

## 審 査 の 結 果 の 要 旨

氏 名 織 茂 悠 貴

高強度のフェムト秒レーザーパルスを原子や分子、固体材料に照射した際に観測される高強度場現象の研究は、化学反応の制御やレーザー加工の学理解明への貢献が期待されている。原子や分子における高強度場現象を第一原理計算する手法として、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(TD-MCSCF)法が開発されている。本研究は、重要な実験プローブである光電子スペクトルを、高強度レーザーパルスに照射された原子を対象に、TD-MCSCF 法的一种である時間依存占有制限多重活性空間(TD-ORMAS)法をベースに計算する方法を開発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分野である高強度場物理とアト秒科学について説明した後、レーザーが誘起する多電子系のダイナミクスを多配置展開によって第一原理計算する手法を概観している。さらに光電子スペクトルを計算することの必要性和難しさを説明し、これらをもとに、本研究の目的を述べている。

第 2 章では、本研究が用いる第一原理計算手法である TD-ORMAS 法を解説している。この手法が考慮する電子配置と、電子配置を構成する軌道関数の時間発展を記述する運動方程式の導出を説明している。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ことが特徴である。さらに、原子を対象とする数値計算コードとしての実装について概説している。

第 3 章では、イオン化で放出された電子が計算領域の外縁で非物理的に反射されないように、効率的な吸収境界を組み込んでいる。もともと 1 電子系に対して開発された無限範囲外部複素スケーリング(irECS)を TD-ORMAS 法に実装している。Be と Ne を対象にパフォーマンスを検証し、従来法であるマスク関数法で計算領域を十分に大きく取った場合と同じ結果が、irECS では数倍小さい半径の計算領域で得られることを示している。この結果、マスク関数法の場合に比べて計算時間を数分の一に短縮することに成功している。

第 4 章では、シミュレーションによって得られた波動関数から角度分解光電

子エネルギースペクトル(ARPES)を計算する時間依存表面フラックス(tSURFF)法を実装している。終状態の波動関数を連続状態に射影して ARPES を求めようとすると、波動関数全体を保持する必要があるため吸収境界と併用できず、計算コストが膨大になってしまう。tSURFF 法はこの困難を解決し一部吸収されている波動関数から ARPES を求めることができるが、1 電子系に対して開発されたものであった。本章では、まず、多電子系の場合の tSURFF 法を導出し、それを TD-ORMAS 法に実装している。続いて、Ne, Be, Ar を対象にパフォーマンスを検証している。結果が物理的に予測可能で射影法によっても計算が実行可能な、極紫外パルスによる Ne の光電効果について、射影法と一致する光電子スペクトルを得ている。続いて、Be の光電効果断面積の光子エネルギー依存性を求めている。直接イオン化と 2 重励起状態からの自動電離が干渉するため電子相関を正しく考慮することが必要な難しい過程であるが、実験による光子エネルギー依存性をよく再現している。さらに、高強度の可視光レーザーパルスで照射された Ar の超閾イオン化(最低限必要な数より多くの光子を吸収してイオン化する現象)における ARPES を計算し、軌道の数等に関して数値的に収束した結果を得ている。このような計算は、本研究における TD-ORMAS 法、irECS 吸収境界、tSURFF 法の融合によって初めて実行可能になったもので、インパクトが大きい。さらに、ARPES における電子相関の効果についても議論している。

第 5 章は、分子への発展を議論している。原子の場合は球座標を使うことで計算コストを圧縮できるのに対して、分子の場合にはその恩恵を享受できないため直交座標を用い、原子核の近くでグリッド間隔を小さくするアダプティブメッシュを導入している。軌道関数の時間発展、吸収境界(スミーズ外部複素スケーリング)、tSURFF 法の数値実装を説明した後、単一の電子配置を用いる時間依存ハートリーフォック法で水素分子の光電効果について検証計算をしている。第 4 章までにおいて原子を対象として開発した光電子スペクトル計算法が、分子にも拡張可能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原子がイオン化する過程を第一原理計算し、得られる波動関数から角度分解光電子スペクトルを求める数値計算法の開発に成功している。TD-ORMAS 計算、irECS、tSURFF 法を融合することで、実験と定量的な比較が可能な正確な計算を実現している。これらの成果は、高強度レーザーパルスを用いた実験結果の解明や新たな実験の提案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。