

核の運動を考慮した多原子分子のための第一原理シミュレータの開発

Development of the first principles simulator for polyatomic molecules considering nuclear dynamics



東大院工, ^{○(DC)}織茂 悠貴, 佐藤 健, 石川 顕一

Univ. Tokyo, ^{○(DC)}Yuki Orimo¹, Takeshi Sato, Kenichi L. Ishikawa

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

高強度レーザーパルスやアト秒光パルスが開発されたことで、光と物質の相互作用を利用し、物質中の電子や核の超高速なダイナミクスを観測・制御するアト秒科学が急速に発展している。我々はこのようなレーザーによって誘起される多電子ダイナミクスの高精度な第一原理計算を実現するために多配置波動関数理論 TD-CASSCF (Time-Dependent Complete Active-space Self-Consistent Field) [1]や TD-ORMAS (Time-Dependent Occupation Restricted Multiple-Active-Space) [2]を開発し、原子・分子のための実装を行ってきた[3-5]。

これまで我々の計算対象のほとんどが核を空間に固定した原子や比較的小さい分子であったが、近年では多くの実験が多原子分子を扱い、分子ダイナミクスを制御する試みなどが始まっている。そこで本研究は波動関数理論に基づき多原子分子の電子と核のダイナミクスを扱える実時間第一原理計算の実現を目的とする。核の運動まで考慮した分子ダイナミクスの第一原理計算が困難である理由の一つに局所的に高い空間分解能を要求する核のクーロンポテンシャルの存在がある。先行研究では核近傍の波動関数のみを精度良く離散化し、遠方では粗いグリッドで離散化する多重解像度グリッドという手法が用いられたが、空間に固定された核に合わせて事前にグリッド生成を行うため、核が運動する系に適用することは難しい[3]。本研究ではそれをさらに拡張し、核の動きに追隨して動的なグリッド生成を行う。離散化には2倍ごとの解像度のウェーブレット基底を用いることで、ヒルベルト空間をそれぞれ異なる解像度のウェーブレットが基底となる直交空間に分解できるため、波動関数が高い運動量を持つ領域を正確に把握し、必要な精度が得られるまで動的に解像度を上げることができる。またウェーブレット基底はポアソン方程式の最も高速な数値解法の一つであるマルチグリッド法と相性がよく、多電子系でボトルネックとなる電子間相互作用の計算の高速化も期待される[6]。発表では実装の詳細と具体的な計算例を報告する。

[1] T. Sato and K. L. Ishikawa, *Phys. Rev. A* **88**, 023402 (2013) [2] T. Sato and K. L. Ishikawa, *Phys. Rev. A* **91**, 023417 (2015) [3] R. Sawada, T. Sato and K. L. Ishikawa, *Phys. Rev. A* **93** 023434 (2016) [4] T. Sato, *et al*, *Phys. Rev. A* **94** 023405 [5] Y. Orimo, T. Sato, K. L. Ishikawa, *Phys. Rev. A* **97**, 023423 (2018) [6] N. M. Bujurkea, C. S. Salimatha, *et al*, *Appl. Math Comput.* **185**, 667 (2007)