

令和 6 年 5 月 28 日現在

機関番号：12601

研究種目：基盤研究(A)（一般）

研究期間：2019～2023

課題番号：19H00869

研究課題名（和文）分子のための第一原理高強度場物理・アト秒科学シミュレーション

研究課題名（英文）Ab initio strong-field physics and attosecond science for molecules

研究代表者

石川 顕一（Ishikawa, Kenichi）

東京大学・大学院工学系研究科（工学部）・教授

研究者番号：70344025

交付決定額（研究期間全体）：（直接経費） 36,730,000円

研究成果の概要（和文）：高強度のフェムト秒レーザーパルスに照射された分子中に引き起こされる高強度場現象やアト秒現象を第一原理計算するために、時間依存多配置自己無撞着場法に基づく数値計算コードを開発した。二原子分子の電子・核相関ダイナミクスを第一原理計算し、核の動きまでも量子力学的に取り扱い、分子解離や同位体効果等をシミュレーションできるようになった。また、曲線座標を用いた多配置時間依存ハートリーフォックコードでは、例えばアセチレン分子からの高次高調波発生の計算を可能にした。さらに時間依存完全活性空間自己無撞着場法を、2原子分子に対して扁長回転楕円体座標を用いた数値計算コードとして実装することに成功した。

研究成果の学術的意義や社会的意義

「物質中の電子ダイナミクスの測定を可能にするアト秒パルス光を生成する実験手法の開発」に2023年のノーベル物理学賞が与えられ、アト秒パルスの応用における理論計算の果たす役割がますます期待されている。高強度場現象・アト秒現象では、たくさんの励起状態や空間的に広がったイオン化状態を取り扱う必要があり、電子は光との相互作用だけでなく他の電子とも相互作用を持つため、そのシミュレーションは大きな挑戦である。本研究の成果によって正確な第一原理計算が可能になり、実験だけでは分からない高強度場現象・アト秒現象のメカニズムを解明し、新しい実験をデザインする上での、強力な指針となることが期待される。

研究成果の概要（英文）：We have numerically implemented the time-dependent multiconfiguration self-consistent field methods for first-principles calculations of intense field and attosecond phenomena induced in molecules irradiated by intense femtosecond laser pulses. First-principles calculations of electron-nuclear correlation dynamics in diatomic molecules have now become possible, and even nuclear motion is treated quantum mechanically to simulate molecular dissociation and isotope effects. In addition, we have developed the multiconfiguration time-dependent Hartree-Fock code using curvilinear coordinates, which has made it possible to calculate, for example, high-harmonic generation from acetylene molecules. Furthermore, the time-dependent complete-active-space self-consistent-field method has successfully been numerically implemented for diatomic molecules using prolate spheroidal coordinates.

研究分野：アト秒科学

キーワード：アト秒科学 高強度場物理 第一原理計算

### 1. 研究開始当初の背景

高強度のフェムト秒レーザーパルスを原子や分子に照射すると、非摂動論的な非線形光学効果(高強度場現象)が起こる。これを研究する分野を高強度場物理と呼ぶ。光子エネルギーがイオン化ポテンシャルより小さくても光が十分強ければ多光子イオン化が起こるが、強度が $\sim 10^{13}$  W/cm<sup>2</sup>を超えると、原子・分子はさらに必要以上の光子を吸収してイオン化する(超閾イオン化)。 $10^{14}$  W/cm<sup>2</sup>以上の強度では、レーザー場でゆがめられたクーロンポテンシャルの壁を電子がトンネル効果で抜けることでイオン化する(トンネルイオン化)。また、このような高強度のレーザーに照射された原子・分子からは、その数十倍以上もの周波数を持つ高次高調波が発生する。高次高調波を使ってアト(10<sup>-18</sup>)秒光パルスを発生することができ、これによって物質中電子の超高速運動を観測したり制御したりすることを目指すアト秒科学が発展してきた。我々は、これらの過程(高強度場現象やアト秒現象)を第一原理計算する様々な手法をみだし、原子を対象とする数値計算コードを開発し、数年前には夢物語と思われた第一原理計算を実現した。

研究開始当初、高強度場物理・アト秒科学の分野では、従来の原子に加え、分子を標的とした実験が急速に進展していた。このことから、同様の第一原理計算を分子で実現することが求められていた。

### 2. 研究の目的

本研究の目的は、我々がそれまでに開発してきた独自の卓越した第一原理計算技術を分子へと拡張し、分子における高強度場現象やアト秒現象を第一原理計算し、メカニズム等に関する理解の深化に資することである。

### 3. 研究の方法

我々はそれまでに、時間依存完全活性空間自己無撞着場(TD-CASSCF)法、時間依存占有制限多重活性空間(TD-ORMAS)法、ゲージ不変時間依存配置間相互作用(GI-TDCI)法、時間依存最適化結合クラスター(TD-OCC)法といった新しい第一原理計算手法を開発してきた。分子軌道を表現するのに適した座標(扁長回転楕円体座標、一般化曲線座標)を導入し、分子を対象とする数値計算コードを開発する。

### 4. 研究成果

(1) 時間依存多配置自己無撞着場法[1]を用いて、強いレーザー場を照射された二原子分子の電子・核相関ダイナミクスを、完全な配置間相互作用展開で計算する数値計算コードを開発した。この方法では、全波動関数は、時間依存の電子スレーター行列式と時間依存の正規直交核基底関数から構成される様々な配置の重ね合わせとして表現される。原子核と電子の基底関数は、ボルン・オープンハイマー近似を用いることなく、互いに独立である。電子運動は曲線座標上で3次元的に扱われ、核波動関数は分子回転を無視した一次元座標上で時間発展させる。この数値実装を、水素分子の高次高調波発生と解離性イオン化に適用した。例えば、D<sub>2</sub>およびH<sub>2</sub>分子からの高次高調波強度比の次数依存性を計算したところ、が実験とよく一致している結果が得られた(図1)。このように、核の動きまでも量子力学的に取り扱い、分子解離や同位体効果等をシミュレーションできるようになった。

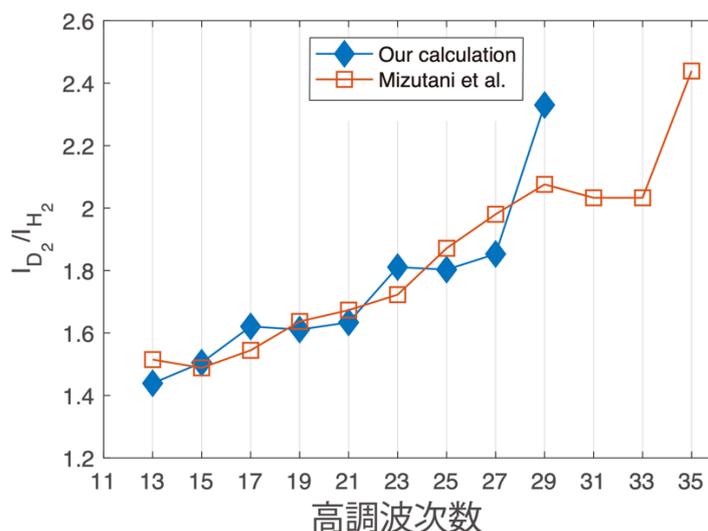


図1 D<sub>2</sub>およびH<sub>2</sub>分子からの高次高調波強度比の次数依存性。本件研究の計算結果(◆)が実験結果(□)とよく一致している。

(2) 曲線座標を用いて多配置時間依存ハートリーフォック (MCTDHF) 法を数値計算コードとして実装することに成功した。吸収境界としては、外部複素スケーリング (ECS) を実装した。例えば、アセチレン ( $C_2H_2$ ) 分子の高次高調波発生をシミュレーションし、軌道数に関して収束したスペクトルを得ることに成功した (図 2)。時間依存ハートリーフォック (TDHF) 法とは異なる結果となっており、電子相関の寄与が重要であることを明らかにした。また、偏光依存性を議論することを可能にした。

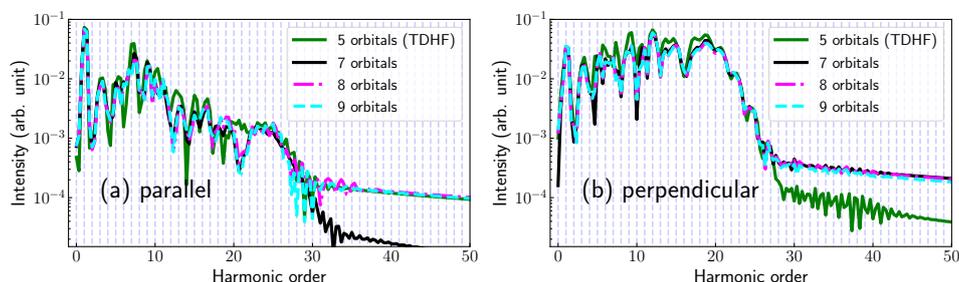


図 2 アセチレン分子に強度  $10^{14} \text{ W/cm}^2$  の直線偏光を照射した時の高次高調波スペクトル。(a) 分子軸に平行な偏光の場合 (b) 分子軸に垂直な偏光の場合

(3) 時間依存完全活性空間自己無撞着場 (TD-CASSCF) 法を、高強度レーザーパルス中の 2 原子分子に対して、数値計算コードとして実装することに成功した。扁長回転楕円体座標を用いて、フルに 3 次元な数値計算を実現している。ゲージ不変性を守る凍結コア近似を取り入れ、ノイマン展開による有限要素離散変数表現を用いて電子-電子相互作用項を効率的かつ正確に評価している。また、指数時間差分スキームを改良することで、ステップな非線形軌道関数の安定な時間発展を可能にしている。実装した数値計算コードを用いて、水素分子、LiH、窒素分子 (イタリアの FERMI など自由電子レーザーでイオン化のコヒーレント制御の実験が行われている) などの二原子分子の高次高調波発生をシミュレーションに成功した (図 3)。この成果は、二原子分子の高次高調波発生、光電子角度分布等における電子相関の効果を研究するのに威力を発揮すると期待される。

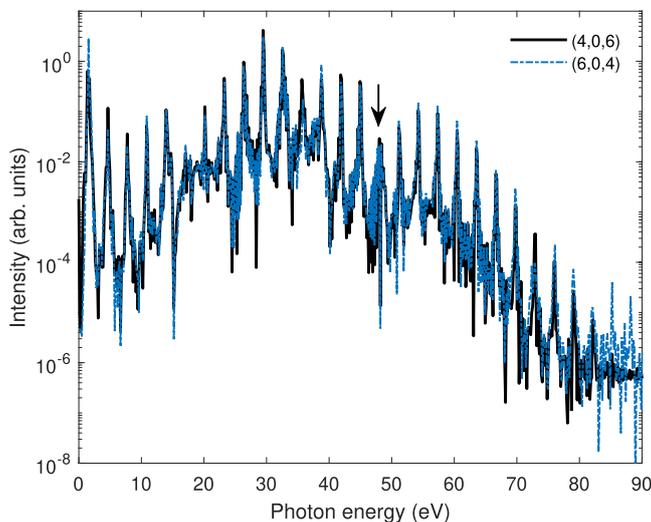


図 3 窒素分子に波長  $800 \text{ nm}$ 、強度  $2 \times 10^{14} \text{ W/cm}^2$  のレーザー光を照射した時の高次高調波スペクトルの TD-CASSCF 計算結果。凡例のカッコ内は、左からそれぞれ、凍結コア軌道、動的コア軌道、活性軌道の数。

<引用文献>

[1] R. Anzaki, T. Sato, and K. L. Ishikawa, Phys. Chem. Chem. Phys. 19, 22008 (2017)

## 5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計31件（うち査読付論文 28件 / うち国際共著 9件 / うちオープンアクセス 19件）

|   |                     |
|---|---------------------|
| 1. 著者名<br>佐藤健   | 4. 巻<br>19巻3号       |
| 2. 論文標題<br>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多配置理論および時間依存結合クラスター理論 | 5. 発行年<br>2022年     |
| 3. 雑誌名<br>しょうとつ   | 6. 最初と最後の頁<br>36-48 |
| 掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子)<br>なし                              | 査読の有無<br>有          |
| オープンアクセス<br>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<br>-           |

|  |                       |
|--|-----------------------|
| 1. 著者名<br>Matsubara Takuya, Nabekawa Yasuo, Ishikawa Kenichi L., Yamouchi Kaoru, Midorikawa Katsumi        | 4. 巻<br>2022          |
| 2. 論文標題<br>Attosecond Optical and Ramsey-Type Interferometry by Postgeneration Splitting of Harmonic Pulse | 5. 発行年<br>2022年       |
| 3. 雑誌名<br>Ultrafast Science  | 6. 最初と最後の頁<br>9858739 |
| 掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子)<br>10.34133/2022/9858739  | 査読の有無<br>有            |
| オープンアクセス<br>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<br>-             |

|  |                     |
|--|---------------------|
| 1. 著者名<br>Gryzlova E. V., Kenichi L. Ishikawa, et al.  | 4. 巻<br>4           |
| 2. 論文標題<br>Influence of an atomic resonance on the coherent control of the photoionization process | 5. 発行年<br>2022年     |
| 3. 雑誌名<br>Physical Review Research   | 6. 最初と最後の頁<br>33231 |
| 掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子)<br>10.1103/PhysRevResearch.4.033231                                       | 査読の有無<br>有          |
| オープンアクセス<br>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<br>該当する        |

|  |                 |
|--|-----------------|
| 1. 著者名<br>Pathak Himadri, Sato Takeshi, Ishikawa Kenichi L.  | 4. 巻<br>10      |
| 2. 論文標題<br>Time-dependent optimized coupled-cluster method with doubles and perturbative triples for first principles simulation of multielectron dynamics | 5. 発行年<br>2022年 |
| 3. 雑誌名<br>Frontiers in Chemistry   | 6. 最初と最後の頁<br>- |
| 掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子)<br>10.3389/fchem.2022.982120  | 査読の有無<br>有      |
| オープンアクセス<br>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<br>-       |

|   |                 |
|---|-----------------|
| 1. 著者名<br>Sato Takeshi, Pathak Himadri, Orimo Yuki, Ishikawa Kenichi L.   | 4. 巻<br>-       |
| 2. 論文標題<br>Time-dependent multiconfiguration self-consistent-field and time-dependent optimized coupled-cluster methods for intense laser-driven multielectron dynamics | 5. 発行年<br>2023年 |
| 3. 雑誌名<br>Canadian Journal of Chemistry   | 6. 最初と最後の頁<br>- |
| 掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子)<br>10.1139/cjc-2022-0297   | 査読の有無<br>有      |
| オープンアクセス<br>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<br>-       |

|  |                 |
|--|-----------------|
| 1. 著者名<br>Yuki Orimo, Takeshi Sato, Kenichi L. Ishikawa  | 4. 巻<br>-       |
| 2. 論文標題<br>Efficient simulation of multielectron dynamics in molecules under intense laser pulses: Implementation of the multiconfiguration time-dependent Hartree-Fock method based on the adaptive finite element method | 5. 発行年<br>2023年 |
| 3. 雑誌名<br>Canadian Journal of Chemistry  | 6. 最初と最後の頁<br>- |
| 掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子)<br>なし   | 査読の有無<br>有      |
| オープンアクセス<br>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<br>-       |

|  |                               |
|--|-------------------------------|
| 1. 著者名<br>Orimo Yuki, Tugs Oyunbileg, Sato Takeshi, You Daehyun, Ueda Kiyoshi, Ishikawa Kenichi L  | 4. 巻<br>54                    |
| 2. 論文標題<br>Interferometric extraction of photoionization-path amplitudes and phases from time-dependent multiconfiguration self-consistent-field simulations | 5. 発行年<br>2021年               |
| 3. 雑誌名<br>Journal of Physics B: Atomic, Molecular and Optical Physics  | 6. 最初と最後の頁<br>074001 ~ 074001 |
| 掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子)<br>10.1088/1361-6455/abe67e   | 査読の有無<br>有                    |
| オープンアクセス<br>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<br>-                     |

|  |                               |
|--|-------------------------------|
| 1. 著者名<br>Pathak Himadri, Sato Takeshi, Ishikawa Kenichi L.  | 4. 巻<br>154                   |
| 2. 論文標題<br>Time-dependent optimized coupled-cluster method for multielectron dynamics. IV. Approximate consideration of the triple excitation amplitudes | 5. 発行年<br>2021年               |
| 3. 雑誌名<br>The Journal of Chemical Physics  | 6. 最初と最後の頁<br>234104 ~ 234104 |
| 掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子)<br>10.1063/5.0054743  | 査読の有無<br>有                    |
| オープンアクセス<br>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<br>-                     |

|  |                             |
|--|-----------------------------|
| 1. 著者名<br>Li Yang, Sato Takeshi, Ishikawa Kenichi L.   | 4. 巻<br>104                 |
| 2. 論文標題<br>Implementation of a time-dependent multiconfiguration self-consistent-field method for coupled electron-nuclear dynamics in diatomic molecules driven by intense laser pulses | 5. 発行年<br>2021年             |
| 3. 雑誌名<br>Physical Review A  | 6. 最初と最後の頁<br>043104-043104 |
| 掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子)<br>10.1103/PhysRevA.104.043104  | 査読の有無<br>有                  |
| オープンアクセス<br>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<br>-                   |

|   |                               |
|---|-------------------------------|
| 1. 著者名<br>Pathak Himadri, Sato Takeshi, Ishikawa Kenichi L.   | 4. 巻<br>153                   |
| 2. 論文標題<br>Time-dependent optimized coupled-cluster method for multielectron dynamics. III. A second-order many-body perturbation approximation | 5. 発行年<br>2020年               |
| 3. 雑誌名<br>The Journal of Chemical Physics   | 6. 最初と最後の頁<br>034110 ~ 034110 |
| 掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子)<br>10.1063/5.0008789   | 査読の有無<br>有                    |
| オープンアクセス<br>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<br>-                     |

|  |                        |
|--|------------------------|
| 1. 著者名<br>Pathak Himadri, Sato Takeshi, Ishikawa Kenichi L.  | 4. 巻<br>118            |
| 2. 論文標題<br>Study of laser-driven multielectron dynamics of Ne atom using time-dependent optimised second-order many-body perturbation theory | 5. 発行年<br>2020年        |
| 3. 雑誌名<br>Molecular Physics  | 6. 最初と最後の頁<br>e1813910 |
| 掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子)<br>10.1080/00268976.2020.1813910  | 査読の有無<br>有             |
| オープンアクセス<br>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<br>-              |

|  |                               |
|--|-------------------------------|
| 1. 著者名<br>Kim V V, Boltaev G S, Iqbal M, Abbasi N A, Al-Harmi H, Wahyutama I S, Sato T, Ishikawa K L, Ganeev R A, Alnaser A S                                | 4. 巻<br>53                    |
| 2. 論文標題<br>Resonance enhancement of harmonics in the vicinity of 32 nm spectral range during propagation of femtosecond pulses through the molybdenum plasma | 5. 発行年<br>2020年               |
| 3. 雑誌名<br>Journal of Physics B: Atomic, Molecular and Optical Physics  | 6. 最初と最後の頁<br>195401 ~ 195401 |
| 掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子)<br>10.1088/1361-6455/aba581   | 査読の有無<br>有                    |
| オープンアクセス<br>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<br>該当する                  |

|   |                     |
|---|---------------------|
| 1. 著者名<br>You Daehyun, Ueda Kiyoshi, Tugs Oyunbileg, Orimo Yuki, Sato Takeshi, Ishikawa Kenichi L. et al. | 4. 巻<br>10          |
| 2. 論文標題<br>New Method for Measuring Angle-Resolved Phases in Photoemission                                | 5. 発行年<br>2020年     |
| 3. 雑誌名<br>Physical Review X   | 6. 最初と最後の頁<br>31070 |
| 掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子)<br>10.1103/PhysRevX.10.031070  | 査読の有無<br>有          |
| オープンアクセス<br>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<br>該当する        |

|  |                    |
|--|--------------------|
| 1. 著者名<br>Callegari Carlo, Grum-Grzhimailo Alexei N., Ishikawa Kenichi L., Prince Kevin C., Sansone Giuseppe, Ueda Kiyoshi         | 4. 巻<br>904        |
| 2. 論文標題<br>Atomic, molecular and optical physics applications of longitudinally coherent and narrow bandwidth Free-Electron Lasers | 5. 発行年<br>2021年    |
| 3. 雑誌名<br>Physics Reports  | 6. 最初と最後の頁<br>1~59 |
| 掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子)<br>10.1016/j.physrep.2020.12.002  | 査読の有無<br>有         |
| オープンアクセス<br>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<br>該当する       |

|  |                     |
|--|---------------------|
| 1. 著者名<br>石川顕一、佐藤健                     | 4. 巻<br>31          |
| 2. 論文標題<br>高強度レーザーパルス中の多電子ダイナミクスの新展開   | 5. 発行年<br>2020年     |
| 3. 雑誌名<br>光アライアンス                      | 6. 最初と最後の頁<br>29~33 |
| 掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子)<br>なし         | 査読の有無<br>無          |
| オープンアクセス<br>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<br>-           |

|  |                       |
|--|-----------------------|
| 1. 著者名<br>佐藤健                          | 4. 巻<br>2             |
| 2. 論文標題<br>多電子ダイナミクスに向けた時間依存波動関数理論     | 5. 発行年<br>2020年       |
| 3. 雑誌名<br>理論化学会誌「フロンティア」               | 6. 最初と最後の頁<br>205~215 |
| 掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子)<br>なし         | 査読の有無<br>有            |
| オープンアクセス<br>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<br>-             |

|  |                          |
|--|--------------------------|
| 1. 著者名<br>Li Yang, Sato Takeshi, Ishikawa Kenichi L.                                     | 4. 巻<br>99               |
| 2. 論文標題<br>High-order harmonic generation enhanced by laser-induced electron recollision | 5. 発行年<br>2019年          |
| 3. 雑誌名<br>Physical Review A  | 6. 最初と最後の頁<br>043401-1-5 |
| 掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子)<br>10.1103/PhysRevA.99.043401                                   | 査読の有無<br>有               |
| オープンアクセス<br>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<br>-                |

|   |                          |
|---|--------------------------|
| 1. 著者名<br>Wahyutama Imam S., Sato Takeshi, Ishikawa Kenichi L.  | 4. 巻<br>99               |
| 2. 論文標題<br>Time-dependent multiconfiguration self-consistent-field study on resonantly enhanced high-order harmonic generation from transition-metal elements | 5. 発行年<br>2019年          |
| 3. 雑誌名<br>Physical Review A   | 6. 最初と最後の頁<br>063420-1-7 |
| 掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子)<br>10.1103/PhysRevA.99.063420  | 査読の有無<br>有               |
| オープンアクセス<br>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<br>-                |

|  |                          |
|--|--------------------------|
| 1. 著者名<br>Orimo Yuki, Sato Takeshi, Ishikawa Kenichi L.  | 4. 巻<br>100              |
| 2. 論文標題<br>Application of the time-dependent surface flux method to the time-dependent multiconfiguration self-consistent-field method | 5. 発行年<br>2019年          |
| 3. 雑誌名<br>Physical Review A  | 6. 最初と最後の頁<br>013419-1-8 |
| 掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子)<br>10.1103/PhysRevA.100.013419  | 査読の有無<br>有               |
| オープンアクセス<br>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<br>-                |

|  |                       |
|--|-----------------------|
| 1. 著者名<br>Orimo Yuki, Tok?si Karoly, Sato Takeshi, Ishikawa Kenichi L.                                   | 4. 巻<br>73            |
| 2. 論文標題<br>Comparison between quantum and classical calculations for above threshold ionization of argon | 5. 発行年<br>2019年       |
| 3. 雑誌名<br>The European Physical Journal D  | 6. 最初と最後の頁<br>153-1-5 |
| 掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子)<br>10.1140/epjd/e2019-100066-y  | 査読の有無<br>有            |
| オープンアクセス<br>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<br>該当する          |

|  |                          |
|--|--------------------------|
| 1. 著者名<br>Teramura Takuma, Sato Takeshi, Ishikawa Kenichi L.   | 4. 巻<br>100              |
| 2. 論文標題<br>Implementation of a gauge-invariant time-dependent configuration-interaction-singles method for three-dimensional atoms | 5. 発行年<br>2019年          |
| 3. 雑誌名<br>Physical Review A  | 6. 最初と最後の頁<br>043402-1-8 |
| 掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子)<br>10.1103/PhysRevA.100.043402  | 査読の有無<br>有               |
| オープンアクセス<br>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<br>-                |

|  |                               |
|--|-------------------------------|
| 1. 著者名<br>You Daehyun, Ueda Kiyoshi, Ruberti Marco, Ishikawa Kenichi L, et al.         | 4. 巻<br>21                    |
| 2. 論文標題<br>A detailed investigation of single-photon laser enabled Auger decay in neon | 5. 発行年<br>2019年               |
| 3. 雑誌名<br>New Journal of Physics   | 6. 最初と最後の頁<br>113036 ~ 113036 |
| 掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子)<br>10.1088/1367-2630/ab520d                                   | 査読の有無<br>有                    |
| オープンアクセス<br>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<br>該当する                  |

|  |                          |
|--|--------------------------|
| 1. 著者名<br>Di Fraia Michele, Plekan Oksana, Callegari Carlo, Prince Kevin C., Orimo Yuki, Tugs Oyunbileg, Sato Takeshi, Ishikawa Kenichi L., et al. | 4. 巻<br>123              |
| 2. 論文標題<br>Complete Characterization of Phase and Amplitude of Bichromatic Extreme Ultraviolet Light   | 5. 発行年<br>2019年          |
| 3. 雑誌名<br>Physical Review Letters  | 6. 最初と最後の頁<br>213904 1-7 |
| 掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子)<br>10.1103/PhysRevLett.123.213904   | 査読の有無<br>有               |
| オープンアクセス<br>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<br>該当する             |

|  |                               |
|--|-------------------------------|
| 1. 著者名<br>Pathak Himadri, Sato Takeshi, Ishikawa Kenichi L.  | 4. 巻<br>152                   |
| 2. 論文標題<br>Time-dependent optimized coupled-cluster method for multielectron dynamics. II. A coupled electron-pair approximation | 5. 発行年<br>2020年               |
| 3. 雑誌名<br>The Journal of Chemical Physics  | 6. 最初と最後の頁<br>124115 ~ 124115 |
| 掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子)<br>10.1063/1.5143747  | 査読の有無<br>有                    |
| オープンアクセス<br>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<br>-                     |

|  |                       |
|--|-----------------------|
| 1. 著者名<br>石川 顕一                        | 4. 巻<br>38            |
| 2. 論文標題<br>多電子ダイナミクスの第一原理シミュレーション      | 5. 発行年<br>2019年       |
| 3. 雑誌名<br>月刊OPTRONICS                  | 6. 最初と最後の頁<br>108-112 |
| 掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子)<br>なし         | 査読の有無<br>無            |
| オープンアクセス<br>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<br>-             |

|  |                             |
|--|-----------------------------|
| 1. 著者名<br>Ishikawa Kenichi L., Prince Kevin C., Ueda Kiyoshi                             | 4. 巻<br>127                 |
| 2. 論文標題<br>Control of Ion-Photoelectron Entanglement and Coherence Via Rabi Oscillations | 5. 発行年<br>2023年             |
| 3. 雑誌名<br>The Journal of Physical Chemistry A  | 6. 最初と最後の頁<br>10638 ~ 10646 |
| 掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子)<br>10.1021/acs.jpca.3c06781                                     | 査読の有無<br>有                  |
| オープンアクセス<br>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<br>該当する                |

|   |                           |
|---|---------------------------|
| 1. 著者名<br>Li Yang, He Feng, Sato Takeshi, Ishikawa Kenichi L.   | 4. 巻<br>128               |
| 2. 論文標題<br>Implementation of the Time-Dependent Complete-Active-Space Self-Consistent-Field Method for Diatomic Molecules | 5. 発行年<br>2024年           |
| 3. 雑誌名<br>The Journal of Physical Chemistry A   | 6. 最初と最後の頁<br>1523 ~ 1532 |
| 掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子)<br>10.1021/acs.jpca.3c06799  | 査読の有無<br>有                |
| オープンアクセス<br>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<br>該当する              |

|  |                         |
|--|-------------------------|
| 1. 著者名<br>Orimo Yuki, Sato Takeshi, Ishikawa Kenichi L.  | 4. 巻<br>101             |
| 2. 論文標題<br>Efficient simulation of multielectron dynamics in molecules under intense laser pulses: implementation of the multiconfiguration time-dependent Hartree-Fock method based on the adaptive finite element method | 5. 発行年<br>2023年         |
| 3. 雑誌名<br>Canadian Journal of Chemistry  | 6. 最初と最後の頁<br>664 ~ 671 |
| 掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子)<br>10.1139/cjc-2022-0280  | 査読の有無<br>有              |
| オープンアクセス<br>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<br>-               |

|   |                         |
|---|-------------------------|
| 1. 著者名<br>Sato Takeshi, Pathak Himadri, Orimo Yuki, Ishikawa Kenichi L.   | 4. 巻<br>101             |
| 2. 論文標題<br>Time-dependent multiconfiguration self-consistent-field and time-dependent optimized coupled-cluster methods for intense laser-driven multielectron dynamics | 5. 発行年<br>2023年         |
| 3. 雑誌名<br>Canadian Journal of Chemistry   | 6. 最初と最後の頁<br>698 ~ 709 |
| 掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子)<br>10.1139/cjc-2022-0297   | 査読の有無<br>有              |
| オープンアクセス<br>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<br>-               |

|  |                             |
|--|-----------------------------|
| 1. 著者名<br>Orimo Yuki, Sato Takeshi, Ishikawa Kenichi L.  | 4. 巻<br>127                 |
| 2. 論文標題<br>Use of Erfgau Potential for Simulations of Multielectron Dynamics in Intense Laser Pulses | 5. 発行年<br>2023年             |
| 3. 雑誌名<br>The Journal of Physical Chemistry A  | 6. 最初と最後の頁<br>10499 ~ 10505 |
| 掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子)<br>10.1021/acs.jpca.3c06530   | 査読の有無<br>有                  |
| オープンアクセス<br>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<br>-                   |

|  |                         |
|--|-------------------------|
| 1. 著者名<br>石川 顕一                        | 4. 巻<br>43-508          |
| 2. 論文標題<br>アト秒科学と理論                    | 5. 発行年<br>2024年         |
| 3. 雑誌名<br>月刊OPTRONICS                  | 6. 最初と最後の頁<br>169 ~ 174 |
| 掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子)<br>なし         | 査読の有無<br>無              |
| オープンアクセス<br>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<br>-               |

〔学会発表〕 計34件 (うち招待講演 15件 / うち国際学会 16件)

|  |
|--|
| 1. 発表者名<br>Takeshi Sato  |
| 2. 発表標題<br>Explicitly time-dependent wavefunction-based methods for intense laser-driven multielectron dynamics (口頭) |
| 3. 学会等名<br>WATOC 2020 (招待講演) (国際学会)  |
| 4. 発表年<br>2022年  |

|   |
|---|
| 1. 発表者名<br>Yuki Orimo, Teramura Takuma, Takeshi Sato, Kenichi L. Ishikawa   |
| 2. 発表標題<br>Ab initio simulation of photoelectron energy spectra emitted from molecules based on the time-dependent configuration-interaction-singels method |
| 3. 学会等名<br>ATTO Conference (国際学会)   |
| 4. 発表年<br>2022年   |

|  |
|--|
| 1. 発表者名<br>佐藤健、石川顕一                          |
| 2. 発表標題<br>非断熱分子ダイナミクスのための時間依存結合クラスター法の開発 II |
| 3. 学会等名<br>第83回応用物理学会秋季学術講演会                 |
| 4. 発表年<br>2022年                              |

|   |
|---|
| 1. 発表者名<br>佐藤健、石川顕一                           |
| 2. 発表標題<br>非断熱分子ダイナミクスのための時間依存結合クラスター法の開発 III |
| 3. 学会等名<br>第70回応用物理学会春季学術講演会                  |
| 4. 発表年<br>2023年                               |

|   |
|---|
| 1. 発表者名<br>Takeshi Sato, Yuki Orimo, Yang Li, and Kenichi L. Ishikawa                                 |
| 2. 発表標題<br>Time-Dependent Multiconfiguration Theories for Atoms and Molecules in Intense Laser Fields |
| 3. 学会等名<br>ISUILS 2022 (招待講演) (国際学会)  |
| 4. 発表年<br>2022年   |

|   |
|---|
| 1. 発表者名<br>Takeshi Sato, Yuki Orimo, Yang Li, and Kenichi L. Ishikawa                                       |
| 2. 発表標題<br>Time-Dependent Multiconfiguration Approaches for Atoms and Molecules in Intense Laser Fields     |
| 3. 学会等名<br>18th International Conference of Computational Methods in Sciences and Engineering (ICCMSE 2022) |
| 4. 発表年<br>2022年   |

|   |
|---|
| 1. 発表者名<br>Y. Orimo, T. Sato, and K. L. Ishikawa  |
| 2. 発表標題<br>Implementation of the first-principles simulation based on time-dependent multiconfiguration self-consistent field methods for polyatomic molecules under intense laser pulses |
| 3. 学会等名<br>6th International Symposium on Intense Field, Short Wavelength Atomic and Molecular Processes (ISWAMP 2021) (招待講演) (国際学会)  |
| 4. 発表年<br>2021年   |

|   |
|---|
| 1. 発表者名<br>Takeshi Sato   |
| 2. 発表標題<br>Explicitly time-dependent wavefunction-based methods for intense laser-driven multielectron dynamics |
| 3. 学会等名<br>The International Chemical Congress of Pacific Basin Societies 2021 (招待講演) (国際学会)                    |
| 4. 発表年<br>2021年   |

|  |
|--|
| 1. 発表者名<br>福井 義光、織茂 悠貴、寺村 拓磨、佐藤 健、石川 顕一    |
| 2. 発表標題<br>キラル分子の二色円偏光高次高調波分光の第一原理シミュレーション |
| 3. 学会等名<br>第82回 応用物理学会秋季学術講演会              |
| 4. 発表年<br>2021年                            |

|   |
|---|
| 1. 発表者名<br>織茂悠貴, 佐藤健, 石川顕一                            |
| 2. 発表標題<br>多配置波動関数理論に基づく強レーザー場中の多原子分子のための実時間第一原理計算の実装 |
| 3. 学会等名<br>第15回 分子科学討論会                               |
| 4. 発表年<br>2021年                                       |

|   |
|---|
| 1. 発表者名<br>佐藤 健、石川 顕一                     |
| 2. 発表標題<br>非断熱分子ダイナミクスのための時間依存結合クラスター法の開発 |
| 3. 学会等名<br>第15回 分子科学討論会                   |
| 4. 発表年<br>2021年                           |

|  |
|--|
| 1. 発表者名<br>Takeshi Sato  |
| 2. 発表標題<br>Simulations of strong laser-driven multielectron dynamics using classical and quantum computers |
| 3. 学会等名<br>日本化学会2022年次大会   |
| 4. 発表年<br>2022年  |

|  |
|--|
| 1. 発表者名<br>福井 義光、織茂 悠貴、寺村 拓磨、佐藤 健、石川 顕一        |
| 2. 発表標題<br>キラル分子の二色円偏光高次高調波分光の第一原理シミュレーション (2) |
| 3. 学会等名<br>第69回応用物理学会春季学術講演会                   |
| 4. 発表年<br>2022年                                |

|  |
|--|
| 1. 発表者名<br>Yang Li, Takeshi Sato1, Kenichi Ishikawa  |
| 2. 発表標題<br>Implementation of the time-dependent multiconfiguration method for diatomic molecules |
| 3. 学会等名<br>第69回応用物理学会春季学術講演会   |
| 4. 発表年<br>2022年  |

|   |
|---|
| 1. 発表者名<br>佐藤健、石川顕一                       |
| 2. 発表標題<br>非断熱分子ダイナミクスのための時間依存結合クラスター法の開発 |
| 3. 学会等名<br>第69回応用物理学会春季学術講演会              |
| 4. 発表年<br>2022年                           |

|   |
|---|
| 1. 発表者名<br>Kenichi L. Ishikawa                                  |
| 2. 発表標題<br>Strong-Field Physics from the First Principles       |
| 3. 学会等名<br>Quantum Science Symposium, ICCMSE 2021 (招待講演) (国際学会) |
| 4. 発表年<br>2021年   |

|  |
|--|
| 1. 発表者名<br>Takeshi Sato  |
| 2. 発表標題<br>Time-dependent wavefunction-based methods for intense laser-driven multielectron dynamics |
| 3. 学会等名<br>Workshop "Molecular quantum dynamics beyond bound states" (招待講演) (国際学会)                   |
| 4. 発表年<br>2021年  |

|  |
|--|
| 1. 発表者名<br>Yuki Orimo, Takeshi Sato, and Kenichi L. Ishikawa   |
| 2. 発表標題<br>Development of real-time Ab Initio simulations based on multiconfiguration self-consistent field methods for molecules under laser pulses |
| 3. 学会等名<br>Workshop "Molecular quantum dynamics beyond bound states" (国際学会)  |
| 4. 発表年<br>2021年  |

|  |
|--|
| 1. 発表者名<br>Yang Li, Takeshi Sato, Kenichi Ishikawa   |
| 2. 発表標題<br>Implementation of the time-dependent Hartree-Fock method for diatomic molecules on prolate spheroidal coordinates |
| 3. 学会等名<br>第81回応用物理学会秋季学術講演会   |
| 4. 発表年<br>2020年  |

|   |
|---|
| 1. 発表者名<br>磯野 悠太郎、佐藤 健、石川 顕一              |
| 2. 発表標題<br>非直交曲線座標による時間依存ハートリー・フォック法の数値実装 |
| 3. 学会等名<br>第81回応用物理学会秋季学術講演会              |
| 4. 発表年<br>2020年                           |

|   |
|---|
| 1. 発表者名<br>寺村 拓磨、佐藤 健、石川 顕一             |
| 2. 発表標題<br>ゲージ不変なTDCIS法の実空間三次元分子への実装(2) |
| 3. 学会等名<br>第81回応用物理学会秋季学術講演会            |
| 4. 発表年<br>2020年                         |

|   |
|---|
| 1. 発表者名<br>織茂 悠貴、佐藤 健、石川 顕一                 |
| 2. 発表標題<br>高強度レーザー場に照射された分子の第一原理計算の分散メモリ並列化 |
| 3. 学会等名<br>第81回応用物理学会秋季学術講演会                |
| 4. 発表年<br>2020年                             |

|  |
|--|
| 1. 発表者名<br>磯野 悠太郎、佐藤 健、石川 顕一             |
| 2. 発表標題<br>曲線座標による多配置時間依存ハートリーフォック法の数値実装 |
| 3. 学会等名<br>第68回応用物理学会春季学術講演会             |
| 4. 発表年<br>2021年                          |

|  |
|--|
| 1. 発表者名<br>織茂 悠貴、トゥグス オユーンピレグ、佐藤 健、ユ デヒョン、上田 潔、石川 顕一 |
| 2. 発表標題<br>時間依存多配置波動関数理論に基づく第一原理計算からの光電子波束の振幅及び位相の抽出 |
| 3. 学会等名<br>第68回応用物理学会春季学術講演会                         |
| 4. 発表年<br>2021年                                      |

|  |
|--|
| 1. 発表者名<br>Kenichi L. Ishikawa   |
| 2. 発表標題<br>Time-Dependent Many-Electron Wavefunction-Based Methods for Atoms and Molecules in Intense Laser Fields |
| 3. 学会等名<br>ICCMSE2019(5th Computational Chemistry Symposium) (招待講演) (国際学会)   |
| 4. 発表年<br>2019年  |

|  |
|--|
| 1. 発表者名<br>Kenichi Ishikawa  |
| 2. 発表標題<br>Resonant enhancement in high-order harmonic generation  |
| 3. 学会等名<br>STAR10(Shanghai-Tokyo Advanced Research Symposium on Ultrafast Intense Laser Science) (招待講演) (国際学会) |
| 4. 発表年<br>2019年  |

|  |
|--|
| 1. 発表者名<br>Kenichi L. Ishikawa   |
| 2. 発表標題<br>Simulations of atoms, molecules, clusters, and solids in intense laser fields |
| 3. 学会等名<br>Ultrafast Molecular Dynamics (招待講演) (国際学会)                                    |
| 4. 発表年<br>2019年  |

|  |
|--|
| 1. 発表者名<br>Takeshi Sato  |
| 2. 発表標題<br>Time-dependent wavefunction-based methods for intense laser-driven multielectron dynamics                                 |
| 3. 学会等名<br>5th International Symposium on Intense Field, Short Wavelength Atomic and Molecular Processes (ISWAMP 2019) (招待講演) (国際学会) |
| 4. 発表年<br>2019年  |

|  |
|--|
| 1. 発表者名<br>Takeshi Sato  |
| 2. 発表標題<br>Time-dependent optimized coupled-cluster method for intense laser-driven multielectron dynamics |
| 3. 学会等名<br>New Developments in Coupled-Cluster Theory 2019 (招待講演) (国際学会)                                   |
| 4. 発表年<br>2019年  |

|  |
|--|
| 1. 発表者名<br>Takeshi Sato  |
| 2. 発表標題<br>Time-Dependent Wavefunction- Based Methods for Intense Laser- Driven Multielectron Dynamics |
| 3. 学会等名<br>2nd International Conference on Photonics Research (招待講演) (国際学会)                            |
| 4. 発表年<br>2019年  |

|  |
|--|
| 1. 発表者名<br>佐藤 健                                |
| 2. 発表標題<br>時間依存結合クラスター理論の開発と強光子場中の電子ダイナミクスへの応用 |
| 3. 学会等名<br>QIQBシンポジウム「量子化学と量子情報・寮費生命の接点」(招待講演) |
| 4. 発表年<br>2019年                                |

|  |
|--|
| 1. 発表者名<br>Takeshi Sato  |
| 2. 発表標題<br>Simulations of intense laser-driven nonadiabatic molecular dynamics using classical and quantum computers |
| 3. 学会等名<br>International Symposium on Ultrafast Intense Laser Science (ISUILS2023) (招待講演) (国際学会)                     |
| 4. 発表年<br>2023年  |

|  |
|--|
| 1. 発表者名<br>Kenichi L. Ishikawa, Kevin C. Prince, Kiyoshi Ueda                            |
| 2. 発表標題<br>Control of ion-photoelectron entanglement and coherence via Rabi oscillations |
| 3. 学会等名<br>High-Brightness Sources and Light-Driven Interactions Congress (HILAS) (国際学会) |
| 4. 発表年<br>2024年  |

|                                      |
|--------------------------------------|
| 1. 発表者名<br>石川顕一、佐藤健                  |
| 2. 発表標題<br>アト秒現象の理論研究                |
| 3. 学会等名<br>レーザー学会学術講演会第44回年次大会（招待講演） |
| 4. 発表年<br>2024年                      |

〔図書〕 計0件

〔産業財産権〕

〔その他〕

東京大学大学院工学系研究科原子力国際専攻石川顕一研究室  
<https://www.atto.t.u-tokyo.ac.jp>  
 東京大学大学院工学系研究科石川研究室  
<https://www.atto.t.u-tokyo.ac.jp>  
 東京大学大学院工学系研究科石川研究室  
<https://www.atto.t.u-tokyo.ac.jp>  
 東京大学工学系研究科石川研究室  
<https://www.atto.t.u-tokyo.ac.jp>

| 6. 研究組織                   |                       |    |
|---------------------------|-----------------------|----|
| 氏名<br>(ローマ字氏名)<br>(研究者番号) | 所属研究機関・部局・職<br>(機関番号) | 備考 |
|                           |                       |    |

7. 科研費を使用して開催した国際研究集会

〔国際研究集会〕 計0件

8. 本研究に関連して実施した国際共同研究の実施状況

| 共同研究相手国 | 相手方研究機関 |
|---------|---------|
|         |         |