

非断熱分子ダイナミクスのための時間依存結合クラスター法の開発

Time-dependent coupled-cluster method for nonadiabatic molecular dynamics

東大院工¹, [○]佐藤 健¹, 石川顕一¹

Univ. of Tokyo¹, Takeshi Sato¹ and Kenichi L. Ishikawa¹

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

超短パルスや高強度レーザーを用いた実験は実験単独での解釈が難しいため、確実な予言力のある精密な理論・計算手法が不可欠である。このために我々は、電磁場下の電子系の時間依存シュレーディンガー方程式 (TDSE) を精確に記述するための時間依存多配置自己無撞着場法 (TD-MCSCF) 【1-7】や時間依存最適化結合クラスター法 (TD-OCC) を開発してきた【8-12】。TD-MCSCF 法や TD-OCC 法では配置間相互作用係数だけでなく軌道関数も時間発展させるため、基底・励起・連続状態を効率的に記述できる。さらに TD-OCC 法は「サイズ無矛盾性」という重要な性質を備え、電子数に依らない計算精度と物性値の示量性が保証されている。

振動励起や結合解離を伴う分子の超短パルス・高強度レーザー実験をターゲットとするには、核の運動を量的に取り入れた非断熱ダイナミクスへの拡張が不可欠である。私達は既に、任意のフェルミ粒子、ボース粒子またその混合多体系に適用可能な非断熱 TD-MCSCF の定式化と実装を行っているが [13], サイズ無矛盾な時間依存結合クラスター法の非断熱ダイナミクスへの拡張は未だ報告されていない。本発表では、

電子も核も量的に扱う非断熱 TD-OCC 法の定式化

最重原子を原点にとった球座標における非断熱 TD-OCC 法の実装

について進捗を報告する。

- [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] T. Sato and K. L. Ishikawa, Phys. Rev. A 91, 023417 (2015).
- [4] R. Sawada, T. Sato, and K. L. Ishikawa, Phys. Rev. A 93, 023434 (2016).
- [5] T. Sato *et al*, Phys. Rev. A 94, 023405 (2016).
- [6] Y. Orimo *et al*, Phys. Rev. A, 97, 023423 (2018).
- [7] Y. Orimo, T. Sato, and K. L. Ishikawa, Phys. Rev. A, 100, 013419 (2019).
- [8] T. Sato, H. Pathak, Y. Orimo, and K. L. Ishikawa, J. Chem. Phys. 148, 051101 (2018).
- [9] H. Pathak, T. Sato, and K. L. Ishikawa, J. Chem. Phys. 152, 124115 (2020).
- [10] H. Pathak, T. Sato, and K. L. Ishikawa, J. Chem. Phys. 153, 034110 (2020).
- [11] H. Pathak, T. Sato, and K. L. Ishikawa, J. Chem. Phys. 151, e1813910 (2020).
- [12] H. Pathak, T. Sato, and K. L. Ishikawa, J. Chem. Phys. 154, 234104 (2021).
- [13] R. Anzaki, T. Sato, and K. L. Ishikawa, Phys. Chem. Chem. Phys. 19, 22008 (2017).