

高強度レーザーパルスに照射された分子からの 光電子スペクトルの第一原理計算

Ab-Initio Simulations of Photoelectron Spectra from Molecules in Intense Laser Pulses

東大院工 °織茂 悠貴, 佐藤 健, 石川 顕一

Univ. Tokyo, °Yuki Orimo, Takeshi Sato, Kenichi L. Ishikawa

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

高強度・超短レーザーパルスによって物質中の高速な電子ダイナミクスの観測や制御を試みる研究が盛んに行われている。我々はこれまでレーザー場によって誘起される複雑な多電子ダイナミクスの高精度な実時間第一原理計算を実現するため、Time-Dependent Complete Active-Space Self-Consistent Field (TD-CASSCF)法[1]や Time-Dependent Occupation Restricted Multiple-Active-Space (TD-ORMAS)法[2]といった多配置波動関数理論の開発・実装を行ってきた。さらに波動関数のフラックスを用いることで非常に少ない計算コストで実時間計算から光電子スペクトルを抽出できる Time-dependent Surface Flux (tSURFF)法[3]を上述の波動関数理論に適用することで、多電子原子からの光電子スペクトルを高精度に計算することに成功している[4]。

本研究はこの先行研究を発展させ、レーザーパルスに照射された分子からの光電子スペクトルの実時間第一原理計算を実現する。複数の核を持つ分子の計算では、局所的に高い空間解像度を要求する核のクーロンポテンシャルと核近傍で急峻に変化する波動関数を効率良く離散化することが必要不可欠である。本研究では TD-ORMAS 法の実装に局所的に空間解像度を変えられるアダプティブ有限要素法[5]を使用することで、核近傍では高解像度、遠方では低解像度なメッシュを用いる効率的な離散化を可能とした。下図はこの実装に tSURFF 法を適用することで計算した水素分子の一光子イオン化における光電子運動量スペクトルを示している。この図から偏光方向に応じて収量の多い方向が変化しつつも、分子構造に起因する節の位置は大まかに保存されていることが分かる。講演では実装の詳細の報告と計算結果についての議論を行う予定である。

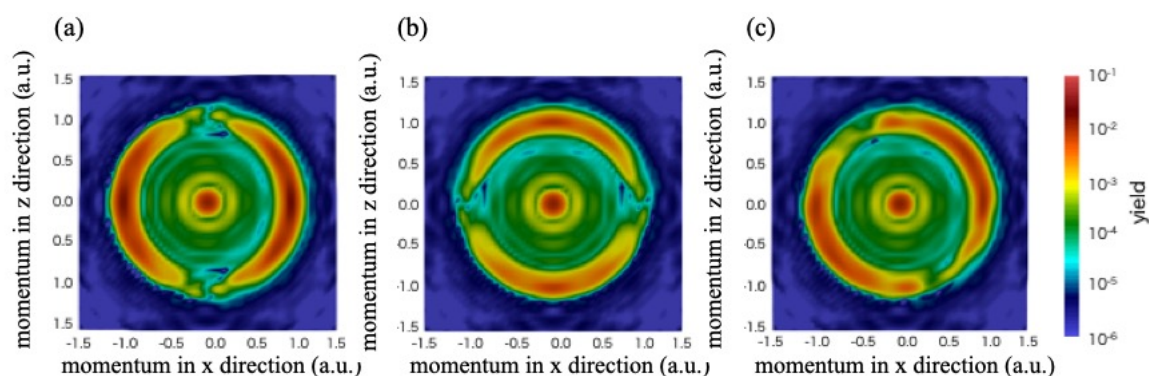


図: 波長 41.3nm, 強度 $1.0 \times 10^{13} \text{ W/cm}^2$ のレーザーパルスをもとに分子軸を x 方向とした水素分子に照射することで得られた光電子運動量スペクトル。TD-ORMAS 法の最も単純な場合である時間依存ハートリーフォック法を用いて計算を行った。運動量空間における xz 平面(y 方向の運動量はゼロ)上のスペクトルを示している。(a), (b), (c)はそれぞれ偏光方向を x 方向, z 方向, xz 平面上45°方向とした場合の結果である。

[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] L. Tao and A. Scrinzi, New J. Phys., **14**, 013021 (2012). [4] Y. Orimo, T. Sato, and K. L. Ishikawa, Phys. Rev. A **97**, 023423(2018) [5] W. Bangerth, R. Hartmann, and G. Kanschat. Math. Softw., 33 (2007).