

重元素系の相対論的量子化学計算：基礎物理探索及び原子核の内部構造

砂賀彩光

北海道大学大学院理学研究院 化学部門

1 緒言

冷却原子を用いた精密測定は、標準模型を超えた新物理(Beyond Standard Model, BSM)を探索する手段として着目されており、同位体シフト（原子の電子スペクトルの同位体間の差）に関する King プロットの非線形性の解析は、電子と中性子間を媒介する新粒子を検出するために重要である[1]。特に、Yb 原子の基底状態($1S_0$)と内殻の $4f$ 電子が励起した状態($4f^3 6s^2 5d, J=2$)間の遷移は、新物理への感度が特に高い遷移とされて着目されている。近年、京都大学の高橋らのグループにより、Yb 原子を用いた 2 つの遷移エネルギー ($1S_0 \leftrightarrow 4f^3 6s^2 5d, J=2$; $1S_0 \leftrightarrow 3P_2$) に関する同位体シフトが約数 Hz の不確かさで測定された[2,3]。しかし、同位体シフトが、同位体の違いに由来する電荷分布の影響（標準模型項）なのか、電子と中性子を媒介する微小な相互作用に由来するもの（BSM 項）なのか、実験スペクトルのみからは断定することは不可能である。

本研究では、King プロットの非線形を解析するための相対論的電子相関計算を実施した。同位体シフトは原子核因子と電子状態因子の積に分離でき、複数の遷移を用いた解析を行うことで、低次項を順に削除できる。本研究では、先行研究で測定された中性 Yb 原子及び Yb カチオンに関する 5 種類の遷移に関する電子状態因子の理論計算および誤差評価を行った。さらに、得られた計算値と実験値を融合した解析を行うことで、新粒子が媒介する電子-中性子相互作用の相互作用定数の favorite region を得るとともに、原子核物理学の量子多体計算で使える重要なベンチマークデータを得た。

2 計算方法

電子状態因子の計算には、相対論計算専用のプログラムである DIRAC[4]を用いた。Dirac-Coulomb-Gaunt ハミルトニアンを用いて相対論効果を考慮し、equation-of-motion coupled cluster (EOM-CC) 法 および general-active-space configuration interaction (GASCI) 法を用いて電子相関効果を考慮した。非相対論計算では電子波動関数がスピン部分と空間部分に分離することができ、空間成分は 1 成分であるが、相対論計算ではスピン部分と空間部分が分離できず、波動関数が 4 成分になる。そのため 4 成分計算では、ハミルトニアン行列のサイズが大きくなり、計算に必要なメモリサイズが大きくなる。4 成分計算を行うため、京都大学学術情報メディアセンターのスーパーコンピュータの中でも比較的大きなメモリを使用できるシステム B (Laurel3) を用いて計算を行い、1 プロセスあたりのメモリ数を増やして（例えば、 $(p=16, c=7)$, $(p=4, c=28)$ など）計算を行った。計算対象である電子状態因子 F_i , G_i , X_i および新粒子由来のポテンシャル V_Y は、以下の式で定義される。

$$F_i = \frac{Ze^2}{4\pi\epsilon_0} \frac{\xi_{i,X}}{6}, \quad G_i = \frac{1}{2} \frac{\partial F_{i,X}}{\partial \langle r_X^2 \rangle} \Big|_{X=A_0}$$

$$X_i = \langle \Psi_u | V_Y | \Psi_u \rangle - \langle \Psi_l | V_Y | \Psi_l \rangle;$$

$$V_Y(r) = \hbar c \frac{\exp(-m_\phi cr/\hbar)}{r}.$$

ここで、 $\xi_{i,X}$ は電子遷移 i における核上の電子密度の差、 Z は核電荷、 r は電子-核間距離、 $\langle r_X^2 \rangle$ は同位体 X の 2 次の電荷モーメント、 A_0 は基準同位体、 m_ϕ は新粒子の質量、 $\Psi_{l/\mu}$ は遷移前後の電子波動関数である。

3 結果

理論計算の不確かさは、ある計算条件に関して理論上高精度な計算と低精度な計算の差から求められる。種々の計算条件に関して不確かさが独立であると仮定して、それぞれの不確かさを **Euclidean norm** を用いて最終的な計算値の不確かさを得る。本研究では、基底関数、相対論効果、電子相関効果、電子相関計算の活性空間、電子相関計算で考慮する内殻電子の個数について、不確かさを求めた。例として、 $1S_0 \leftrightarrow 3P_2$ 遷移の F_i , G_i について、それぞれの計算条件に関する不確かさを表 1 に示す。これらの F_i , G_i 及びその不確かさをを用いた解析を行うことで、原子核の電荷モーメントを抽出することができ[2]、原子核の量子多体理論に関するベンチマークデータを提供できる。

また、 X_i の不確かさを考慮して同位体シフトを解析することで、 X_i に関するほとんどの質量領域 ($m_\phi \leq 6.5 \text{ keV}$, $18 \text{ keV} \leq m_\phi \leq 100 \text{ keV}$) にて、新粒子の寄与が King プロットの非線形性の主な寄与ではないことを示した[3]。 $6.5 \text{ keV} \leq m_\phi \leq 18 \text{ keV}$ の質量領域で新粒子の寄与を排除できなかった理由は、431 nm および 467 nm 遷移において価電子と内殻電子の寄与の相殺に起因して当質量領域の不確かさが顕著になるためである。本研究の不確かさ推定手法では、基準値 (5s, 5p, 4f, 6s, 5d 電子の寄与) と内殻電子の間で打ち消し合いが生じると、相殺が顕著になる。 $6.5 \text{ keV} \leq m_\phi \leq 18 \text{ keV}$ の領域では、基準値の X_i の符号が変化し、 $m_\phi = 10 \text{ keV}$ 近傍で

これらの遷移の X_i の絶対値が小さくなる。この打ち消し合いは、内殻電子の寄与は全ての質量領域で正であるが、基準値の寄与が負から正へ変化することによって起因している。 今後は、より内殻電子を多く考慮した電子相関計算を行えるようプログラムの高速化などを行い、新粒子の寄与の可能性が残されている質量領域について詳細な検討を行う。

4 参考文献

- [1] J. C. Berengut, D. Budker, C. Delaunay, V. V. Flambaum, C. Frugiuele, E. Fuchs, C. Grojean, R. Harnik, R. Ozeri, G. Perez, and Y. Soreq, Phys. Rev. Lett. **120**, 091801 (2018).
- [2] T. Ishiyama, K. Ono, H. Kawase, T. Takano, R. Asano, A. Sunaga, Y. Yamamoto, M. Tanaka, and Y. Takahashi, Nat. Photonics **20**, 504 (2026).
- [3] T. Ishiyama, K. Ono, R. Asano, H. Kawase, T. Takano, A. Sunaga, Y. Yamamoto, M. Tanaka, and Y. Takahashi, arXiv:2601.08487 (2026).
- [4] T. Saue, R. Bast, A. S. P. Gomes, H. J. A. Jensen, L. Visscher, I. A. Aucar, R. Di Remigio, K. G. Dyall, E. Eliav, E. Fasshauer, T. Fleig, L. Halbert, E. D. Hedegård, B. Helmich-Paris, M. Iliaş, C. R. Jacob, S. Knecht, J. K. Laerdahl, M. L. Vidal, M. K. Nayak, M. Olejniczak, J. M. H. Olsen, M. Pernpointner, B. Senjean, A. Shee, A. Sunaga, and J. N. P. van Stralen, J. Chem. Phys. **152**, 204104 (2020).

表 1: Yb 原子の $1S_0 \leftrightarrow 3P_2$ ($i = 507 \text{ nm}$) 遷移における電子状態因子 F (GHz/fm²), G (MHz/fm⁴) の計算条件依存性: 基準値(ref.), 相対論的ハミルトニアン(REL), 基底関数(basis), 計算方法(method), 仮想軌道の打ち切り(virtual (a.u.)), 電子相関計算で考慮した電子数(correlated elec.)

	REL	basis	method	virtual	correlated elec.	F_{507}	G_{507}
ref.	DC	ae3z+3s2p	EOM-CC	100	all	-10.73	29.94
Δ basis	DC	ae4z+3s2p ae3z+3s2p	EOM-CC	100	all	-10.60	29.40
Δ Triple	DC	ae3z+3s2p	CCSD(T) EOM-CC	100	higher than 3p	-15.64 -15.79	43.27 43.68
Δ virtual	DC	ae3z+3s2p	EOM-CC	3000 100	all	-10.73	30.04
Δ Gaunt	DCG DC	ae4z+3s2p	HF			-8.86 -8.91	24.66 24.79