

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 東原子分子物理研究室

## 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 線及び硬 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。また、同波長域において、理研播磨の自由電子レーザーも利用可能なフェーズとなってきた。申請者らは、このパルスを用い、極端紫外・軟 X 線及び硬 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、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。

## 2. 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近年著しい発展を見せる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超高速物理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。

## 3. 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。

## 4. 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キセノン原子・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及び、共鳴励起多光子イオン化過程における量子経路を特定することが出来た。また、本手法をより大きな物理系である蛍光タンパク分子への適用を試みた。さらに自由電子レーザーを用いた超高速光電子分光実験の結果を予測、及び再現を試みた。

## 5. 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有用であることがわかってきた。実験的に得られた知見を実験結果と比較し、いくつかの物理機構の抽出をすることが出来た。

## 6. 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様になってきている。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出来るが、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。

## 7. 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、

継続して利用する際に行う具体的な内容

キセノン原子及び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及び共鳴励起多光子イオン化過程における量子経路を特定することが出来た。今後は、この現象を理研播磨において申請者が実験を行なっている自由電子レーザーを用いた光電子イメージング実験や、理研和光において建設中の多色アト秒パルス光源に対応する計算パラメータについて計算を行い、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。

8. 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、申請者は理研播磨における自由電子レーザーを用いた光電子イメージング実験をすることが急遽決まり、実験の準備に多くの時間が必要であった。本年度4月1日から異動した理研・東原子分子物理研究室において、多色アト秒パルス光源の立ち上げに携わっていた。東原子分子物理研究室は2年前に出来たばかりの研究室であり、レーザーの調達や改造等の立ち上げ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 23 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," *Jpn. J. Optics* **40**, 136 (2011).

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

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】

[3] Tsuneto Kanai *et al.*, "Generation of highly phase-matched isolated attosecond pulses using multi-mJ, carrier-envelope phase stabilized, few-cycle laser pulses," in *Proceedings of the 3rd International Conference on Attosecond Physics(ATTO3)*, Sapporo, Japan, Sep. 2011.

[4] Tsuneto Kanai *et al.*, "Development of high power infrared optical parametric amplification laser system seeded by self-difference frequency generation pulses," in *Proceedings of the 12th International Conference on Multiphoton Processes (ICOMP 2011)*, Sapporo, Japan, Sep. 2011.

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, "Direct generation of highly phase-matched isolated attosecond pulses with a multi-mJ, carrier-envelope phase stabilized, few-cycle laser," *Symposium on Attoscience and Ultrafast Quantum Control*, London, UK, Sep. 2011.

[6] (invited) Tsuneto Kanai and Toshiyuki Azuma, "Methods of attosecond physics and their possible applications to fundamental physics," *Workshop on Cold Antimatter Plasmas and Application to Fundamental Physics*, Matsue, Japan, Nov. 2011.

[7] Tsuneto Kanai *et al.*, "Observation of Nonlinear Wavelength Conversion Processes of High Order Harmonics," *2011 Conference on Lasers and Electro-Optics Europe and 12th European Quantum Electronics Conference (CLEO EUROPE/EQEC)*, Munich, Germany, May 2011.

[8] (invited) Tsuneto Kanai *et al.*, "Development of CEP-stabilized high power CPA/OPA lasers and generation of highly phase-matched isolated attosecond pulses," *Attosecond Physics seminar at Laboratoire CELIA, Universite Bordeaux 1, Bordeaux, France*, May 2011.

[9] 金井 恒人 他, 「自己差周波光をシード光とした赤外領域高エネルギー光パラメトリック増幅レーザーシステムの開発」第 72 回応用物理学会学術講演会 (山形市: 2011 年 9 月).

[10] 金井 恒人 他, 「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).

[11] 金井 恒人 他, 「搬送波包絡線位相安定化赤外領域高エネルギー光パラメトリック増幅レーザーシステムの開発」日本物理学会 2011 年秋季大会 (富山市: 2011 年 9 月).

[12] 金井 恒人 他, 「Development of CEP-stabilized high power CPA/OPA lasers and generation of highly phase-matched, high energy isolated attosecond pulses」原子衝突研究協会第 36 回年会 (新潟市: 2011 年 8 月).