

パルスレーザーが誘起する 電子・フォノンダイナミクスの第一原理計算

平成21年度前期・後期課題

レーザーと物質の相互作用に対する第一原理計算

申請代表者:

矢花一浩 (筑波大計算科学研究センター)

共同研究者:

乙部智仁 (原研関西)

イ・キョンミン (M1)

中務孝 (理研)

畑佑樹 (M1)

川下洋輔 (D3)

杉山健 (B4)

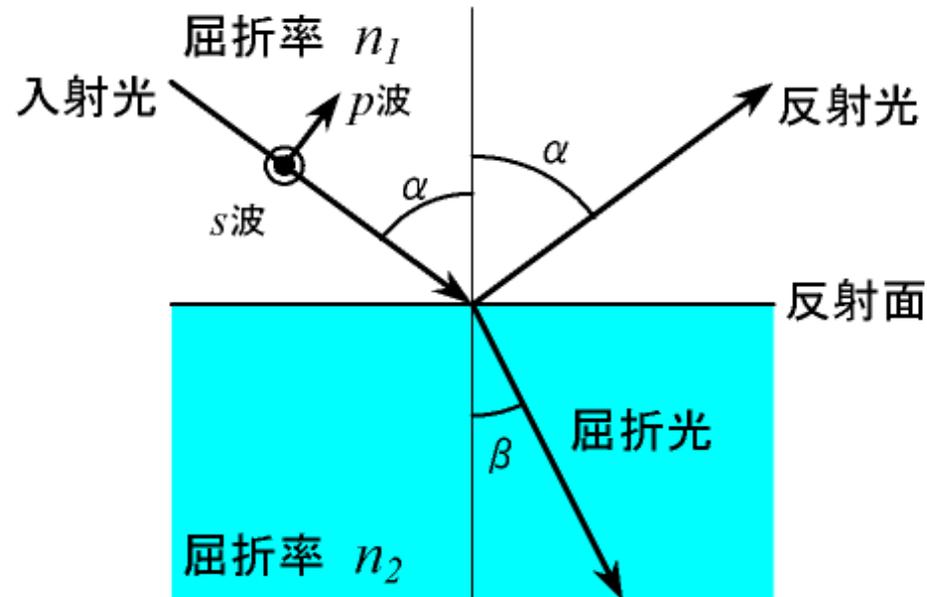
篠原康 (M2)

光(電磁波)と物質の相互作用

弱い(ふつうの)光の場合:

反射、屈折 \Rightarrow 誘電率で記述される。

$$n = \sqrt{\epsilon}$$



光(電磁波)と物質の時間・空間スケール

光の波長: μm (マイクロメートル)

物質の光に対する応答 = 分極
 nm (ナノメートル)

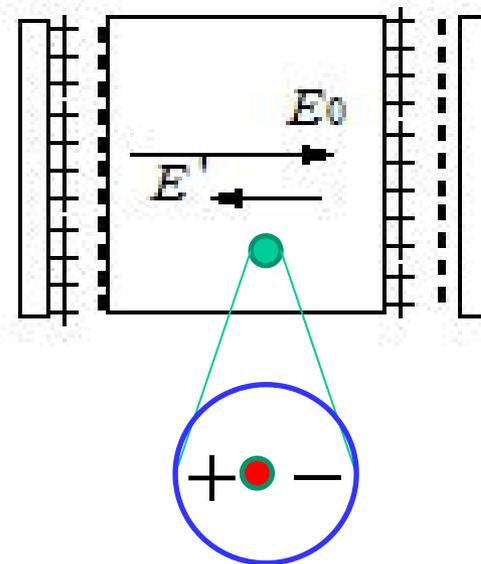
光の伝播と、分極を引き起こす電子ダイナミクスは
数桁異なる空間スケールを持つ。

光の振動数: eV

物質の励起エネルギー: eV

時間スケール: $1/\text{eV} \sim 10^{-18}\text{s}$

光の振動数と、物質中の電子ダイナミクスの時間スケールは同程度。
今日の時間計測分解能は、アト秒(10^{-18}s)に迫っている。

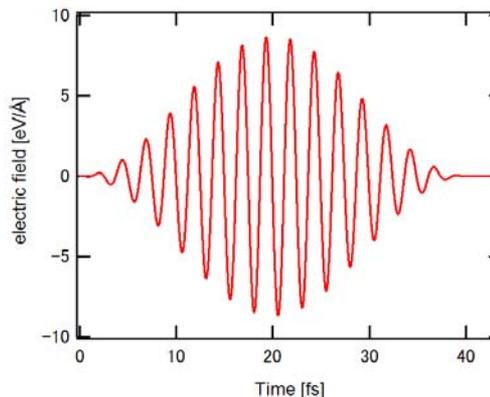
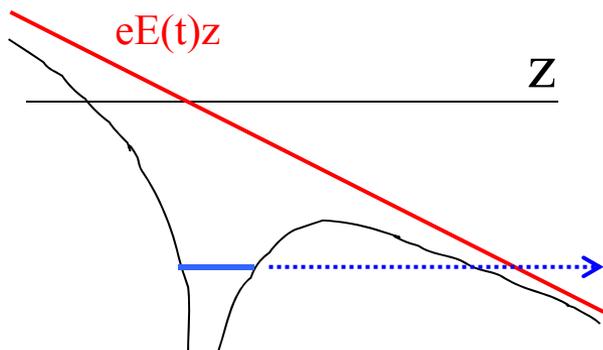


個々の原子の分極が
誘電体の分極を引き起こす

レーザー科学の発展： 様々な新しい光源が利用可能に

高強度・超短パルスレーザー、放射光、XFEL

⇒ 計測・通信から、物質制御、加工へ



超強高度化

10^{13} - 10^{15} W/cm²

10^{23} W/cm²

物質内の場と外場が
同程度の強度

瞬時に物質はプラズマ化
相対論・古典論

超短パルス化

10^{-15} s (1 femto sec)

イオンが静止

電子が静止

⇒ 誘電率 $\epsilon(\omega)$ では記述できない

光と物質の相互作用に対する第一原理からの記述

最終的な目標は、

光(電磁波)に対するMaxwell方程式(μm スケール)と
電子に対する時間依存Schroedinger方程式(nm スケール)を結合した記述。

$$\vec{\nabla} \times \vec{B} - \frac{1}{c} \frac{\partial}{\partial t} \vec{E} = 4\pi \vec{j}$$
$$\vec{E} = -\vec{\nabla} \phi - \frac{1}{c} \frac{\partial \vec{A}}{\partial t} \quad \vec{B} = \nabla \times \vec{A}$$

$$i\hbar \frac{\partial}{\partial t} \psi(t) = \left[\frac{1}{2m} \left(\vec{p} - \frac{e}{c} \vec{A} \right)^2 + e\phi \right] \psi(t)$$
$$\vec{j} = \langle \psi(t) | \hat{j} | \psi(t) \rangle$$

現時点での到達点は、

空間的に一様で時間変化する電場と
電子に対する時間依存Kohn-Sham方程式を結合した記述。
(時間依存密度汎関数理論、TDDFT)

空間的に一様な時間とともに変化する電場に対する物質の応答

Bertsch, Iwata, Rubio, Yabana, Phys. Rev. B62(2000)7998.

時間を変数に持つ(空間的に一様な)ベクトルポテンシャルにより、巨視的な電場を表現する。

$$\vec{E}(t) = -\frac{\partial \vec{A}(t)}{\partial t} \quad \vec{A}(t) = -\int^t \vec{E}(t) dt$$

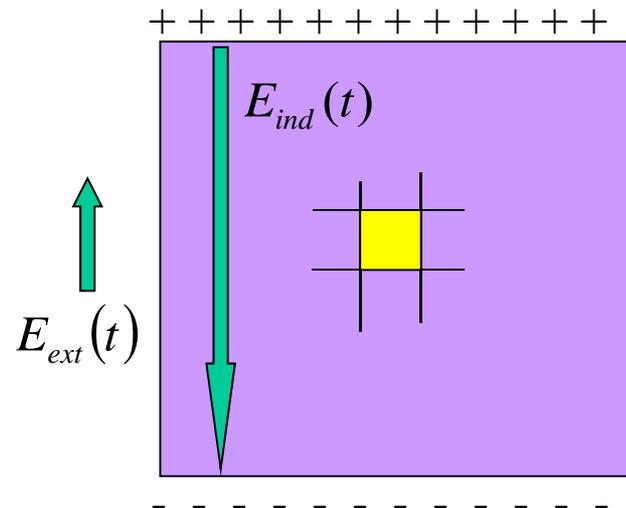
電子ダイナミクスは時間依存Kohn-Sham方程式を解く。

$$i\hbar \frac{\partial}{\partial t} \psi_i(t) = \left[\frac{1}{2m} \left(\vec{p} - \frac{e}{c} \vec{A}(t) \right)^2 + V_{\text{Periodic}}(r, t) \right] \psi_i(t)$$

時間に依存するブロッホ関数を用いる。

$$\psi_i(\vec{r}, t) = e^{i\vec{k}\vec{r}} \phi_{nk}(\vec{r}, t), \quad \phi_{nk}(\vec{r} + \vec{R}, t) = \phi_{nk}(\vec{r}, t)$$

分極(表面電荷)効果



分極を考慮した時間依存Kohn-Sham方程式

$$i\hbar \frac{\partial}{\partial t} \psi_i(t) = \left[\frac{1}{2m} \left(\vec{p} - \frac{e}{c} \vec{A}_{tot}(t) \right)^2 + V_{e-ion}(\vec{r}) + \int d\vec{r}' \frac{e^2}{|\vec{r} - \vec{r}'|} n(\vec{r}', t) + \mu_{xc}[n] \right] \psi_i(t)$$

巨視的電場 = レーザー電場 + 分極電場

分極電場は電流で生じる

$$\vec{A}_{tot}(t) = \vec{A}_{ext}(t) + \vec{A}_{ind}(t) \quad \frac{1}{4\pi} \frac{d^2 \vec{A}_{ind}(t)}{dt^2} = \frac{dP}{dt} = \frac{4\pi}{V} \int_{cell} d\vec{r} \vec{j}(\vec{r}, t)$$

分極場と電子ダイナミクスに対する時間発展方程式

計算方法

$$\left\{ -\frac{\hbar^2}{2m} \vec{\nabla}^2 + \sum_a V_{ion}(\vec{r} - \vec{R}_a) + e^2 \int d\vec{r}' \frac{n(\vec{r}', t)}{|\vec{r} - \vec{r}'|} + \mu_{xc}(n(\vec{r}, t)) + V_{ext}(\vec{r}, t) \right\} \psi_i(\vec{r}, t) = i\hbar \frac{\partial}{\partial t} \psi_i(\vec{r}, t)$$

$$n(\vec{r}, t) = \sum_i |\psi_i(\vec{r}, t)|^2$$

電子軌道に対して： 実時間・実空間計算

$$\psi_m(x, y, z, t)$$

- ・空間は、3次元正方格子を用いた差分法
- ・時間発展計算
- ・サイズスケーリング $O(N^2)$
- ・軌道(k点)並列、及び空間並列の選択
- ・分子系(孤立系境界条件)及び固体系(周期境界条件)

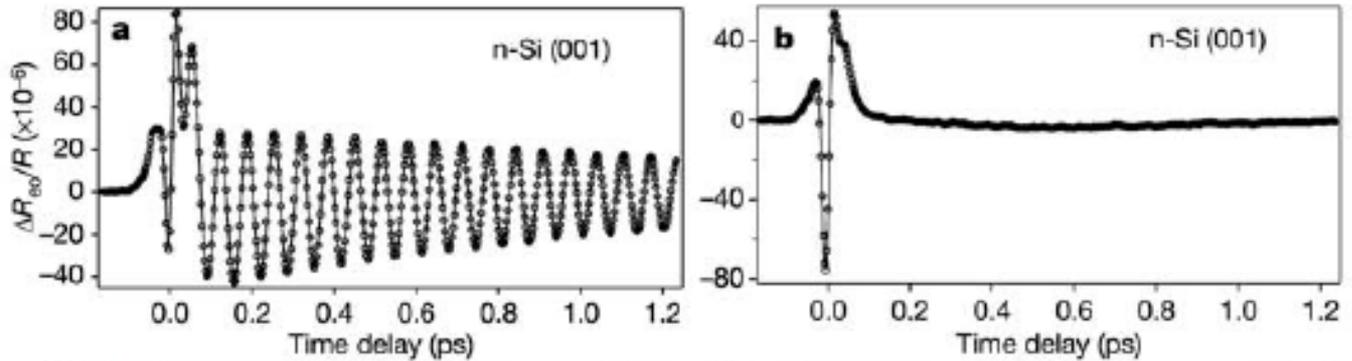
原子の座標に対して： エーレンフェスト・ダイナミクス

$$\vec{R}_a(t)$$

- ・各時刻の電子・イオン配置から力を計算
- ・古典MD

コヒーレントフォノン (バルクSi)

レーザーパルス(光)→電子励起→フォノン励起を実時間計測

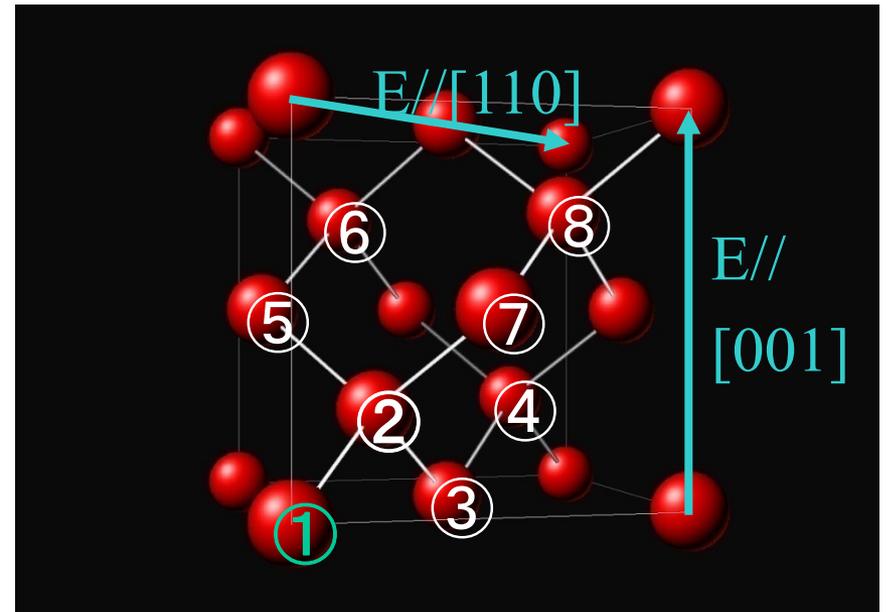


Si measurement:
M. Hase, et.al,
Nature 426, 51 (2003)

ポンプ・プローブ測定:

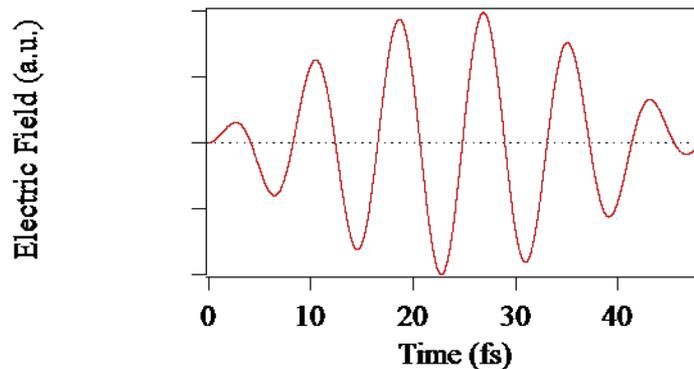
最初のパルスが電子励起
→コヒーレントフォノン生成

2番目のパルスにより反射率の変化を測定

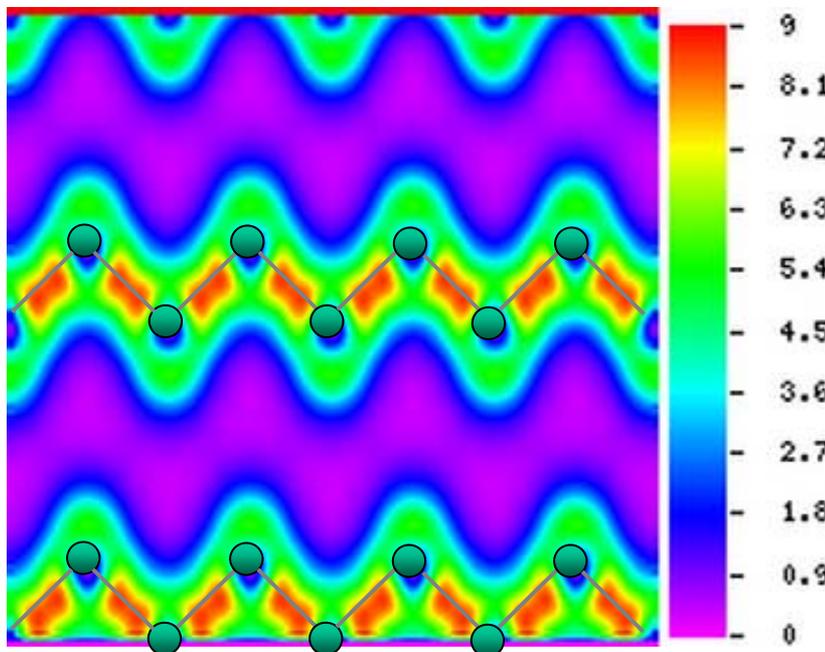


パルスレーザー電場による電子密度の時間変化

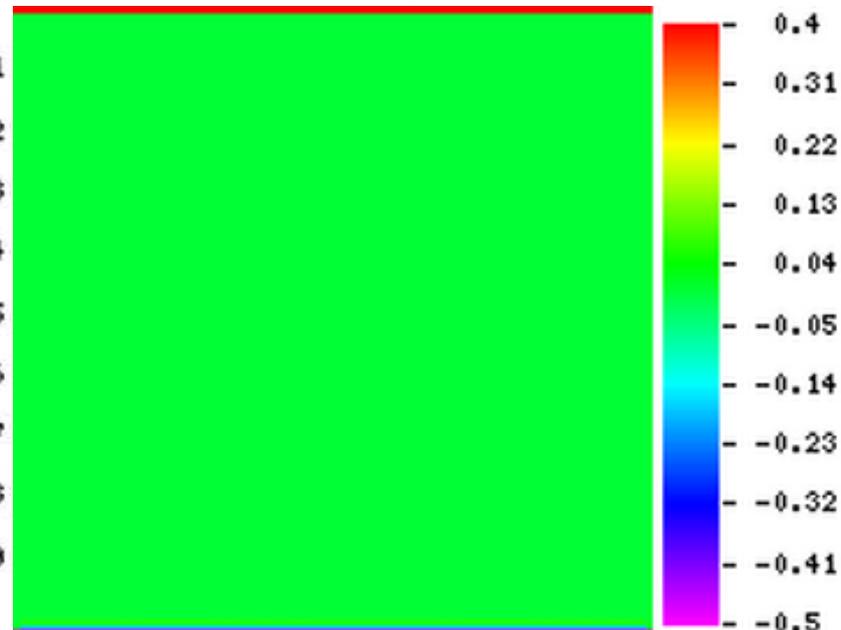
Intensity $I = 3.5 \times 10^{14}$ (W/cm²)
Frequency $\omega = 0.5$ (eV)



Total electron density (110)



Density difference from ground state (110)



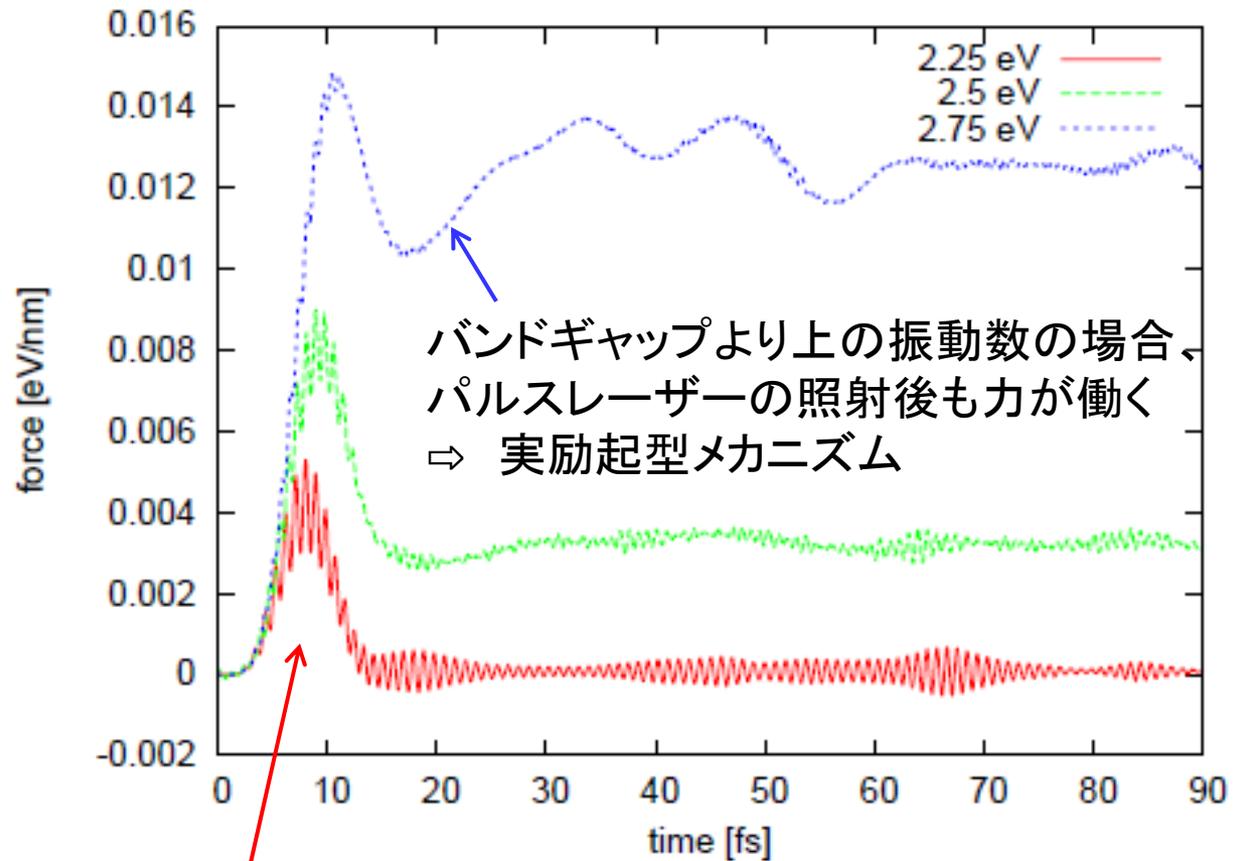
Si結晶

パルスレーザーによる電子励起を経て、格子振動を生む力

Si: 8原子／単位胞

空間格子点 16^3

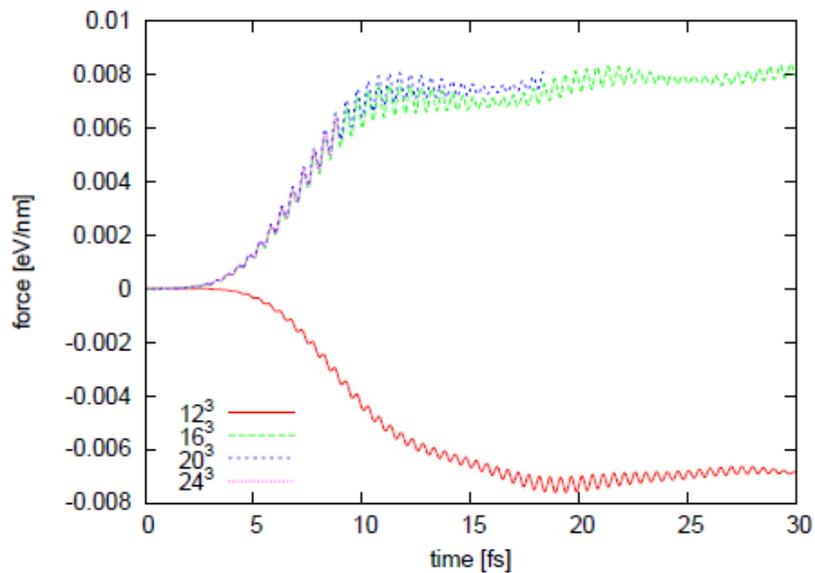
単位胞の数 24^3
(k点)



バンドギャップ以下の振動数の光の場合、
パルスレーザーの照射中に力が働く
⇒ 瞬間ラマン型メカニズム

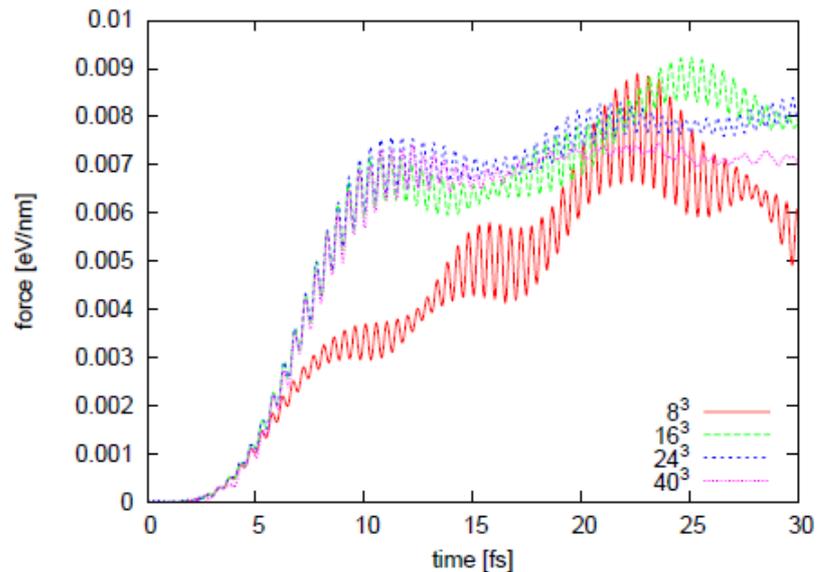
計算パラメータに関する収束性の確認 (最も「重い」計算)

空間刻みに関する収束性



16^3 でOK

K点に関する収束性



24^3 でOK

空間刻み 16^3 、k点刻み 24^3
⇒ 256コアで20時間程度

光と物質の相互作用に対する第一原理からの記述

最終的な目標は、

光(電磁波)に対するMaxwell方程式(μm スケール)と
電子に対する時間依存Schroedinger方程式(nm スケール)を結合した記述。

現時点での到達点は、

空間的に一様で時間変化する電場と
電子に対する時間依存Kohn-Sham方程式を結合した記述。

(T2K-Tsukuba 256コア並列で20時間程度)

次のステップに向けて

光(電磁波)の伝播[μm スケール]と電子ダイナミクス[nm スケール]を同時に記述すること。

電磁波の伝播する空間格子点(最低でも数百点)に対して
電子ダイナミクスを並列計算することにより、
マルチスケール・シミュレーションが可能になる。