

極限的パルス光と結晶の相互作用を記述する第一原理計算

First-principles calculations for the interaction of extreme light-pulses and crystalline solids

矢花一浩、佐藤駿丞、谷口億宇

K. Yabana, S.A. Sato, Y. Taniguchi

筑波大学 計算科学研究センター・数理物質科学研究科

Center for Computational Sciences, University of Tsukuba, Tsukuba 305-8577

本研究は、今日の光科学の先端課題の一つである、極限的なパルス光と物質の相互作用を記述する第一原理計算法を開発し、実験研究と計算の連携により光と物質の相互作用に対する基本的な理解を深め、応用に向けた取り組みに貢献することを目的としている。

光電場の強度が物質内で電子を束縛する電場と同程度となると、光に対する電子応答は著しい非線形性を示す。また、光のパルス時間長が物質内の価電子運動の周期と同程度かそれ以下になると、パルス光を用いて物質内の電子運動を時間領域で測定し、制御することが可能となる。このような極限的なパルス光と物質の相互作用を理論的に記述するためには、電磁気学と量子力学を統合した取り扱い—光電場のもとで起こる電子ダイナミクスを、時間依存シュレディンガー方程式を解くことにより記述する—が不可欠となる。我々はこのような状況で有効な、光と物質の相互作用を第一原理的に記述する汎用シミュレーターの開発を進めている。最も一般的な形では、巨視的電磁場のダイナミクスを記述する時間領域有限差分法と、時間依存密度汎関数理論に基づき微視的電子ダイナミクスを記述する実時間・実空間法をマルチスケール法で結合したシミュレーターとなる [1]。

このシミュレーション法に対し、現在改良を加えている点の一つが、電子ダイナミクス計算で用いる汎関数の改良である。これまで我々は、最も単純な断熱局所密度近似を用いてきた。良く知られているように、局所密度近似 (LDA) は誘電体のバンドギャップを過小評価する困難を伴うが、これは誘電体の非線形光応答を定量的に記述する上で極めて深刻である。例えば SiO_2 を断熱局所密度近似で記述すると、典型的な 800nm のパルスレーザーに対して計算では 4 光子吸収による実励起が起きる。しかし実験的には、少なくとも 6 光子が必要となることが知られている。

LDA に伴う困難を克服するものとして、最近、誘電体のバンドギャップや誘電関数を密度汎関数理論あるいは時間依存密度汎関数理論により定量的に記述する汎関数が開発されてきた。メタ GGA 汎関数やハイブリッド汎関数を例に挙げるができる。そこで我々は、これらの汎関数を微視的電子ダイナミクス計算に取り入れるよう計算コードの改良を進めている。メタ GGA は LDA に比べ、およそ 2 番程度の計算量となる。ハイブリッド汎関数は、非局所なフォック項の計算のため実時間・実空間法の枠組みでは多大な計算コストを必要とする。我々は、非局所なフォック項を GPU の cufft (フーリエ変換ライブラリ) を用いて高速化することを試みており、筑波大の導入している超並列 GPU マシン HA-PACS を用いた計算を行っている。講演では、マルチスケールシミュレーターの一般的な説明に加え、電子ダイナミクス計算で用いるべき汎関数とその実装の現状について紹介する。

[1] K. Yabana, T. Sugiyama, Y. Shinohara, T. Otake, G.F. Bertsch, Phys. Rev. B85, 045134 (2012).