

## 高強度レーザー誘起電子ダイナミクスに対する ガウス基底波束動力学法の適用

東北大院理

○鈴木和磨, 荒井雄太, 菅野学, 河野裕彦

### Application of the Gaussian-basis wave-packet dynamics method to electron dynamics driven by an intense laser pulse

○Kazuma Suzuki, Yuta Arai, Manabu Kanno, Hirohiko Kono

*Department of Chemistry, Tohoku University, Japan*

**【Abstract】** Gaussian functions have been widely used as a basis set of wave functions in various research fields such as nuclear wavepacket dynamics. They enable the analytical calculation of Coulomb potential integrals required for time evolution and thus are expected to be also useful in describing the dynamics of electrons moving over a large spatial region. In this context, we developed an efficient strategy to prepare a Gaussian basis set suitable for Coulomb systems toward the application to electron dynamics. In our strategy, the narrowest Gaussians are placed at small intervals near a nucleus, where the de Broglie wavelength of electrons should be short, and broader Gaussians are placed at large intervals with increasing distance from the nucleus. We applied the method to simulate the electron dynamics driven by an intense laser pulse in a three-dimensional hydrogen atom.

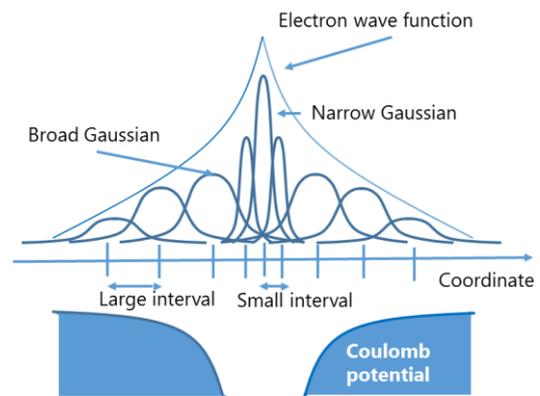
**【序】**近年のアト秒レーザー技術の発達に伴い、分子内電荷移動などの超高速電子ダイナミクスの観測や制御が可能になってきた[1]。複雑な電子ダイナミクスの機構を解明するには、シミュレーションを用いた理論的な追跡が必要である。量子ダイナミクスの計算法の一つに、波動関数を空間上に配置されたガウス基底で展開する手法がある。この手法は主に核波束動力学の分野で発展してきた[2, 3]。ガウス基底には、任意の位置に、任意の幅の基底を配置できるという利点があり、また時間発展に必要なクーロンポテンシャルの積分が解析的に計算可能なため、広い空間領域を動く電子のダイナミクスにも有効と考えられる。

そこで、本研究ではガウス基底波束動力学法を電子ダイナミクスへと適用することを目的として、クーロン系に適したガウス基底の配置法を開発した。他のグループによる同様の先行研究が報告されているが、それはクーロンポテンシャルから特異点を取り去った近似的な一次元ポテンシャル中の運動を扱うレベルに留まっていた[4]。本研究では、開発した基底配置法を、特異点を含む三次元水素原子のレーザー誘起電子ダイナミクスなどの計算に適用した。

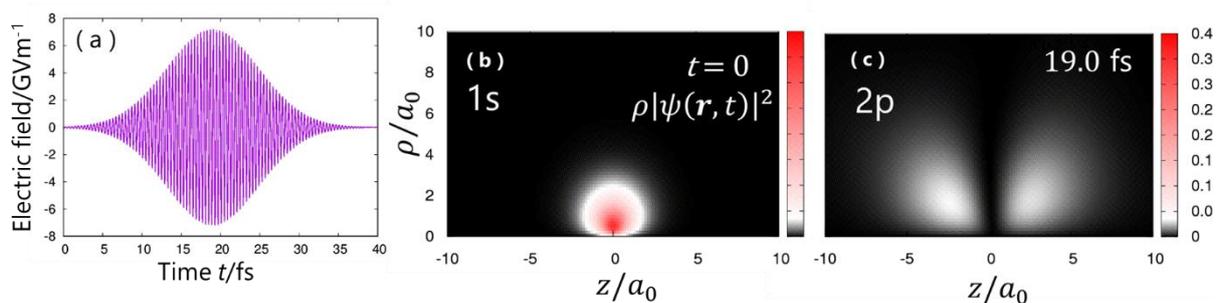
**【手法】**本研究で開発した新たな基底配置法では、原子核付近の物質波の波長が短くなる領域に最も細かい基底を短い間隔で並べ、基底の間隔と幅が原子核から離れるにつれて大きくなるように配置する (Fig. 1)。波動関数をガウス基底で展開する際には隣り合う基底同士の重なりが重要になるので、配置間隔によって基底の幅を調整する。配置法の詳細は当日発表する。

**【結果・考察】** まず、本配置の有効性を検証するために、三次元水素原子の定常状態計算へと適用した。一辺の長さが  $10 a_0$  ( $a_0$ : ボーア半径) の立方体領域を考え、原子核付近の小さな領域内には狭い間隔  $0.2 a_0$  で基底 (Fig. 1 の細い基底に対応) を配置し、その外側には間隔  $1.0 a_0$  で幅の広い基底を配置した。基底の総数は 1673 個になった。この配置で  $1s$  軌道の展開を行った結果、エネルギー精度 (厳密値との比) は 0.9985 になった。領域全体に等間隔で基底を配置する場合、同程度の精度を達成するためには、12000 個以上の基底が必要になる。この結果から、本配置を用いることで水素原子の定常状態を効率良く計算できることがわかる。

さらにレーザー誘起電子ダイナミクスへの応用として、パルス電場による分布反転のシミュレーションを行った。水素原子の  $1s$  と  $2p$  の固有エネルギーを精度良く再現するように基底を配置した。用いたパルスは  $1s$  と  $2p$  のエネルギー差に共鳴する波長を持ち、分布反転が 1 回起きるように振幅とパルス長を設定した ( $2\pi$  パルス、Fig. 2(a))。シミュレーションの結果、設定通り、初期時刻  $t=0$  で  $1s$  軌道に分布していた電子 (Fig. 2(b)) が、パルスのピークにあたる時刻  $t=19.0$  fs で  $2p$  軌道へと完全に励起され (Fig. 2(c))、終時刻で  $1s$  軌道へと戻る様子を再現できた。また、高強度近赤外パルスを水素原子に照射するシミュレーションを行い、イオン化と続いて再散乱が起きることを確認できた。結果の詳細は当日発表する。



**Fig. 1.** A schematic diagram of an efficient Gaussian basis set designed for Coulomb systems. The Gaussian functions are placed in a three-dimensional space.



**Fig. 2.** (a) The laser pulse used in the simulation of population inversion. (b) The probability density of the initial wave function. (c) The probability density of the wave function at the peak of the pulse. In panels (b) and (c), the probability densities are plotted in cylindrical coordinates. The population inversion from  $1s$  to  $2p$  is observed for a hydrogen atom.

### 【参考文献】

- [1] F. Calegari *et al.*, *Science* **346**, 336 (2014). [2] E. J. Heller, *J. Chem. Phys.* **62**, 1544 (1975).  
 [3] W. Koch and T. J. Frankcombe, *Phys. Rev. Lett.* **110**, 263202 (2013).  
 [4] N. Takemoto, A. Shimshovitz, and D. J. Tannor, *J. Chem. Phys.* **137**, 011102 (2012).