

課題名 (タイトル) :

## 理論量子化学とアト秒物理学の融合

利用者氏名 : 金井恒人  
所属 : 和光研究所 基幹研究所  
先端光科学研究領域エクストリームフォトンクス研究グループ  
高強度軟X線アト秒パルス研究チーム

## 1. 本課題の研究の背景、目的、関係するプロジェクトとの関係

高次高調波発生は、極端紫外・軟 X 線領域における世界最短フラッシュ (アト秒パルス) を得る手法をして確立した地位を得た。申請者らは、このパルスを用い、極端紫外・軟 X 線領域の強光子場中における物質の新しい超高速現象を次々と実験的に発見しており (参考文献 1-5)、従来の静的な取り扱いを超えた新しい理論的な枠組みを構築することが必要になってきている。

本研究では、理研のスーパーコンピュータ上で実行可能な確立された分子軌道法とアト秒ダイナミクスの計算手法を融合し、高次高調波発生を用いた光物性研究の理論的な枠組みの構築を目的とする。今回申請する演算時間内では、小さな分子中における高次高調波の非線形周波数上方変換過程を系統的に計算する。さらに得られた知見を実験結果と比較しながら、物理機構の抽出や、新たな実験の指針を得ることを目指す。

## 2. 具体的な利用内容、計算方法

高次高調波と物質の相互作用には、一般にその物質の高励起状態が本質的な寄与をする。2原子分子などの小さな分子に関しては、SAC-CI 法、EOM-CCSD 法等を用いて高励起状態を高精度に計算し、それらの状態と連続状態を基底とする空間上における非線形ダイナミクスに注目することで、実験的に観測された原子・分子、そして電子のアト秒ダイナミクスを第一原理的に理解する。タンパク質等の多原子分子や凝縮系等の複雑な系に関しては TD-DFT 法等のモデル計算を行い、アト秒パルスとの相互作用を予測または再現することを目指す。

## 3. 結果

本年は、主に極端紫外・軟 X 線領域の強光子場

中における窒素分子のダイナミクスの計算を主に行った。具体的には、高次高調波の非線形周波数上方変換過程における量子経路を特定することが出来た。この現象をまず、小さな分子に対して系統的に計算・予測する。さらに得られた知見を実験結果と比較しながら、物理機構の抽出や、新たな実験の指針を得ることを目指す。

## 4. まとめ

分子軌道法とアト秒ダイナミクスの計算手法を融合する試みにより、高次高調波発生を用いた光物性研究の理論的な枠組みの構築が原理的に可能であることがわかった。実験的に得られた知見とを実験結果と比較し、物理機構の抽出をすることが出来た。

## 5. 今後の計画・展望

物質の高励起状態は、長距離相関を取り入れた密度関数法や、SAC-CI 法それと原理的に等価である EOM-CCSD 法により、高精度に予言出来るようになってきている。したがって、1光子の吸収・発光スペクトルは理論的に予測することができるが、アト秒物理の主要な課題である2光子以上の非線形過程においてはまだ実装されておらず、また、連続状態の取り扱いも不十分である。申請者が行う、アト秒物理の実験と、本研究により検討される新たな理論的枠組は、理論量子化学とその商用プログラムを発展させる動機となると考えられる。

また、本研究により種々の実験結果を簡単な理論に還元できれば、逆に興味深い現象を理論的に予測し、アト秒物理学における実験の指針を得ることが出来ると期待される。

## 6. RICC の継続利用を希望の場合は、これまで利用した状況 (どの程度研究が進んだか、研究においてどこまで計算出来て、何が出来ていないか) や、

## 平成 22 年度 RICC 利用報告書

継続して利用する際に行う具体的な内容

窒素分子における高次高調波の非線形周波数上方変換過程における量子経路を特定することが出来た。今後は、この現象をまず、小さな分子に対して系統的に計算・予測する。さらに得られた知見を実験結果と比較しながら、物理機構の抽出や、新たな実験の指針を得ることを目指す。

### 7. 一般利用で演算時間を使い切れなかった理由

本課題の受理後、申請者は理化学研究所から英国 Imperial College London に訪問研究員として長期滞在することが急遽決まり、また、Imperial College London に滞在中の本年 2 月に理化学研究所・緑川レーザー物理工学研究室から、同研究所・東原子分子物理研究室に研究員として異動することが決まった。年度内に 2 度も主たる研究場所が変わりそれに付随する雑務が多く発生したため、当初予定していた演算時間を使い切ることは難しかった。

平成 22 年度 RICC 利用研究成果リスト

【論文、学会報告・雑誌などの論文発表】

[1] (in Japanese) Tsuneto Kanai, Eiji J. Takahashi, Yasuo Nabekawa, and Katsumi Midorikawa, "High harmonic generation in mixed gases and its application to attosecond physics," *Kogaku*, **40**, accepted.

[2] Tsuneto Kanai, Eiji J. Takahashi, Yasuo Nabekawa, and Katsumi Midorikawa, "Selection Rules of the Field-Induced Recolliding Electron Spectroscopy," *Phys. Rev. Lett.*, submitted.

[3] Tsuneto Kanai, Eiji J. Takahashi, Yasuo Nabekawa, and Katsumi Midorikawa, "Heterodyne Interferometry Using High-Order Harmonic Generation in Mixed Gases," *Progress in Ultrafast Intense Laser Science* **5**, 65 (2010).

上記の雑誌において紙面スペースが強く制限されており、RICC システムを用いた記載をすることが難しかった。

【国際会議などの予稿集、proceeding】

[4] Tsuneto Kanai, Akira Suda, and Katsumi Midorikawa, "Observation of Nonlinear Wavelength Conversion Processes of High Order Harmonics," in *Proceedings of The Conference on Lasers and Electro-Optics and The Quantum Electronics and Laser Science Conference*, San Jose, 2010.

国際会議の予稿において紙面スペースが強く制限されており、RICC システムを用いた記載をすることが難しかった。

【国際会議、学会などでの口頭発表】

[5] (invited) Tsuneto Kanai, Akira Suda, and Katsumi Midorikawa, "Nonlinear wavelength conversion of high order harmonics," *International Conference on Coherent and Nonlinear Optics (ICONO 2010)/International Conference on Lasers, Applications, and Technologies (LAT 2010)*, Kazan, Russia, August 2010.

[6] Tsuneto Kanai, Akira Suda, and Katsumi Midorikawa, "Observation of Nonlinear Wavelength Conversion Processes of High Order Harmonics," *the Conference on Lasers and Electro-Optics and The Quantum Electronics and Laser Science Conference*, San Jose, 2010.

[7] 金井 恒人, 上場 康弘, ボーマン サムエル, 金井 拓也, 吉田 広志, 山口 滋, 鍋川 康夫, 須田 亮, 緑川 克美, 「高エネルギー孤立アト秒パルス発生を目指した搬送波包絡線位相安定化, マルチミリジュール, 数サイクルパルスによる高次高調波発生」 レーザー学会学術講演会第 31 回年次大会(調布市: 2011 年 1 月).

[8] 金井 恒人, 須田 亮, 緑川 克美, 「光放出過程と光吸収過程の双対性と高次高調波の周波数上方変換」 第 57 回応用物理学関係連合講演会(平塚市: 2010 年 3 月).

[9] 金井 恒人, 上場 康弘, ボーマン サムエル, 金井 拓也, 山口 滋, 鍋川 康夫, 須田 亮, 緑川 克美, 「搬送波包絡線位相が安定化されたマルチミリジュール・数サイクルパルスを用いた高次高調波発生」 第 71 回応用物理学学会学術講演会(長崎市: 2010 年 9 月).