

## 審査の結果の要旨

氏名 ワーユータマ イمام セティアワン

高強度のレーザーパルスを原子や分子に照射すると、その数十倍の振動数を持つ光に変換される高次高調波発生が起こる。高次高調波は、物質中の電子の動きを観測・制御する技術や超高速分光技術への応用が始まっているが、その範囲を広げるために発生効率の向上が望まれている。これに関連して、最近、遷移金属プラズマを媒質として用いると特定の次数が強く出る共鳴高調波の発生が報告されている。本研究は、第一原理計算によって遷移金属元素から発生する共鳴高調波の実験結果を再現し、その機構を明らかにすることを目的としている。本論文は6章からなる。

第1章は序論である。本研究が対象とする過程である高次高調波発生の概要を述べた後、レーザーアブレーションによって生成した遷移金属プラズマルームを標的媒質とした際に観測される共鳴高調波に関する実験的知見をまとめている。これらをもとに、本研究の目的を述べている。

第2章では、共鳴高調波の機構に関する既往の理論モデルを調査している。既往研究は、複数の状態の重ねあわせからの高次高調波発生を考えるものと、バリアを持つモデルポテンシャルを仮定するものとは分類できる。これらのほとんどは有効一電子近似に基づく現象論を用いているため、定量的な議論や多電子効果についての議論ができないという問題点を指摘し、多電子系を第一原理的に取り扱うアプローチの必要性を述べている。

第3章は理論計算手法の説明である。本研究では、1電子関数であるスピン軌道から構成した様々な電子配置（スレーター行列式）の線形結合として全電子波動関数を表現する時間依存多配置自己無撞着場法を用いている。展開係数だけでなくスピン軌道も時間変化させることで、比較的少ない数のスピン軌道で高強度レーザー場中での励起やイオン化を高精度に追跡できる。特に、深い軌道に対応し常に2つの電子に占有されているコア軌道と様々な電子の詰め方を考慮するアクティブ軌道に分類することで、精度を犠牲にせず計算に必要な電子配置の数を大幅に減らせる時間依存完全活性空間自己無撞着場法と時間依存占有制限多重活性空間法を用いることが述べられている。

第4章では、高強度レーザーパルス中におけるMnおよびMn<sup>+</sup>のダイナミック

スをシミュレーションし、その結果について考察している。高次高調波スペクトルを計算したところ、実験で観測されるのと同じ光子エネルギー50 eV付近に、他の次数より2桁強度の高い共鳴高調波を再現することができている。遷移金属元素は内殻に不対電子を複数持つスピンの立った系であるため、時間依存密度汎関数理論等の既存の多電子理論では取り扱いが難しく、本研究で共鳴高調波が再現できたことはインパクトが大きい。

続いて、共鳴高調波の機構を明らかにするための解析をしている。共鳴高調波の位置がレーザーの波長や強度に依存しないことから原子に由来するものであることを確認し、 $3p$ 軌道を凍結して計算するとそれが消えることから $3p$ 電子が共鳴高調波に関与していることを明らかにしている。励起スペクトルを計算したところやはり50 eV付近に大きな共鳴があり、 $3p-3d$ 巨大共鳴として知られているものに対応していると考えられることから、これが共鳴高調波に関係していることが示唆された。そこで、高次高調波発生に対する個々の軌道間遷移の寄与や各軌道のポピュレーションを抽出する方法を開発し解析している。その結果、 $3p-3d$ 遷移の寄与が支配的であること、3つの磁気量子数の成分が干渉して強め合っていることが分かった。これによって、共鳴高調波の起源が $3p-3d$ 巨大共鳴であることを明確にしている。

第5章では、In, In<sup>+</sup>およびCr, Cr<sup>+</sup>からの共鳴高調波を調べている。In, In<sup>+</sup>について実験値(20 eV)に近い約23 eVに共鳴高調波を再現し、Cr, Cr<sup>+</sup>についても実験値(45 eV)とほぼ一致する約45 eVに共鳴高調波を再現している。前章で開発した軌道を凍結する解析や軌道間遷移の寄与の解析を適用して、共鳴高調波の起源がInとIn<sup>+</sup>では $4d-5p$ 遷移に、CrとCr<sup>+</sup>ではMnやMn<sup>+</sup>と同様に $3p-3d$ 遷移にあることを明らかにしている。また、これらの遷移後の上準位は2電子励起状態であることから既往の理論モデルが依拠している有効一電子近似による取り扱いは不十分で、本研究で用いた多電子第一原理計算手法が様々な原子で有効であることを示す結果である。

第6章は結論であり、本論文のまとめと展望が述べられている。

以上のように本論文では、高強度超短レーザーパルスによって照射された遷移金属元素、具体的にはMn, In, Crから高次高調波が発生する過程を第一原理シミュレーションし、実験で観測されている共鳴高調波をその光子エネルギーも含めて再現し、その機構を明らかにすることに成功している。これらの成果は、高次高調波極紫外コヒーレントパルス光源の高強度化への寄与が期待され、当該分野の進展に貢献するところが少なくない。

よって本論文は博士(工学)の学位請求論文として合格と認められる。