

## 審査の結果の要旨

論文提出者氏名 澤田 亮人

本論文は、「高強度レーザーパルス下における分子の計算解析」と題した研究を記述したもので、全4章からなる。高強度のフェムト秒レーザーをガス媒質に照射すると、トンネルイオン化や高次高調波発生などの、いわゆる高強度場現象が起こる。高次高調波が超短パルスでコヒーレントな短波長光源として重要であることに加え、これらの現象は原子や分子における電子ダイナミクスのプローブとして注目されている。しかし、特に分子における高強度場現象は複雑であるため、理論計算からの貢献が期待されている。このような背景を踏まえ、本論文では、高強度レーザーパルス下における分子の挙動を第一原理的に数値計算する手法を開発・実装している。また、計算結果を解析する手法としてボーム経路の利用を提案し、Enhanced ionization を解析している。

第1章では、本論文の背景と目的を述べている。高次高調波発生とアト秒パルス発生、それらの応用について概観した後、高強度レーザーパルス下における原子・分子をシミュレーションするための既存の様々な取り組みを紹介し、それぞれの長所と短所を説明している。これを踏まえて、①多電子系の高速な計算②複数の核を扱える波動関数の離散化③得られた波動関数を解析する手法、が必要であると論じている。その上で、本研究では、①②については Kato and Kono と Caillat *et al.*によって開発された多配置時間依存ハートリー・フォック(MCTDHF)法を multi resolution グリッドを使って数値計算コードとして実装する、③についてはボーム経路を用いることで二原子分子の Enhanced ionization を解析するという目的が述べられている。

第2章では、multi resolution グリッド MCTDHF の数値計算コードとしての実装と、開発したコードによる計算結果について記述している。MCTDHF 法では、与えられた数の分子軌道に対する全ての電子配置を考え、多電子系の波動関数を複数のスレーター行列式の線形結合で表す。本章では、展開係数と軌道関数に対する運動方程式を解いて、それらの時間発展を数値計算するコードを開発している。核近傍での高い空間分解能とイオン化を扱える計算領域の広さを両立でき、分子の対称性によらない multi resolution 直交座標グリッドを使うのが特徴で、グリッド生成、軌道関数の二階微分の計算、共役残差法による二電子ポテンシャルの計算、Exponential integrator による軌道関数の時間発展の計算、マスク関数による計算境界での軌道関数の吸収、虚時間発展による基底状態の計算、多電子イオン化率や高次高調波スペクトルの計算の手法が述べられている。さらに、開発した数値計算コードを用いて、ヘリウム原子、水素分子および水分子からの高次高調波スペクトルを計算することに成功している。水素分子の場合には、レーザー偏光と分子軸が平行や垂直ではない場合について、発生する高調波の楕円率も計算している。分子の対称性に依存せず、高強度レーザーパルス下での多電子ダイナミクスを第一原理計算できるコードの開発に成功したことは、すぐれた成果である。

第3章では、ボーム経路を用いた Enhanced ionization の解析について述べている。Enhanced ionization とは、高強度レーザーによる2原子分子のイオン化率が、平衡核間距離より長い核間距離で大きく増大する現象である。流体の可視化技術に発想を得て、ボーム経路によって可視化

した電子存在確率密度の流れという観点から、一次元モデル水素分子を対象に、Enhanced ionization のメカニズムを検討している。時間依存シュレーディンガー方程式を直接シミュレーションすることで得られた各時刻の 2 電子波動関数からボーム経路を計算している。各電子に対応するボーム粒子の初期位置を様々に変えながら計算することで、up-field core からのイオン化、down-field core からのイオン化と見ることのできる経路をそれぞれ抽出している。従来は前者が支配的であると考えられてきたが、後者の寄与も同程度あることを示したことは意義がある。また、down-field core からのイオン化と up-field core での ionic component の生成が同時に起こることを示し、分子から放出されるボーム粒子の経路が、他方のボーム粒子の初期位置によってどのように変わるかも議論している。

第 4 章は結論で、本論文のまとめと今後の展望が述べられている。

以上のように本研究では、まず、高強度レーザーパルスを照射された分子における多電子ダイナミクスを第一原理計算する数値計算コードの開発に成功している。特に水分子からの高次高調波発生をシミュレーションすることに成功したのはおそらく世界初であり、よりサイズが大きく対称性の低い一般の分子に応用できる発展性を持つ点でも意義が大きい。さらに、計算によって得られた多電子波動関数を解析する手法としてボーム経路解析を提案し Enhanced ionization を対象として新しい知見を得ている点も意義がある。

なお、本論文第 2 章と第 3 章は、佐藤健、石川顕一との共同研究であるが、論文提出者が主体となって、研究内容の考案、数値計算コードの開発と計算の実行、結果の解析と考察を行っており、論文提出者の寄与が十分であると判断する。

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。