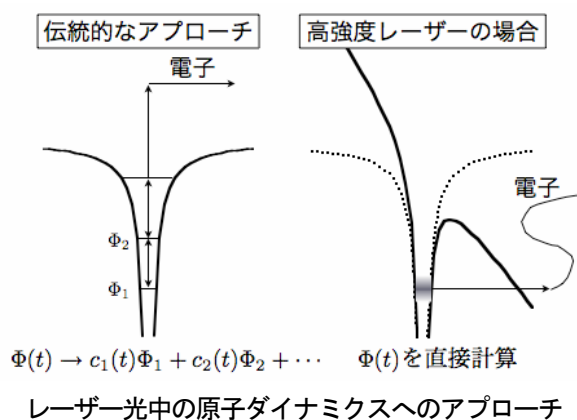


ディビジョン番号	1
ディビジョン名	物理化学

大項目	1. 分子分光学および分子集合体の構造
中項目	1-5. 強光子場分子科学
小項目	1-5-7. 高強度短波長レーザー光中の原子ダイナミクス理論

概要（200字以内）

高強度レーザーパルス中の原子・分子の振る舞いを理論的に記述するには、量子力学にもとづいた時間依存のアプローチが最も適している。時間依存シュレーディンガー方程式の直接数値シミュレーションは、1電子系に加えヘリウムやリチウム、水素分子についても可能になってきている。より多くの電子を含む系を取り扱うため、多配置時間依存ハートリーフォック法やボーム軌跡を用いるアプローチなど、新しい試みも始まっている。



現状と最前線

フェムト秒レーザー技術の進歩や高次高調波発生（レーザー光がその整数倍の周波数の光に変換される現象）、あるいは自由電子レーザーに代表される新しい光源の出現によって、近赤外から軟エックス線にわたる波長で、超短パルス性と高強度をかねそなえた光パルスが得られるようになってきている。フェムト(10^{-15})秒からアト秒(10^{-18})秒領域の超短パルスを用いて、原子や分子の中の電子の運動を直接観測することもできるとの期待が高まっている。

このような新しい実験的可能性に対応して、理論も急速な進展を遂げている。高強度レーザーパルス中では、外場が電子に及ぼす力が原子核の束縛力と同程度以上に強くなるため、いくつかの準位（外場のない条件で求めた定常状態）の間を光子を吸収・放出しながら遷移するという伝統的な見方は破綻し、シュレーディンガー方程式

$$i \frac{\partial \Phi(\mathbf{r}_1, \mathbf{r}_2, \dots, \mathbf{r}_Z, t)}{\partial t} = \sum_{i=1}^Z \left(-\frac{1}{2} \nabla_i^2 - \frac{Z}{r_i} + \sum_{j=i+1}^Z \frac{1}{|\mathbf{r}_i - \mathbf{r}_j|} + \mathbf{r}_i \cdot \mathbf{E}(t) \right) \Phi(\mathbf{r}_1, \mathbf{r}_2, \dots, \mathbf{r}_Z, t)$$

にもとづいた時間依存のアプローチによってのみ、原子・分子の挙動を適切に記述できる。

時間依存シュレーディンガー方程式(TDSE)を直接数値シミュレーションするという膨大な計算時間とメモリーを必要とするアプローチは、かつては夢物語にすぎなかったが、コンピュータ技術の進歩にともない1990年代から試みられるようになり、現在では3次元の1電子

系（水素原子および最外殻電子のみを考慮する近似）については広く応用され、超閾電離（必要以上の光子を吸収してイオン化する過程）や高次高調波発生などの高強度レーザーに特有の現象の解明に貢献してきている。

2つ以上の電子を含む原子・分子では時間依存シュレーディンガー方程式に電子間のクーロン相互作用の項 $1/|r_i-r_j|$ が含まれ、これを厳密に取り扱うため計算量が格段に増加するが、ヘリウム原子については、高強度超短パルスレーザーや軟エックス線パルスとの相互作用を計算できるようになり、多光子多重電離において電子同士の相互作用が果たす役割の解明につながり、また高強度超短パルスの領域に特有な新しい現象も次々に予言されている。最近では、大規模並列計算によって、限られた制約条件下ながらリチウム原子・水素分子といったより複雑な系のダイナミクスも取り扱えるようになりつつある。

このような厳密なアプローチをさらに多くの電子を含む原子・分子に応用するのは非現実的である。より少ない計算コストでじゅうぶん正確な結果を提供できる手法として、最近、多配置時間依存ハートリーフォック (MCTDHF) 法が提案されている。これは多電子波動関数 $\Phi(r_1, r_2, \dots)$ を1電子波動関数の積 $\phi(r_1) \phi(r_2) \dots$ の和として近似する手法で、レーザー場中の6電子系のイオン化収量と電子スペクトルの計算が報告されており、今後の発展が期待される。また、多粒子量子輸送計算にボーム軌跡を用いる試みも始まっており、高強度レーザーパルスと原子・分子の相互作用に応用できる可能性を秘めている。

高強度超短パルス光中の原子・分子ダイナミクスの理論的記述は、本質的に時間依存である上に、複数の電子と多数の光子を含む超多体問題であるために非常にチャレンジングであるが、レーザーと短波長光源技術の進歩にともない、今後その重要性は高まるばかりである。

参考文献

- ・ Thomas Becker and Henry Kapteyn, Strong Field Laser Physics, Springer (2007).

将来予測と方向性

- ・ 5年後までに解決・実現が望まれる課題
 - H_3^+ への時間依存シュレーディンガー方程式の拡張
 - エックス線自由電子レーザーが作り出す超高強度の軟エックス線パルス中の原子・分子ダイナミクスへのアプローチ
- ・ 10年後までに解決・実現が望まれる課題
 - レーザー場中での化学反応（複数の分子から化合物が生成される反応）の理論計算
 - 電磁場を量子化して定式化した高強度光パルスと原子・分子の相互作用の理論計算

キーワード

アト秒科学、超高速現象、高強度場現象、時間依存シュレーディンガー方程式

(執筆者： 石川 顕一)