟X線のエネルギーとパルスの到着時間を調整することにより軟X線の物質透過をアト秒の範囲で精密に制御可能であることを示した。この理論提案の検証として、軟X線が物質を透過するかどうかをアト秒の範囲で制御できることが実験により実際確認された。これらの研究をきっかけとして、赤外線の二次照射による光吸収過程の制御方法を探索する研究が一層活発化しており、分子解離過程の制御にも発展していった。

もう一方、分子細かい内部構造を見るために、波長が長い(4000 nm)強レーザーも開発された。しかし、波長が長くなると従来のシュレーディンガー方程式の直接解法による計算は困難となる。計算量は波長の6乗に比例して増大するが700倍になってしまうからであった。計算量の問題以外にも従来の時間依存のシュレーディンガー方程式解く手法そのものがこの問題に対して適用可能かどうか計算精度の観点から問題となった。それゆえ新しい計算手法を開発が必須の条件となった。

### 2. 研究の目的

まず、我々が開発した計算手法を GPU クラスタで使えるように計算コードを書き換えて、赤外線の付加による原子光吸収過程の有効制御方法を探索する。更に、その方法を各角運動量ごとに MPI 化して、中赤外線強レーザーにおける原子過程も計算可能になる。本研究は電離した電子を Coulomb Volkov 波動関数で描写してすることにより計算精度を上げ、電子運動量分布から精密な原子・分子イオンの内部構造を得る方法を開発する。

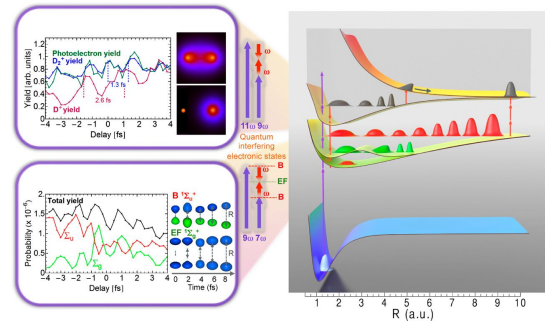
### 3. 研究の方法

(1) 我々が開発した唯一の計算手法：時間依存 Schrodinger 方程式の積分解法を各角運動量ごとに MPI 化して、中赤外線強レーザーにおける原子過程を研究する。

(2) 擬ポテンシャルを利用して、FFTで新しい実空間の時間依存密度汎関数の計算方法を開発して、空間分点が10億ぐらいの問題に対して研究可能になる。

### 4. 研究成果

(1) 赤外線強レーザーによるアト秒レーザーで水素分子解離過程について、我々の理論

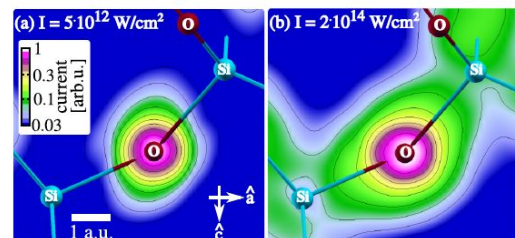


計算と実験共同で非対称のメカニズムを明らかにした。図のように二つレーザー到着時間の遅延による、解離過程の制御方法の原理も解明した。研究結果はアメリカ科学院の有名な雑誌 PNAS に発表された。

(2) 赤外線強レーザーによるアト秒レーザーで Ar 原子の2重電離について、我々の理論計算と実験共同で産出量の制御方法を探索した。特に二つのメカニズム

(共鳴、非共鳴過程)を明らかにした。研究結果はこの分野で有名な雑誌、Physical Review Letters に発表された。

(3) 大規模な実空間の密度汎関数理論での計算で物質の導電性の研究を行った。特に図のように絶縁体に強レーザーを照射すると、

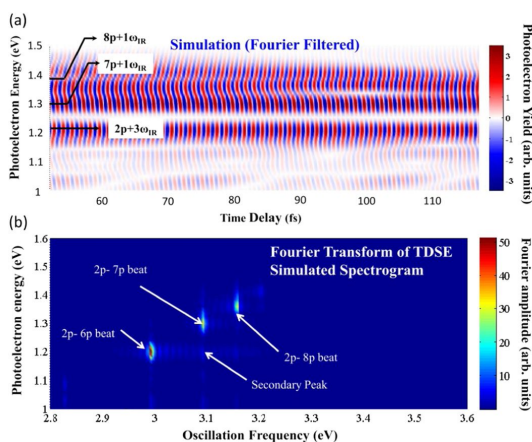


絶縁体は瞬間的(フェト秒範囲内)に導体になるメカニズムを明らかにした。研究結果はこの分野で有名な雑誌、Physical Review Letters に発表された。

(4) 強レーザー場における動的過程について擬ポテンシャルの適用性を調べた。完全密度汎関数法から計算結果と擬ポテンシャルで得られた結果比べて、擬ポテンシャルの適

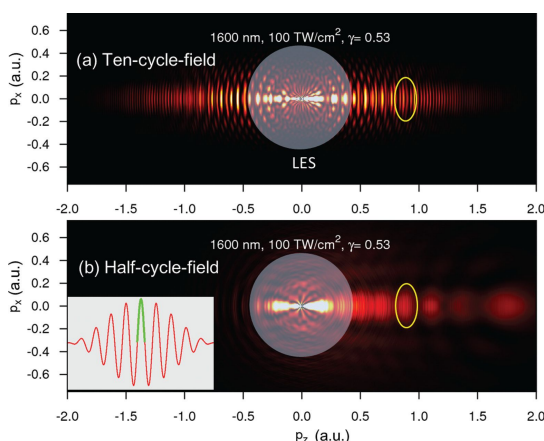
用範囲を明らかにした。研究結果は Physical Review A に発表された。

(5) 赤外線強レーザーによる He 原子吸収スペクトルの制御方法や原子構造得る方法を探索した。特に図のように長い時間遅延で原



子構造の詳細を得ることを明らかにした。研究結果 J Phys. B に発表された。

(6) 我々の理論研究で、中赤外線における原子電離過程のメカニズムを明らかにした。特に図のように当時研究の焦点、低エネルギー電離の起因を半周期の電離と多周期の干



渉過程の寄与を図のように解明した。研究結果は Physical Review A に発表された。

## 5. 主な発表論文等

(研究代表者、研究分担者及び連携研究者には下線)

{ 雑誌論文 } (計 21 件)

1. CA Mancuso, DD Hickstein, KM Dorney, JL Ellis, E Hasovic, R Knut, P Grychtol, C Gentry, M Gopalakrishnan, D Zusin, FJ Dollar, XM Tong, D Milosevic, W Becker, HC Kapteyn, MM Murnane, “Controlling electron-ion rescattering in two-color circularly polarized

femtosecond laser fields”, Phys. Rev. A 査読有 **93** (2016) 053406:1-13.

doi:10.1103/PhysRevA.93.053406

2. N Shivaram, XM Tong, H Timmers and A Sandhu, “Attosecond Quantum-Beat Spectroscopy in Helium”, J. Phys. B: At. Mol. Opt. 査読有 **49** (2016) 055601:1-7.

doi:10.1088/0953-4075/49/5/055601

3. V Wanie, H Ibrahim, S Beaulieu, N Thire, B Schmidt, DY Peng, AS Alnaser, I Litvinyuk, XM Tong, F Legare, “Coherent control of  $D_2/H_2$  dissociative ionization by a mid-infrared two-color laser field”, J. Phys. B: At. Mol. Opt. 査読有 **49** (2016) 025601:1-9.

doi:10.1088/0953-4075/49/2/025601

4. H Li, XM Tong, N Schirmel, G Urbasch, KJ Betsch, S. Zherebtsov, F Sussmann, A Kessel, SA Trushin, GG Paulus, KM Weitzel, MF Kling, “Intensity dependence of the dissociative ionization of DCl in few-cycle laser fields”, J. Phys. B: At. Mol. Opt. 査読有 **49** (2016) 015601:1-8.

doi:10.1088/0953-4075/49/1/015601

5. G Wachter, S Nagele, SA Sato, R Pazourek, M Wais, C Lemell, XM Tong, K Yabana, and J Burgdorfer, “Protocol for observing molecular dipole excitations by attosecond self-streaking”, Phys. Rev. A 査読有 **92** (2015) 061403(R):1-5.

doi:10.1103/PhysRevA.92.061403

6. G Wachter, SA Sato, C Lemell, XM Tong, K Yabana, and J Burgdorfer, “Controlling ultrafast currents by the nonlinear photogalvanic effect”, New J Phys. 査読有 **17** (2015) 12036:1-8.

doi:10.1088/1367-2630/17/12/123026

7. XM Tong, G Wachter, SA Sato, C Lemell, K Yabana, and J Burgdorfer, “Application of norm-conserving pseudopotentials to intense laser-matter interactions”, Phys. Rev. A 査読有 **92** (2015) 043422:1-9.

doi:10.1103/PhysRevA.92.043422

8. CW Hogle, XM Tong, L Martin, MM Murnane, HC Kapteyn, P Ranitovic, “*Attosecond Coherent Control of Single and Double Photoionization in Argon*”, Phys. Rev. Lett. 査読有 **115** (2015) 173004:1-5. doi:10.1103/PhysRevLett.115.173004
9. XM Tong, ZM Hu, YM Li, XY Han, D Kato, H Watanabe and N Nakamura, “*Mechanism of dominance of the Breit interaction in dielectronic recombination*”, J. Phys. B: At. Mol. Opt. 査読有 **48** (2015) 144022:1-6. doi:10.1088/0953-4075/48/14/144002
10. C Mancuso, DD Hickstein, P Grychtol, R Knut, O Kfir, XM Tong, F Dollar, D Zusin, M Gopalakrishnan, C Gentry, E Turgut, JL Ellis, MC Chen, A Fleischer, O Cohen, HC Kapteyn, and MM Murnane, “*Strong-field ionization with two-color circularly polarized laser fields*”, Phys. Rev. A 査読有 **91** (2015) 031402:1-7 (R). doi:10.1103/PhysRevA.91.031402
11. B Wolter, C Lemell, M Baudisch, MG Pullen, XM Tong, M Hemmer, A Senftleben, CD Schroter, J Ullrich, R Moshhammer, J Biegert, and J Burgdorfer, “*Formation of very-low-energy states crossing the ionization threshold of argon atoms in strong mid-infrared fields*”, Phys. Rev. A 査読有 **90** (2014) 063424:1-8. doi:10.1103/PhysRevA.90.063424
12. QQ Li, XM Tong, T Morishita, C Jin, H Wei and CD Lin, “*Rydberg states in strong field ionization of hydrogen by 800, 1200 and 1600 nm lasers*”, J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys. 査読有 **47** (2014) 204019:1-7. doi:10.1088/0953-4075/47/20/204019
13. G Wachter, C Lemell, J Burgdorfer, SA Sato, XM Tong and K Yabana, “*Ab initio Simulation of Electrical Currents Induced by Ultrafast Laser Excitation of Dielectric Materials*”, Phys. Rev. Lett. 査読有 **113** (2014) 087401:1-5. doi:10.1103/PhysRevLett.113.087401
14. H Li, AS Alnaser, XM Tong, KJ Betsch, M Kubel, T Pischke, B Forg, J Schotz, F Sumann, S Zherebtsov, A Kessel, S Trushin, A Azzeer, and MF Kling, “*Intensity dependence of the attosecond control of the dissociative ionization of  $D_2$* ”, J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys. 査読有 **47** (2014) 124020:1-10. doi:10.1088/0953-4075/47/12/124020
15. QQ Li, XM Tong, T Morishita, H Wei and CD Lin, “*Fine structures in the intensity dependence of excitation and ionization probabilities of hydrogen atom in intense 800-nm laser pulses*”, Phys. Rev. A 査読有 **89** (2014) 023421:1-9. doi:10.1103/PhysRevA.89.023421
16. P Ranitovic, CW Hogle, P Riviere, A Palacios, XM Tong, N Toshima, A Gonzalez-Castrillo, L Martin, F Martin, M. M. Murnane, and H. C. Kapteyn, “*Attosecond vacuum UV Coherent Control of Molecular Dynamics*”, PNAS 査読有 **111** (2014) 912-917. doi:10.1073/pnas.1321999111
17. XM Tong, P Ranitovic, DD Hickstein, MM Murnane, HC Kapteyn and N Toshima “*Enhanced multiple-scattering and intra-half-cycle interferences in the photoelectron angular distributions of atoms ionized in mid-infrared laser fields*”, Phys. Rev. A 査読有 **88** (2013) 013410:1-5. doi:10.1103/PhysRevA.88.013410
18. XW Wang, M Chini, Y Cheng, Y Wu, XM Tong, and ZH Chang, “*Subcycle laser control and quantum interferences in attosecond photoabsorption of neon*”, Phys. Rev. A 査読有 **87** (2013) 063413:1-4. doi:10.1103/PhysRevA.87.063413
19. MG Pullen, WC Wallace, DE Laban, AJ Palmer, GF Hanne, AN Grum-Grzhimailo, K Bartschat, I Ivanov, A Kheifets D Wells, HM Quiney, XM Tong, IV Litvinyuk, RT Sang, D Kielpinski, “*Measurement of laser intensities approaching  $10^{15}$  W/cm<sup>2</sup> with an accuracy of 1%*”, Phys. Rev. A 査読有 **87** (2013) 053411:1-6. doi:10.1103/PhysRevA.87.053411
20. C Lemell, J Burgdöfer, S Gräfe, KI



Dimitriou, DG Arbó, and XM Tong,  
“Classical-quantum correspondence in atomic  
ionization by mid-infrared pulses: multiple peak  
and interference structures”, Phys. Rev. A 査読  
有 **87** (2013) 013421:1-9.  
[doi:10.1103/PhysRevA.87.013421](https://doi.org/10.1103/PhysRevA.87.013421)

21. XM Tong and N Toshima, “Mass  
polarization effect on the resonant energy of  
 $p + \text{He}^+$  ions and the protonium formation in  
low-energy antiproton-hydrogen-atom collisions”,  
Phys. Rev. A 査読有 **85** (2012) 032709:1-5.  
[doi:10.1103/PhysRevA.85.032709](https://doi.org/10.1103/PhysRevA.85.032709)

〔学会発表〕(計 7 件)

(1) Y Cheng, M Chini, XM Tong, A Chew, J  
Biedermann, Y Wu, E Cunningham ZH Chang,  
“Quantum beats in attosecond time-resolved  
autoionization of krypton”, APS Division of  
Atomic and Molecular Physics Meeting 2015,  
8-12 June 2015, Hyatt Regency, Columbus, OH,  
USA

(2) P Ranitovic, XM Tong, D Hickstein, MM  
Margaret, H Kapteyn, “Control of Attosecond  
Electron Diffraction by Elliptical  
Long-Wavelength Radiation”, APS Division of  
Atomic and Molecular Physics Meeting 2015,  
8-12 June 2015, Hyatt Regency, Columbus, OH,  
USA

(3) XM Tong and N Toshima, “Steering the  
electron motion by two counter-rotating  
circularly polarized short intense laser pulses”,  
XXIX International Conference on Photonic,  
Electronic, and Atomic Collisions (ICPEAC2015)  
22–28 July 2015, Toledo, Spain

(4) B Wolter, C Lemell, M Baudisch, MG  
Pullen, XM Tong, M Hemmer, A Senfleben, M  
Sclafani, CD Schröter, J Ullrich, R Moshhammer, J  
Burgdörfer, J Biegert, “Origins of Very-Low and  
Zero-Energy Electron Structures in Strong-Field  
Ionization with Intense Mid-IR Pulses”, XXIX  
International Conference on Photonic, Electronic,  
and Atomic Collisions (ICPEAC2015) 22–28 July  
2015, Toledo, Spain

(5) R Bello, LS Martin, CW Hogle, A Palacios,  
JL Sanz-Vicario, XM Tong, F Martín, M  
Murnane, HC Kapteyn, P Ranitovic, “Mapping  
ultrafast dynamics of highly excited  $D_2^+$  by  
ultrashort XUV pump - IR probe radiation”,  
XXIX International Conference on Photonic,  
Electronic, and Atomic Collisions (ICPEAC2015)  
22–28 July 2015, Toledo, Spain

(6) XM Tong, P Ranitovic, DD Hicksteiny,  
MM Murnane, HC Kapteyn, N Toshima,  
“Mechanisms on the Photoelectron Angular  
Distributions of Atoms Ionized in Mid-Infrared  
Laser Fields”, XXIX International Conference  
on Photonic, Electronic, and Atomic Collisions  
(ICPEAC2013) 24–30 July 2015, Lanzhou, China

(7) P Ranitovic, CW Hogle, P. Riviere, A  
Palacios, XM Tong, N. Toshima, A  
Gonzalez-Castrillo, L Martin, F Martín, MM  
Murnane, HC Kapteyn, “Attosecond VUV  
Coherent Control of Molecular Dynamics”  
XXIX International Conference on Photonic,  
Electronic, and Atomic Collisions (ICPEAC2013)  
24–30 July 2015, Lanzhou, China

〔図書〕(計 1 件)

(1) XM Tong and N Toshima “Controlling Atomic  
Photoabsorption by Intense Lasers in the  
Attosecond Time Domain” Chapter 7 in Ultrafast  
Dynamics Driven by Intense Light Pulses  
Volume 86 of the series Springer Series on  
Atomic, Optical, and Plasma Physics pp 161-176  
Edit

〔産業財産権〕  
出願状況 (計 件)

名称：  
発明者：  
権利者：  
種類：  
番号：  
出願年月日：  
国内外の別：

取得状況 (計 件)

名称：  
発明者：  
権利者：  
種類：  
番号：  
取得年月日：  
国内外の別：

〔その他〕  
ホームページ等

## 6. 研究組織

### (1) 研究代表者

トン ショウミン (TONG Xiao-Min)

筑波大学・数理物質系・准教授

研究者番号：80422210