

科学研究費助成事業 研究成果報告書

平成 29 年 5 月 22 日現在

機関番号：12601

研究種目：挑戦的萌芽研究

研究期間：2014～2016

課題番号：26600111

研究課題名（和文）ボーム経路を用いた強レーザー場中の多電子ダイナミクスの解析

研究課題名（英文）Analysis of multielectron dynamics in intense laser fields

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） 3,000,000円

研究成果の概要（和文）：超短パルス高強度レーザーに照射された分子中における電子のダイナミクスを、第一原理シミュレーションの結果を解析することで明らかにした。水素分子のEnhanced Ionizationをボーム経路を用いて解析した結果、従来考えられていたのとは違って、低いポテンシャル井戸からイオン化するプロセスも重要であることを明らかにした。また、多配置時間依存ハートリーフォック法を用いて、3電子以上の分子、3原子以上の分子、非直線分子からの高次高調波発生を、世界で初めてシミュレーションすることに成功した。また、アト秒パルスで照射された分子中における、電荷マイグレーションのシミュレーションに成功した。

研究成果の概要（英文）：We have analyzed multielectron dynamics in molecules under intense laser fields calculated with ab initio methods. By analyzing the enhanced ionization of hydrogen molecules using Bohmian trajectories, we have revealed, contrary to what was previously believed, that the ejection from the up-field and down-field cores are comparable. Moreover, we have numerically implemented multiconfiguration time-dependent Hartree-Fock method for molecules, we have successfully simulated high-harmonic generation from a water molecule and charge migration in LiH and water molecules, for the first time.

研究分野：光量子科学

キーワード：アト秒科学 量子エレクトロニクス 強光子場科学 高強度場物理 第一原理計算

1. 研究開始当初の背景

申請者らは、高次高調波発生やトンネルイオン化など、高強度 ($>10^{14}$ W/cm²) フェムト秒レーザー場中の原子・分子ダイナミクスを理論的に研究し、多くの成果をあげている。最高占有軌道からのイオン化が支配的であるという物理的洞察により、有効1電子近似の時間依存シュレーディンガー方程式 (TDSE) を解き、その予言力の高さは実験で実証されてきた。また、He 原子の厳密な TDSE を解き、そのイオン化に見られる特異なアト秒電子相関現象を予言している。さらに、多電子ダイナミクスを現実的な計算時間で高精度に計算する新手法 (時間依存完全活性空間自己無撞着場法、TD-CASSCF 法[1]) の開発にも成功している。

2. 研究の目的

波動関数の時間発展から、電子がどのように放出されるかなど、高強度場現象のメカニズムを明らかにすることは、特に多電子の場合容易ではない。本研究は、波動関数と等価な情報を持つ粒子経路 (ボーム経路) や、実時間実空間第一原理シミュレーションを利用するなどして、強レーザー場中の分子の多電子ダイナミクスを明らかにする。

3. 研究の方法

(1) ボーム経路解析は、波動関数から得られる流速を用いた解析であり、蛍光ビーズによる流体解析と同じ要領で電子の軌跡を求めることができる。また、ボーム経路は波動関数から求められるためボーム経路の集合は波動関数と等価な情報を持つ。なお、本研究は量子力学の解釈に関するものではなく、ボーム粒子は、波動関数の動きを視覚化するマーカー粒子として使っていることを強調しておく。

(2) 強レーザー場中の電子ダイナミクスの第一原理計算の一つである多配置時間依存ハートリーフォック (MCTDHF) 法を、実在の3次元分子に対して数値計算コードとして実装する。任意の分子を取り扱えるように直交座標を採用し、原子核近傍で必要な高解像度とイオン化を取り扱うのに必要な広い空間領域を両立させるため、図1のような、多解像度直交座標グリッドを用いる。

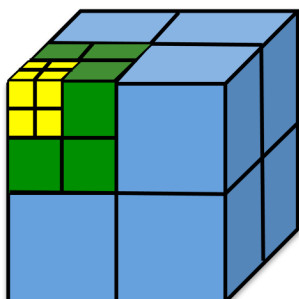


図1 多解像度直交座標グリッド

4. 研究成果

(1) 我々は2電子1次元系の TDSE の厳密計算を開発し水素分子の Enhanced Ionization (二原子分子のイオン化率が分子間距離に依存し、平衡核間距離より長い距離でピークを持つ現象) のボーム経路解析を行った。

図2(a)の青線はイオン化率の和である。平衡核間距離 ($R=2$) よりも長い距離でピークを持っていることがわかる。従来、Enhanced Ionization ではエネルギーの高いポテンシャル井戸 (up-field core) に局在した電子が、内部バリアを超えてイオン化するのが主と考えられていたが (図2(b) 赤矢印)、本研究によって低いポテンシャル井戸 (down-field core) からイオン化するプロセスも重要な (図2(c) 赤矢印) ことが明らかになった。さらに、双方のプロセスでイオン化率がピークを持つこと (上図: 黒線、赤線) が明らかになった。この研究に関する学会発表によって講演奨励賞を受賞した (2014年3月応用物理学会)

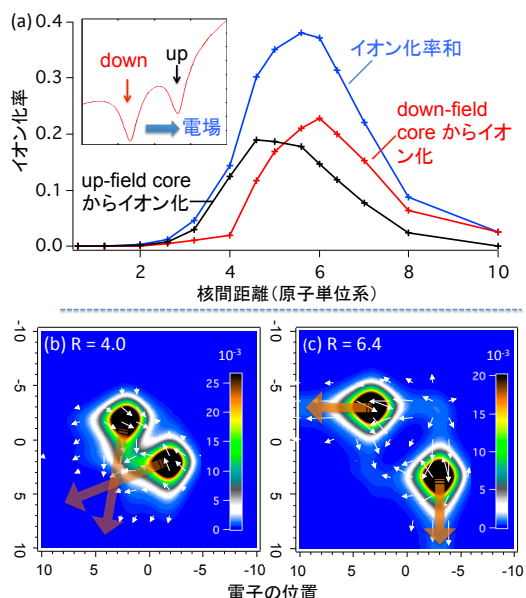


図2 (a) 原子核間距離に対するイオン化率 (青:イオン化率の和、黒:up-field core のイオン化、赤:down-field core からのイオン化)。図1 (b, c) 電子がイオン化する際の電子密度と流束。電場によって電子は負の方向に力を受けている。

ボーム経路には、古典的粒子が空間中をたどる経路とは異なる性質があることも分かった。まず、特定の電子の異なる経路同士は決して交わることがない。また、異なる電子の経路同士も決して交わることがない。ボーム経路を使って、シミュレーション結果を解析する上では、これらの性質にも留意することが重要であることが分かった。

(2) MCTDHF 法を、実在の3次元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、その結果、たとえば、世界で初めて、水分子からの高次高調波発生をシミュレーションすることに成功した。

図3に、得られた高調波スペクトルを示す。レーザーの変更と分子軸がなす角度によってスペクトルに変化が見られることが分かる。3電子以上の分子、3原子以上の分子、非直線分子についてこのようなシミュレーションに成功したのは、いずれも世界初の快挙である。

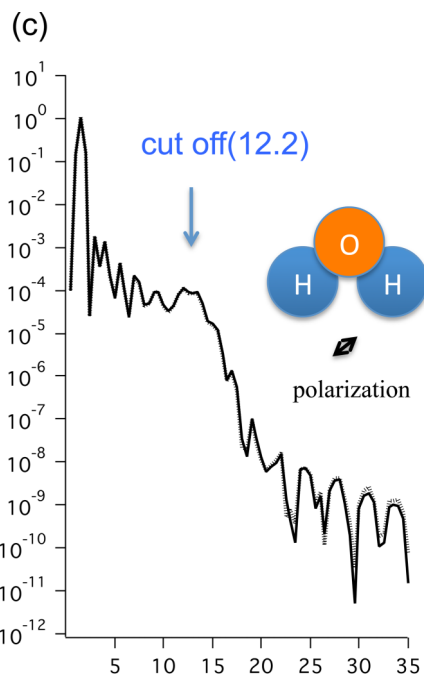
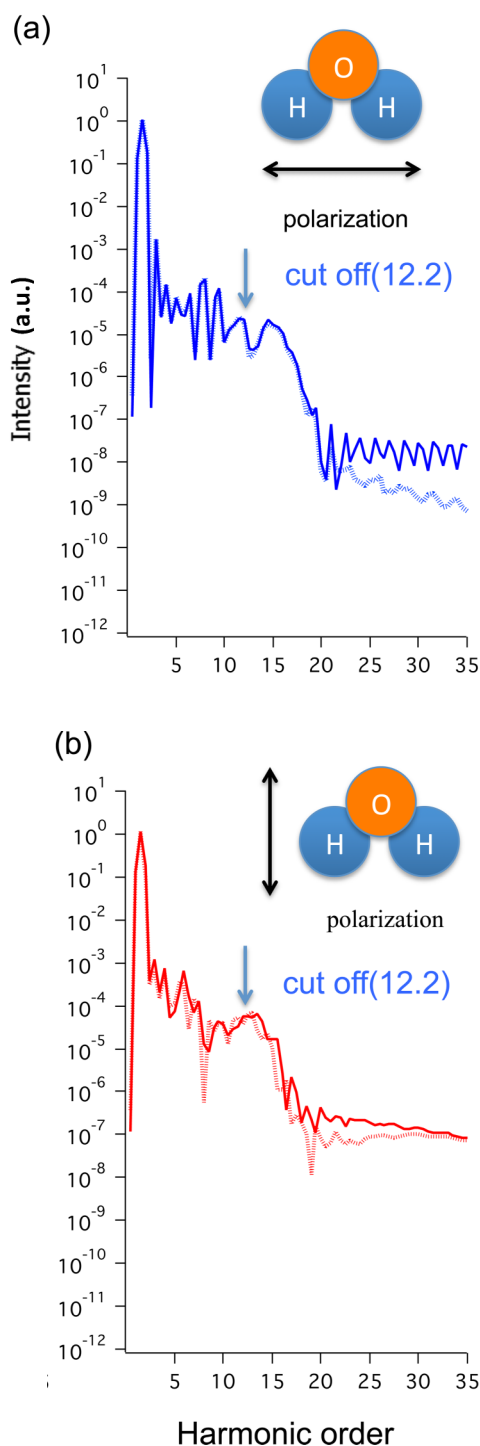


図3 MCTDHF法で計算した水分子からの高次高調波スペクトル。波長400nm、ピーク強度 $8 \times 10^{14} \text{ W/cm}^2$ 。

さらに、アト秒パルスで照射された分子中における、電荷マイグレーションのシミュレーションを行った。予備的な結果ではあるものの、LiH分子、水分子等において、電荷マイグレーションの第一原理シミュレーションに、世界で初めて成功した。また、シミュレーション結果を、中性分子、1価の分子、2価の分子…等、実験と比較する上で便利なデータセットに分類して出力することにも成功した。シミュレーション結果からは、分子軸とアト秒パルスの偏光がなす角度によって、また、分子の価数によって、電荷マイグレーションの様子が異なることを、はっきりと見出すことができた。

<引用文献>

[1] T. Sato and K. L. Ishikawa, *Phys. Rev. A* **88**, 023402 (2013).

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 9 件)

[1] Iliya Tikhomirov, Takeshi Sato, and Kenichi L. Ishikawa, High-order harmonic generation enhanced by dynamical electron correlation *Phys. Rev. Lett.* **118**, 203202-1~5 (2017) 査読有
DOI: 10.1103/PhysRevLett.118.203202

[2] Takuya Ikemachi, Yasushi Shinohara, Takeshi Sato, Junji Yumoto, Makoto Kuwata-Gonokami, and Kenichi L.

Ishikawa, Trajectory analysis of high-order harmonic generation from periodic crystals, Phys. Rev. A95, 043416-1~8 (19 April 2017) 査読有 DOI:10.1103/PhysRevA.95.043416

[3]Fabian Lackner, Iva Březinová, Takeshi Sato, Kenichi L. Ishikawa, and Joachim Burgdörfer, High-harmonic spectra from time-dependent two-particle reduced-density-matrix theory, Phys. Rev. A 95, 033414-1~13 (2017) 査読有 DOI: 10.1103/PhysRevA.95.033414

[4]T. Sato, K. L. Ishikawa, I. Březinová, F. Lackner, S. Nagele, and J. Burgdörfer, Time-dependent complete-active-space self-consistent-field method for atoms: Application to high-order harmonic generation, Phys. Rev. A **94**, 023405-1~14 (2016) 査読有 DOI: 10.1103/PhysRevA.94.023405

[5] R. Sawada, T. Sato, and K. L. Ishikawa, Implementation of the multiconfiguration time-dependent Hartree-Fock method for general molecules on a multi-resolution Cartesian grid, Phys. Rev. A **93**, 023434-1~7 (2016) 査読有 DOI: PhysRevA.93.023434

[6] K. L. Ishikawa and T. Sato, A Review on Ab Initio Approaches for Multielectron Dynamics, IEEE J. Sel. Topics Quantum Electron **21**, 8700916-1~16 (2015) 査読有 DOI: 10.1109/JSTQE.2015.2438827

[7] 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) 査読有 DOI : 10.1103/PhysRevA.91.023417

[8]R. Sawada, T. Sato, and K. L. Ishikawa, Analysis of strong-field enhanced ionization of molecules using Bohmian trajectories, Phys. Rev. A **90**, 023404-1~8 (2014) 査読有 DOI: 10.1103/PhysRevA.90.023404

[9]T. Sato and K. L. Ishikawa, The structure of approximate two electron wavefunction in intense laser driven ionization dynamics, J. Phys. B, **47**, 204031-1~12 (2014) 査読有 DOI: 10.1088/0953-4075/47/20/204031

[学会発表] (計 23 件)

[1]Kenichi Ishikawa, "Strong-field phenomena from the first principles", The 8th Asian Workshop on Generation and Application of Coherent XUV and X-ray Radiation, National Tsing Hua University, Taiwan, 2017/3/27-29 (招待講演)

[2]Takeshi Sato, "Time-dependent ab initio wavefunction methods for multielectron dynamics of atoms and molecules in intense laser fields", Okazaki conference: International Symposium on Ultrafast Dynamics in Molecular and Material Sciences, Okazaki Conference Center, Higashi-Okazaki, Aichi, Japan 2017/3/6-8 (招待講演)

[3]Takeshi Sato, "Development and applications of time-dependent ab initio wavefunction methods for intense-laser driven multielectron dynamics of atoms and molecules", 3rd China-Japan-Korea Workshop on Theoretical and Computational Chemistry (CJK-WTCC-III), KAIST, Daejeon, Korea, 2017/1/10-13 (招待講演)

[4]石川顕一, 第一原理計算で探る高強度レーザー場と原子・分子の相互作用、原子衝突学会第41回年会、富山大学、富山、2016/12/10-11 (招待講演)

[5]Kenichi L. Ishikawa, "Strong-Field Phenomena from the First Principles", ASILS-9, The Reed Hotel, Vietnam, 2016/11/6-10 (招待講演)

[6]K. L. Ishikawa, "Time-Dependent Multiconfiguration Self-Consistent-Field(TD-MCSCF) Approaches for Multielectron Dynamics in Intense Laser Fields", ITAMP Workshop, Cambridge, USA, 2016/10/10-14 (招待講演)

[7]石川顕一, 「第一原理強光子場物理」、第6会光科学異分野横断萌芽研究会、山喜旅館、静岡 2016/8/17-19 (招待講演)

[8]R. Sawada, T. Sato, and K. L. Ishikawa, "First-principles Simulations of General Molecules in Intense Laser Fields", International Conference on Ultrafast Phenomena 2016, Santa Fe, USA, 2016/7/17-22

[9]T. Sato and K. Ishikawa, "Implementation and

applications of time-dependent multiconfiguration methods for laser-driven multielectron dynamics of atoms, International Conference on Ultrafast Phenomena 2016, Santa Fe, USA, 2016/7/17-22

[10] K. L. Ishikawa, “First-principles simulations of multielectron dynamics in intense laser field”, The 7th Shanghai-Tokyo Advanced Research Symposium on Ultrafast Intense Laser Science (STAR7), Shonan Village Center, Kanagawa, Japan, 2016/5/20-22

[11] 岩津広大、佐藤健、石川 顕一、「アト秒パルスによるネオン原子のイオン化の第一原理シミュレーション」、第 63 回応用物理学学会春季学術講演会、東京工業大学大岡山キャンパス、東京都、2016/3/19-22

[12] 澤田亮人、佐藤健、石川 顕一「非対称な系への Multi-resolution MCTDHF の適用 2」第 63 回応用物理学学会春季学術講演会、東京工業大学大岡山キャンパス、東京都 2016/3/19-22

[13] 織茂悠貴、佐藤健、澤田亮人、石川 顕一「外部複素スケーリングを用いたコンパクトな強レーザー場第一原理計算」第 63 回応用物理学学会春季学術講演会、東京工業大学大岡山キャンパス、東京都 2016/3/19-22

[14] K. L. Ishikawa, “ Multielectron Dynamics in Intense Laser Fields ” , Computational Chemistry Symposium of ICCMSE 2016, Metropolitan Hotel, Athens, Greece, 2016/3/17-20 (招待講演)

[15] 澤田亮人、佐藤健、石川 顕一「Multi resolution MCTDHF による高強度レーザーパルス下での分子計算」(レーザー学会学術講演会第 36 回年次大会、名城大学天白キャンパス、愛知県名古屋市 2016/1/11

[16] 織茂悠貴、佐藤健、澤田亮人、石川 顕一「強光子場第一原理シミュレーションへの外部複素スケーリングの実装」レーザー学会学術講演会第 36 回年次大会、名城大学天白キャンパス、愛知県名古屋市 2016/1/11

[17] 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」電気学会 光量子デバイス研究会、富山県氷見市 2016/1/24
澤田亮人、佐藤健、石川 顕一、「非対称な系への Multi-resolution MCTDHF の適用」第 76 回応用物理学学会秋季学術講演会、名古屋国際会議場、愛知県名古屋市、2015/9/13

[18] T. Sato and K. 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 2015), Toledo, Spain, 2015/7/22-28

[19] Ryohto Sawada, Takeshi Sato, Kenichi Ishikawa, “Bohmian-trajectory Analysis of Enhanced Ionization of Molecules in Intense Laser Fields” , CLEO-Europe 2015, New Munich Trade Fair Centre, Munich, Germany, 2015/6/21-25

[20] 澤田亮人、佐藤健、石川 顕一、「Multi Resolution TDSE/MCTDHF の開発」、第 62 回応用物理学学会春季学術講演会、東海大学、神奈川県、2015/3/11-3/14

[21] 澤田亮人、佐藤健、石川 顕一、「ボーム経路解析による高強度場現象の計算シミュレーション」第 75 回応用物理学学会秋季学術講演会、北海道大学、北海道、2014/9/17-9/20 (招待講演)

[22] 澤田亮人、佐藤健、石川 顕一、「Enhanced Ionization のボーム経路解析」、日本物理学会 2014 年秋季大会、中央大学、愛知県、2014/9/7-10

[23] R. Sawada, T. Sato, and K. L. Ishikawa, “ Bohmian-trajectory analysis of enhanced ionization in intense laser fields” , International workshop on theory for attosecond quantum dynamics, 電気通信大学、東京都、2014/6/30 (招待講演)

[図書] (計 1 件)
大森賢治、石川 顕一、石井順久、板谷治郎、香月浩之、森下亨、渡部俊太郎、「アト秒科学～1 京分の 1 秒スケールの超高速現象を光で観測・制御する～」、化学同人、200 ページ (2015 年)

[その他]
ホームページ等
<http://www.atto.t.u-tokyo.ac.jp>

6. 研究組織

(1) 研究代表者
石川 顕一 (ISHIKAWA, Kenichi)
東京大学・大学院工学系研究科・教授
研究者番号：70344025

(3) 連携研究者
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