

キラル分子の二色円偏光高次高調波分光の第一原理シミュレーション

First principles simulation of bicircular high-harmonic spectroscopy of chiral molecules



東大院工¹, °福井 義光¹, 織茂 悠貴¹, 寺村 拓磨¹, 佐藤 健¹, 石川 顕一¹

UTokyo¹, °Yoshimitsu Fukui¹, Yuki Orimo¹, Takuma Teramura¹, Takeshi Sato¹, and Kenichi L.

Ishikawa¹

E-mail: yoshimitsuf1996@atto.t.u-tokyo.ac.jp

キラル分子の鏡像異性体は、他のキラル分子や円偏光などのキラルな対象と相互作用しない限り同じ物理的性質を持つ。鏡像異性体の効率的な同定・分離は生物学・医学・産業応用において極めて重要である。二色円偏光高次高調波分光 (BHHS: Bicircular High-Harmonic Spectroscopy) は、キラル分子識別の新しい方法の一つとして注目されている。BHHS では、円偏光の基本波 (周波数 ω) とその逆回転の第2次高調波 (周波数 2ω) の2色のレーザー光を用いる [1,2]。本研究では、様々なキラル分子に対する BHHS の鏡像異性体選択性を、電気双極子近似の範囲内および範囲外で数値的に解析した。

キラル分子 BHHS の第一原理シミュレーションでは、(i)分子内の多電子ダイナミクスを正確に記述すること、(ii)分子とレーザー偏光面の相対的な配向に対するシミュレーション結果の平均を取ること、が必要である。要件(i)を満足するため我々の研究室で開発されてきた TD-MCSCF 法[3]を採用し、(ii)のために、任意のレーザー偏光の計算が可能な一般曲線座標を用いた計算プログラムでシミュレーションを行い、計算結果の効率的な配向平均法を実装した。発表ではモデル系 (Figure 1) やアラニン分子について計算結果を報告する。

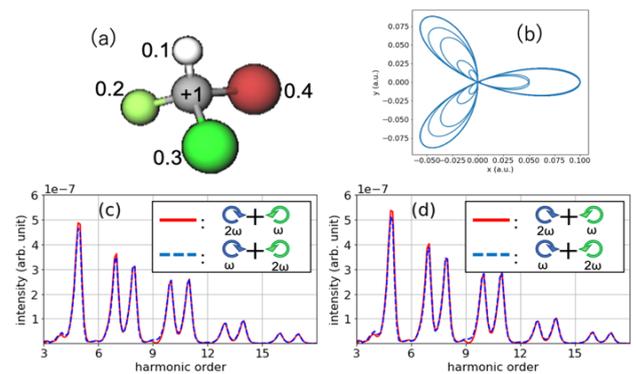


Figure 1. (a) A right-handed (R) isomer of a model one-electron chiral molecule with five potential centers having positive charges as depicted in the figure. (b) Counterrotating $\omega/2\omega$ bicircular laser field with ω corresponding to a wavelength of 911 nm, the peak intensity of 8.8×10^{13} W/cm², and the pulse duration (full width at half maximum) of 13.7 fs. (c) HHG spectrum from the R-isomer of the chiral molecule shown in (a) irradiated by the bicircular field of (b) obtained for counterclockwise ω /clockwise 2ω field (solid line) and clockwise ω /counterclockwise 2ω field (dashed line), computed within the electric dipole approximation. The orientation average is taken by rotating the polarization plane about the molecule fixed in the laboratory frame. (d) Same as panel (c) but with the orientation averaging performed by rotating the molecule in the laboratory frame with a fixed laser polarization. A good agreement between the red and blue lines both in panels (c) and (d) (as expected in case of missing magnetic interaction) demonstrates a reliability of the present simulations.

参考文献

- [1] Y. Harada, T. Sekikawa *et al*, Phys. Rev. A, 98, 021401 (2018)
- [2] D. Ayuso *et al*, Nat Photonics, 13, 866 (2019).
- [3] T. Sato and K. L. Ishikawa, Phys. Rev. A, 91, 023417 (2015)