

## 科学研究費助成事業 研究成果報告書

平成 29 年 6 月 5 日現在

機関番号：12601

研究種目：基盤研究(C) (一般)

研究期間：2014～2016

課題番号：26390076

研究課題名(和文) 強レーザー場中の多電子ダイナミクス：時間依存・多配置波動関数理論の開発

研究課題名(英文) Multielectron dynamics in intense laser fields: time-dependent multiconfiguration wavefunction theory

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)・特任講師

研究者番号：30507091

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 3,900,000円

研究成果の概要(和文)：多電子ダイナミクスを記述する厳密理論であるMCTDHF法の問題点は電子数Nに対して計算コストが指数関数的に増大する点である。先行研究ではこの問題を克服するためにTD-CASSCF法と呼ぶ新しい方法を開発した。本研究ではより柔軟に計算コストと計算精度を調整することが可能なTD-ORMAS法と呼ぶ手法を開発し、従来不可能だった多電子系の精確なシミュレーションを可能にした。3次元ハミルトニアンに対するプログラム実装でも世界を先導し、近赤外高強度パルス照射下の He, Be, Ne 原子、および水分子の高次高調波発生の精密計算に初めて成功した。

研究成果の概要(英文)：The multiconfiguration time-dependent Hartree-Fock (MCTDHF) method exactly describes multielectron dynamics in atoms and molecules. However, the computational cost of MCTDHF method scales exponentially with respect to the number of electrons N, hampering applications to large-scale systems. To solve this problem we have developed the TD-CASSCF method in the previous work. This work further introduces the TD-ORMAS method which can flexibly control the cost/accuracy balance, enabling accurate simulations of multielectron systems which were previously inaccessible. We also developed efficient program code for three-dimensional first-principle Hamiltonian, and succeeded in the accurate calculation of high harmonic spectra of He, Be, Ne atoms and water molecules for the first time.

研究分野：量子科学

キーワード：高強度レーザー 超高速科学 第一原理計算 多配置波動関数理論

1. 研究開始当初の背景

超短パルス高強度光源を活用した強光子場科学・アト秒科学が急速に発展している。分子軌道イメージングに代表されるように、物質中の電子の軌道描像や電子相関を、電子固有の時間スケール=アト秒スケールで直接研究する新しい学問領域として、今後ますます注目されていくと考えられる。理論・シミュレーションの立場からこれらの実験を説明し、指針を与え、新規の現象を予測したい。この目的のために、申請者らが最近開発した新しい計算手法:TD-CASSCF法を拡張してより強力な時間依存波動関数理論を開発する。さらに多電子原子および二原子分子の実時間・実空間シミュレーションのための並列計算コードを作成し、高強度レーザー場中の第一原理多電子ダイナミクスを展開する。

2. 研究の目的

- ① TD-CASSCF法の拡張:任意の配置展開に基づくTD-MSCF法の定式化
- ② 原子のための実装:動径方向 FEDVR×角度方向 DVRの直積基底法の開発
- ③ 二原子分子のための実装:回転楕円体座標における断熱近似シミュレーション

3. 研究の方法

平成26年度中に一般化したTD-MSCF法の定式化と一次元多電子モデルへの実装を完了した。平成27年度以降、三次元ハミルトニアンに基づいて原子および二原子分子への実装を行った。基底関数には動径方向および角度方向の離散値表現(DVR)の直積基底を用いた。最後に要素技術を統合して高並列計算コードを完成させた。応用計算として希ガス原子の高次高調波発生、非逐次多重電離の解析、水素分子および水分子からの高次高調波発生の研究を行った。

4. 研究成果

多電子ダイナミクスを記述する厳密理論であるMCTDHF法の問題点は電子数Nに対して計算コストが指数関数的に増大する点である。先行研究ではこの問題を克服するためにTD-CASSCF法と呼ぶ新しい方法を開発した。本研究ではより柔軟に計算コストと計算精度を調整することが可能なTD-ORMAS法と呼ぶ手法を開発し、従来不可能だった多電子系の精確なシミュレーションを可能にした。3次元ハミルトニアンに対するプログラム実装でも世界を先導し、近赤外高強度パルス照射下のHe, Be, Ne原子, および水分子の高次高調波発生の精密計算に初めて成功した。

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13件)

- ① 1. I. Tikhomirov, T. Sato, and K. L. Ishikawa, "High-Harmonic Generation Enhanced by Dynamical Electron Correlation", *Phys. Rev. Lett.*, 118 (20), 203202 (2017). 【査読あり】  
<https://doi.org/10.1103/PhysRevLett.118.203202>
- ② 2. Y. Nishimura, T. Tsuneda, T. Sato, Michio Katouda, and S. Irle, "Quantum Chemical Estimation of Acetone Physisorption on Graphene Using Combined Basis Set and Size Extrapolation Schemes", *J. Phys. Chem. C*, 121 (16), 8999 (2017). 【査読あり】  
<http://dx.doi.org/10.1021/acs.jpcc.6b13002>
- ③ 3. T. Ikemachi, Y. Shinohara, T. Sato, J. Yumoto, M. Kuwata-Gonokami, and K. L. Ishikawa, "Trajectory analysis of high-order-harmonic generation from periodic crystals", *Phys. Rev. A*, 95 (4), 043416 (2017). 【査読あり】  
<https://doi.org/10.1103/PhysRevA.95.043416>
- ④ F. Lackner, I. Břesinová, T. Sato, K. L. Ishikawa, and J. Burgdörfer, "High-harmonic spectra from time-dependent two-particle reduced-density-matrix theory", *Phys. Rev. A* 95 (3), 033414/1-13 (2017). 【査読あり】  
<https://doi.org/10.1103/PhysRevA.95.033414>
- ⑤ 佐藤健, 石川顕一, "強レーザー場中の多電子ダイナミクス:時間依存多配置波動関数理論の基礎", 分子シミュレーション研究会会誌「アンサンブル」18 (4), 236-239 (2016). 【査読あり】  
<http://ci.nii.ac.jp/naid/40021007499>
- ⑥ 石川顕一, 佐藤健, "強レーザー場中における多電子ダイナミクスの第一原理シミュレーション", 「レーザー研究」44 (12), 784-788 (2016). 【査読あり】  
<http://www.lsj.or.jp/laser/44/4412.pdf>
- ⑦ T. Sato and K. L. Ishikawa, "Time-dependent complete-active-space self-consistent-field method for atoms: Application to high-harmonic generation", *Phys. Rev. A* 94 (2), 023405/1-14 (2016). 【査読あり】

- ⑧ R. Sawada, **T. Sato**, and K. L. Ishikawa, "Implementation of the multiconfiguration time-dependent Hartree-Fock method for general molecules on a multiresolution Cartesian grid", *Phys. Rev. A* 93 (2), 023434/1-7 (2016). 【査読あり】  
<http://dx.doi.org/10.1103/PhysRevA.93.023434>
- ⑨ **T. Sato** and K. L. Ishikawa, "Time-dependent multiconfiguration self-consistent-field method based on occupation restricted multiple active space model for multielectron dynamics in intense laser fields", *Phys. Rev. A* 91, 023417/1-15 (2015). 【査読あり】  
<http://dx.doi.org/10.1103/PhysRevA.91.023417>
- ⑩ F. Lackner, I. Břesinová, **T. Sato**, K. L. Ishikawa, and J. Burgdörfer, "Propagating two-particle reduced density matrices without wavefunctions", *Phys. Rev. A*, 91, 023412/1-17 (2015). 【査読あり】  
<http://dx.doi.org/10.1103/PhysRevA.91.023412>
- ⑪ K. L. Ishikawa and **T. Sato**, "A Review on Ab Initio Approaches for Multielectron Dynamics", *IEEE J. Sel. Topics Quantum Electron.* 21, 8700916 (2015). 【査読あり】  
[http://dx.doi.org/10.1002/\(SICI\)1097-4555\(199801\)29:1<81::AID-JRS214>3.0.CO;2-H](http://dx.doi.org/10.1002/(SICI)1097-4555(199801)29:1<81::AID-JRS214>3.0.CO;2-H)
- ⑫ **T. Sato** and K. L. Ishikawa, "The structure of an approximate two electron wavefunction in intense laser driven ionization dynamics", *J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys.*, 47 (20), 204031/1-12 (2014). 【査読あり】  
<http://dx.doi.org/10.1088/0953-4075/47/20/204031>
- ⑬ R. Sawada, **T. Sato**, and K. L. Ishikawa\*, "Analysis of strong-field enhanced ionization of molecules using Bohmian trajectories", *Phys. Rev. A* 90 (2), 023404/1-8 (2014). 【査読あり】  
<http://dx.doi.org/10.1103/PhysRevA.90.023404>
- [学会発表] (計 15 件)
- ① **T. Sato**, "Development and applications of time-dependent ab initio wavefunction methods for intense-laser driven multielectron dynamics of atoms and molecules", The 3rd China-Japan-Korea Workshop on Theoretical and Computational Chemistry (CJK-WTCC-III), Daejeon (Korea), 10th January (2017).
- ② **T. Sato**, "Time-dependent ab initio wavefunction methods for multielectron dynamics of atoms and molecules in intense laser fields", 77th Okazaki Conference Series: International Symposium on Ultrafast Dynamics in Molecular and Material Science, 岡崎コンファレンスセンター, 東岡崎市 (愛知県) 3月8日 (2017).
- ③ **佐藤健**, 石川顕一, "高強度レーザー場中の多電子ダイナミクス:時間依存波動関数理論の原子・分子への応用" 第76回応用物理学会秋季学術講演会, 朱鷺メッセ, 新潟市 (新潟県) 9月13日 (2016).
- ④ **T. Sato** and Y. Shinohara, "TDDFT Response and Dispersion Energy Without Unoccupied Orbitals", CECAM Workshop on Density- and response density-based models for Intermolecular Interactions in Molecular Assemblies and in Solids, Nancy (France), 20th June (2016).
- ⑤ **T. Sato** and K. L. Ishikawa, "Implementation and applications of time-dependent multiconfiguration methods for laser-driven multielectron dynamics of atoms", International Conference on Ultrafast Phenomena, New Mexico (United States of America) 17th July (2015).
- ⑥ **佐藤健**, "多電子ダイナミクスのための時間依存多電子理論", 「第2回電子状態理論シンポジウム」, 早稲田大学, 新宿区 (東京都) 11月7日 (2015).
- ⑦ **佐藤健**, "多電子ダイナミクスのための時間依存多電子理論", 「非断熱量子力学とその周辺」, 東京大学, 文京区 (東京都), 9月20日 (2015).
- ⑧ **T. Sato** and K. L. Ishikawa, "Time-dependent multiconfiguration self-consistent-field methods for

multielectron dynamics in intense laser fields”, XXIX International Conference on Photonic, Electronic, and Atomic Collisions (ICPEAC), Toledo (Spain), 22th June (2015).

- ⑨ **佐藤健**, 石川顕一, “高強度レーザー場中の多電子ダイナミクス:時間依存多電子波動関数理論の開発”, 「凝縮系の理論化学」, 琉球大学, 西原町(沖縄県), 3月9日(2015).
- ⑩ **T. Sato** and K. L. Ishikawa, “Implementation of TD-MCSCF methods for atoms”, International workshop on theory for attosecond quantum dynamics (IWTAQD-12), 電気通信大学, 調布市(東京都), 2月3日(2015).
- ⑪ **佐藤健**, 石川顕一, “強レーザー場中の多電子ダイナミクス:TD-CASSCF法の実装. I. 原子”, 第75回応用物理学会秋季学術講演会, 広島大学, 東広島市(広島県)9月22日(2014).
- ⑫ **佐藤健**, 石川顕一, “強レーザー場中の多電子ダイナミクス:原子のための実装”, 第75回応用物理学会秋季学術講演会, 北海道大学, 札幌市(北海道)9月17日(2014).
- ⑬ **T. Sato** and K. L. Ishikawa, “Time-Dependent Multiconfiguration Methods for Multielectron Dynamics in Intense Laser Fields”, International Conference on Ultrafast Phenomena, 沖縄コンベンションセンター, 宜野湾市(沖縄県)7月7日(2014).
- ⑭ **T. Sato**, “Two electron dynamics in intense laser fields”, International workshop on theory for attosecond quantum dynamics (IWTAQD) 11, 電気通信大学, 調布市(東京都), 6月30日(2014).
- ⑮ **T. Sato**, “Time dependent wavefunction theories of atoms and molecules in intense laser fields”, ViCoM Young Researchers Meeting, Vienna (Austria), 23th April (2014).

[図書] (計 0 件)

[産業財産権]

○出願状況 (計 0 件)

## 6. 研究組織

### (1) 研究代表者

佐藤 健 (Sato, Takeshi)  
東京大学・大学院工学系研究科・特任講師  
研究者番号: 30507091

### (2) 研究分担者

なし ( )

研究者番号:

### (3) 連携研究者

なし ( )

研究者番号:

### (4) 研究協力者

なし ( )