

非線形光学応答の 量子シミュレーション 手法開発と超並列計算

篠原 康(SHINOHARA Yasushi)

光量子科学研究センター 東京大学

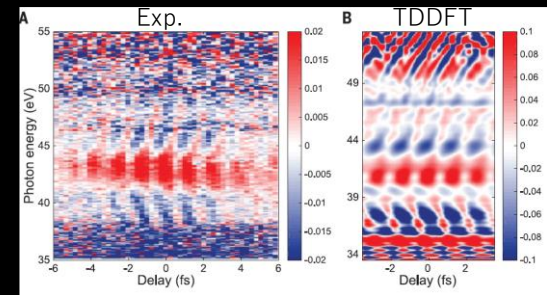
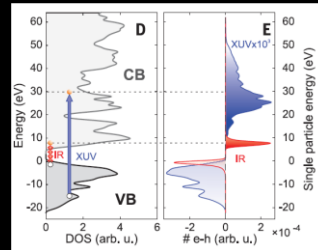
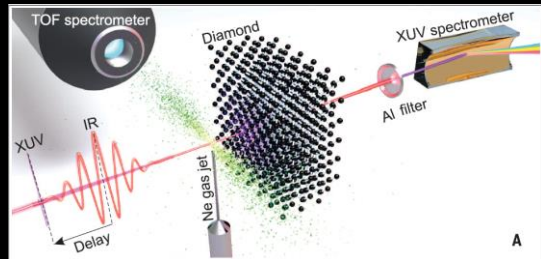
ポスト「京」萌芽的研究課題

複合相関が織りなす極限マテリアル -原子スケールからのアプローチ-

光科学/光工学の最先端

• 電子のアト秒ダイナミクス：Ultrafast

- (数十)アト秒パルスの実現
- 複数次パルスを用いたアト秒解像度の時間分解分光



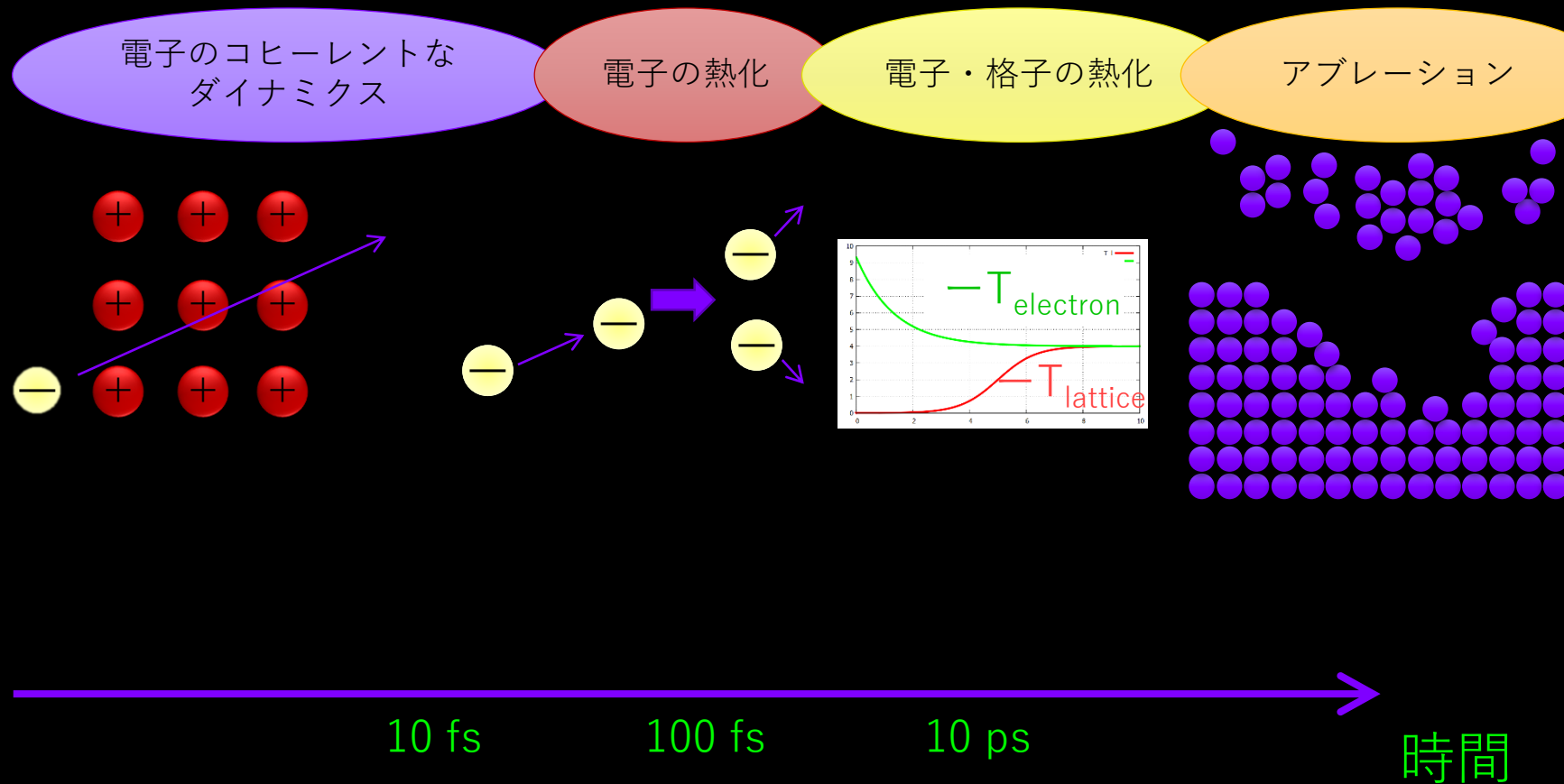
M. Lucchini, et al., Science 353 (2016) 916

• 高品質レーザー加工：Ultraintense

- 従来法：単色高強度光を用いた熱加工
- 提案法：非熱加工 via 最先端コヒーレント光源
 - キャリアの雪崩増殖の制御：電子の多体効果
 - 最適電場波形の追求：単色光を超えて

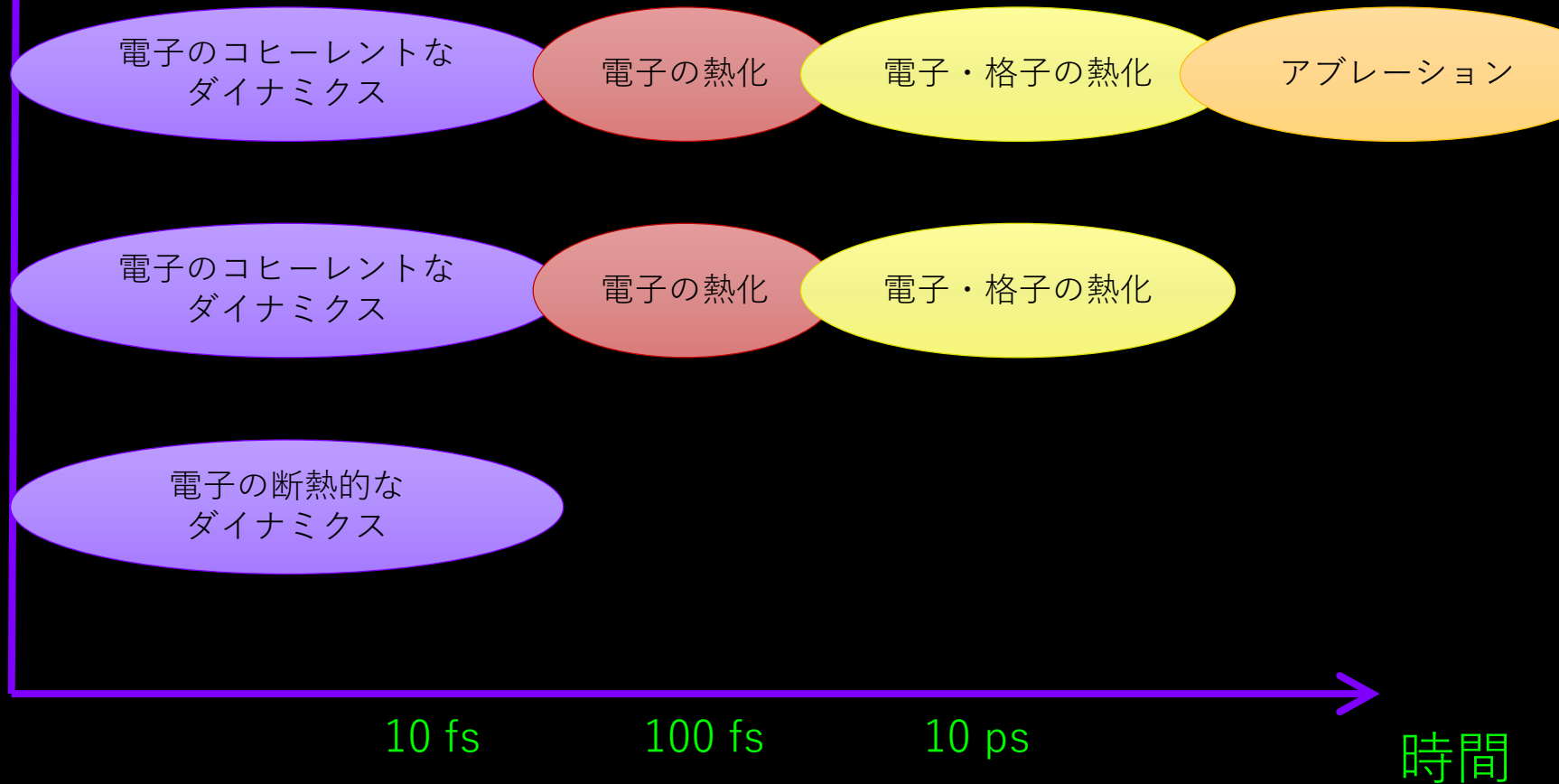
理論シミュレーションで解き明かす光科学
理論シミュレーションでデザインする光工学

問題：二つのマルチスケール



問題：二つのマルチスケール

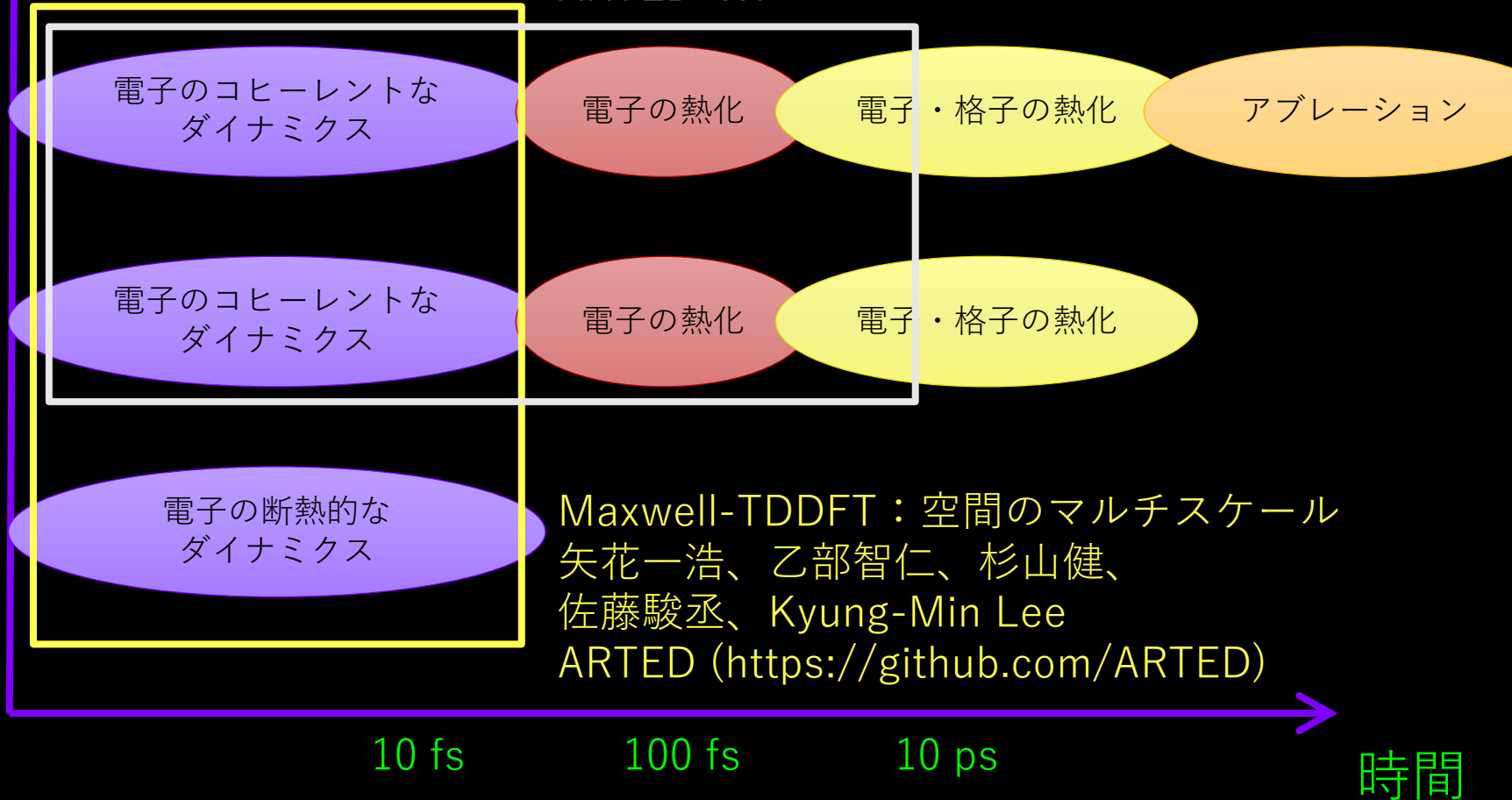
空間(電場強度)



問題：二つのマルチスケール

空間(電場強度)

固体の波動関数理論：時間のマルチスケール
池町拓也、佐藤健、石川顕一
ARTED-WF



コンテンツ

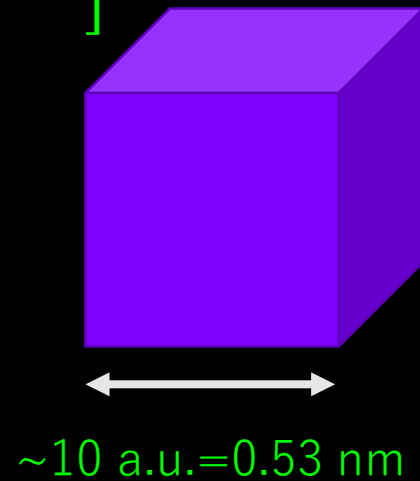
- 導入
- Maxwell-TDDFT：空間のマルチスケール
矢花一浩、乙部智仁、杉山健、佐藤駿丞、Kyung-Min Lee
ARTED (<https://github.com/ARTED>)
- 固体の波動関数理論：時間のマルチスケール
- まとめ

TDDFT：時間依存密度汎関数理論

- 電子多体問題を有効一体問題で近似する理論

$$i \frac{\partial}{\partial t} \psi_{bk}(t) = \left[\frac{1}{2} \left(\frac{\nabla}{i} + A(t) \right)^2 + v_{\text{ext}} + v_H[n(t)] + v_{\text{xc}}[n(t)] \right] \psi_{bk}(t)$$
$$n(t) = \sum_{bk} |\psi_{bk}(t)|^2$$

- 経験パラメーターを参照しない理論(≠厳密)
 - 光学ギャップ：acceptable
 - 電子相関/散乱：poor
- 時間発展を解く：指数関数の4次のTaylor展開
- 大規模疎行列とベクトルの行列ベクトル積
 - 行列の構造：Gradientの有限差分、projectorタイプの演算
 - 典型的な次元： $16^3 \times 24^3 \sim 57 \text{ M}$
 - 典型的な時間ステップ：100 k



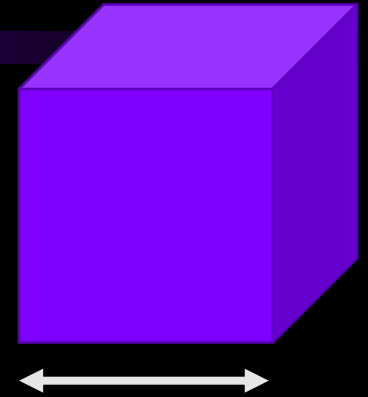
Pro: 物質の非線形量子ダイナミクスシミュレーション
Con: 空間的な非一様性を取り込むには大きな計算コストが必要

巨視的Maxwell方程式

- 光/電磁波の伝播を記述する

$$\left[\frac{1}{c^2} \frac{\partial^2}{\partial t^2} - \nabla^2 \right] \mathbf{A}(\mathbf{R}, t) = \mathbf{J}(\mathbf{R}, t) \text{ with } \phi(\mathbf{R}, t) = 0$$

- 典型的な波長：10 nm – 1 μ m
- 典型的な”モノ”の大きさ：10 nm – 10 μ m
- 典型的な時間スケール：1 as – 1 ns
- ダイナミックレンジは広いが、空間解像度と時間解像度を変えることで対応可能



~1 μ m = 1000 nm

- 通常 of FDTD : 誘電関数を通じて物質の個性を表現

- 誘電体： $J(\mathbf{R}, t) = \frac{1 - \epsilon(\mathbf{R})}{c^2} \frac{\partial^2 A(\mathbf{R}, t)}{\partial t^2}$
- 金属： $J(\mathbf{R}, t) = -\frac{\omega_p^2(\mathbf{R})}{4\pi} \left(1 - \gamma(\mathbf{R}) \frac{\partial}{\partial t} - \gamma^2(\mathbf{R}) \frac{\partial^2}{\partial t^2} \right) A(\mathbf{R}, t)$

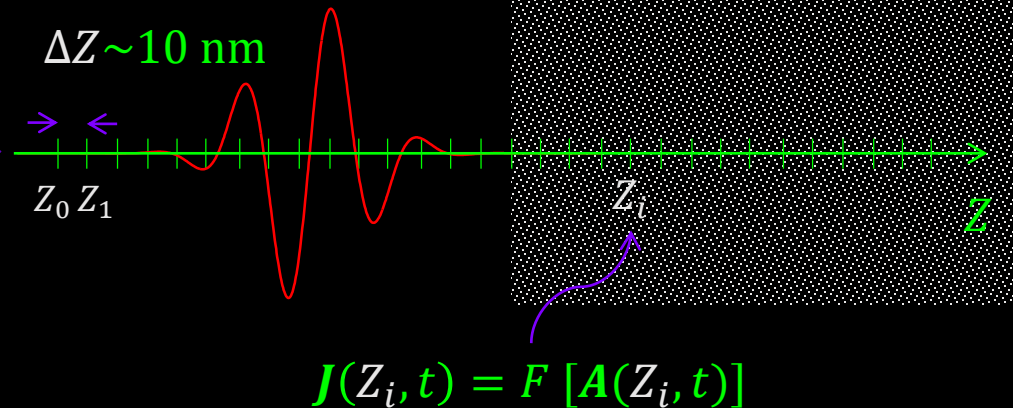
Pro: 非一様な物質中光伝播物シミュレーション

Con: 非線形光学応答への拡張性に難あり

Maxwell-TDDFT

$$\left[\frac{1}{c^2} \frac{\partial^2}{\partial t^2} - \frac{\partial^2}{\partial Z^2} \right] \mathbf{A}(Z, t) = \mu_0 \mathbf{J}(Z, t)$$

離散化



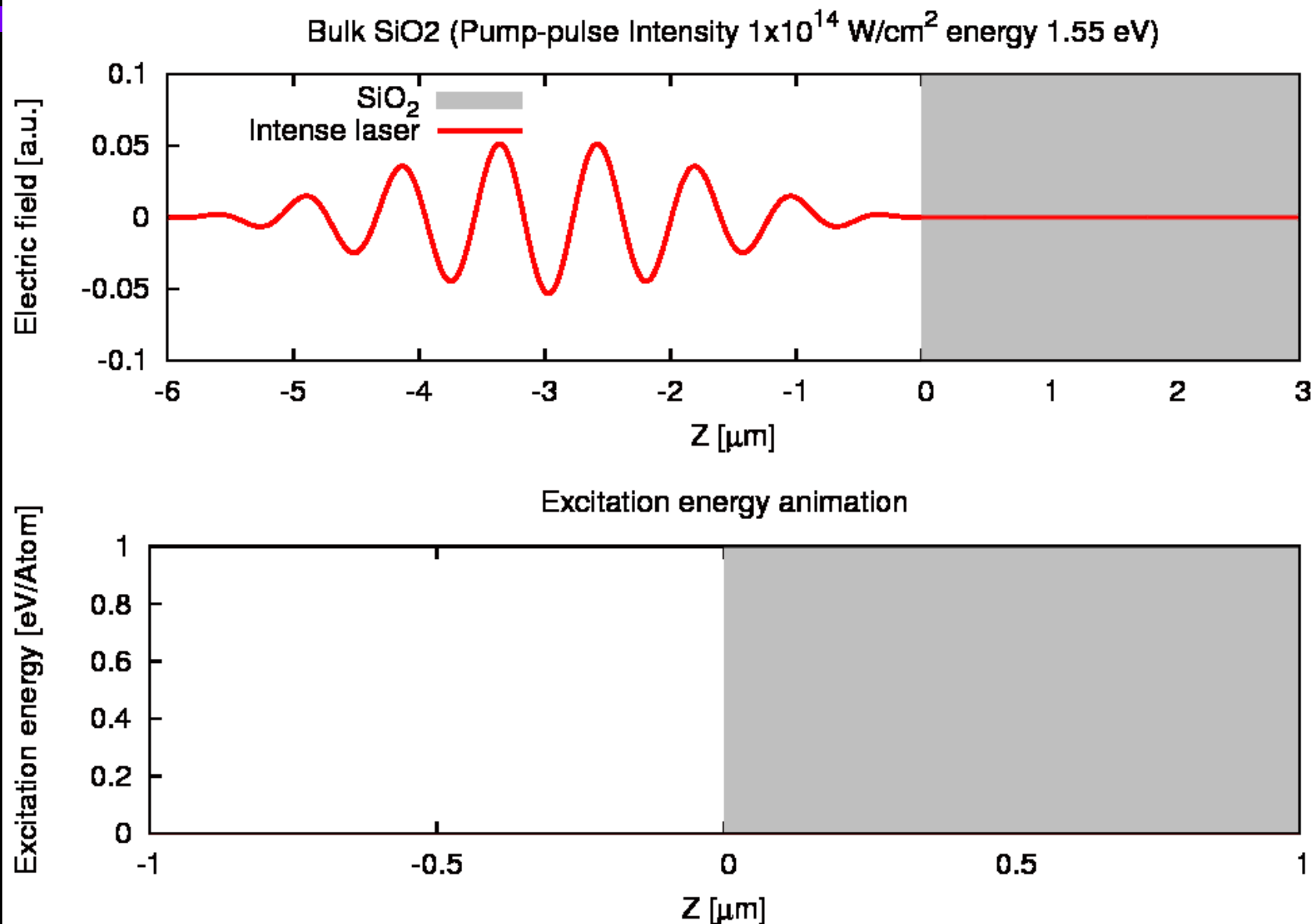
• F の計算にTDDFTを使う

$$i\hbar \frac{\partial}{\partial t} \psi_{bk}^{Z_i}(\mathbf{r}, t) = \hat{h}_{\text{KS}}^{Z_i}(t) \psi_{bk}^{Z_i}(\mathbf{r}, t), \quad \mathbf{J}(Z_i, t) = -e \sum_{bk} \langle \psi_{bk}^{Z_i}(t) | \mathbf{v} | \psi_{bk}^{Z_i}(t) \rangle$$

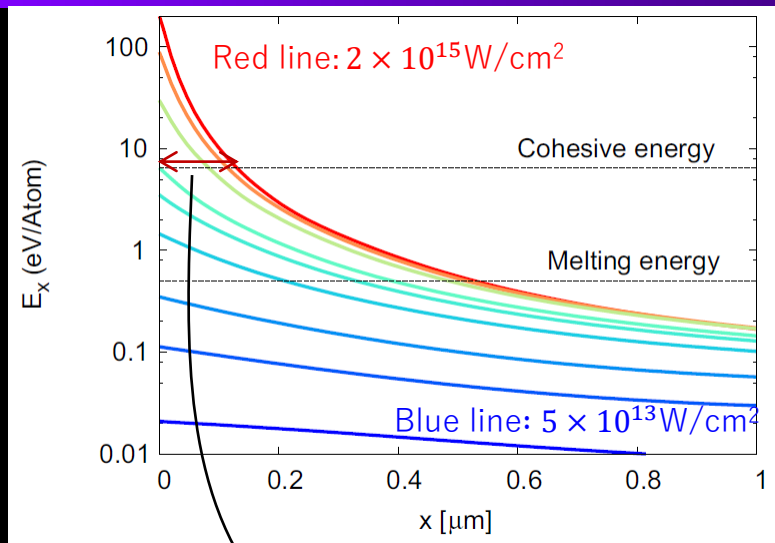
- マクログリッド上の各点でTDDFTを解く
- 異なるマクログリッド間はMaxwell方程式で古典的に結合する

物質中の高強度光伝播過程の第一原理計算
TDDFTに対して線形応答の極限をとると通常のFDTDになる
「京」クラスの計算資源により初めて可能になった

Maxwell-TDDFTの計算例(1/2)



Maxwell-TDDFTの計算例(2/2)

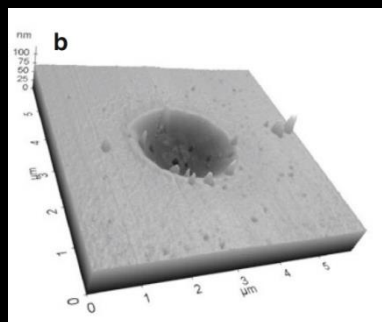
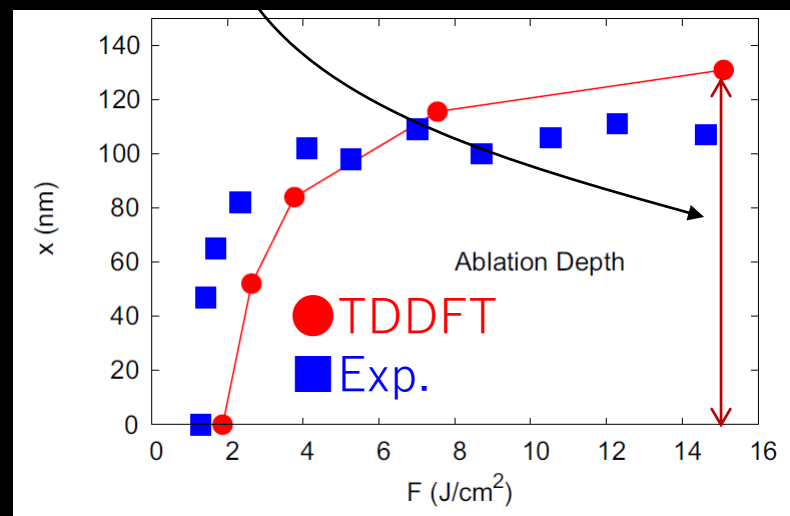


S.A. Sato, K. Yabana, Y. Shinohara, T. Otobe, K.-M. Lee, G.F. Bertsch,
Phys. Rev. B **92** (2015) 205413

蒸発：アブレーション

融解：ダメージ

吸収エネルギーが凝集エネルギーを超えた
所はアブレーションが起こると仮定



Exp.

M. Lebugle, et al,
Appl. Phys. A **114**, 129 (2014).

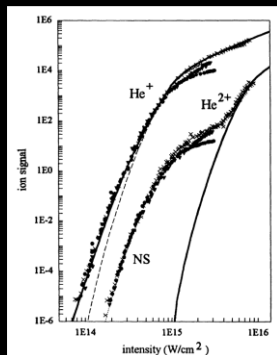
アブレーション閾値に対して定量的な一致

コンテンツ

- 導入
- Maxwell-TDDFT：空間のマルチスケール
- 固体の波動関数理論：時間のマルチスケール
池町拓也、佐藤健、石川顕一
ARTED-WF
- まとめ

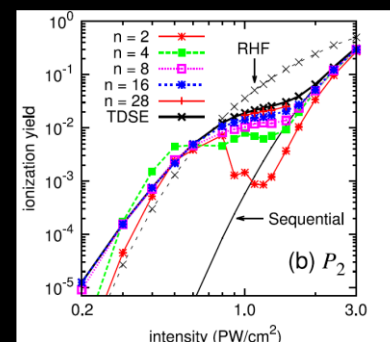
励起状態に現れる多体効果

- “平衡状態”への緩和
- 強光子場下で現れる電子散乱
 - He原子の二重イオン化



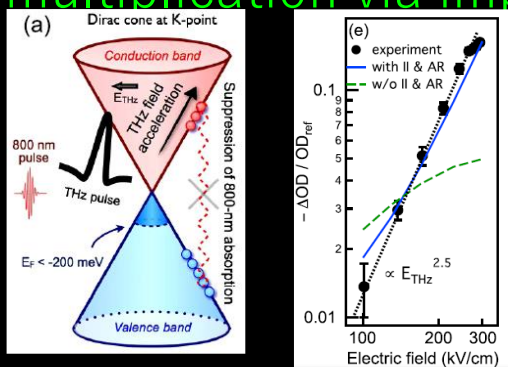
Sequential: $\text{He} \rightarrow \text{He}^+ + e^- \rightarrow \text{He}^{2+} + 2e^-$
 Non-Sequential(NS): $\text{He} \rightarrow \text{He}^{2+} + 2e^-$

B. Walker et al., Phys. Rev. Lett. **73** (1994) 1227



T. Sato and K.L. Ishikawa, J. Phys. B **47** (2014) 204031

- Carrier multiplication via impact ionization under a field



S. Tani, F. Blanchard, K. Tanaka, Phys. Rev. **109** (2012) 166603

電子散乱の記述が必要不可欠 ⇒ 波動関数理論



ポスト「京」 萌芽的研究課題

時間依存Hartree-Fock

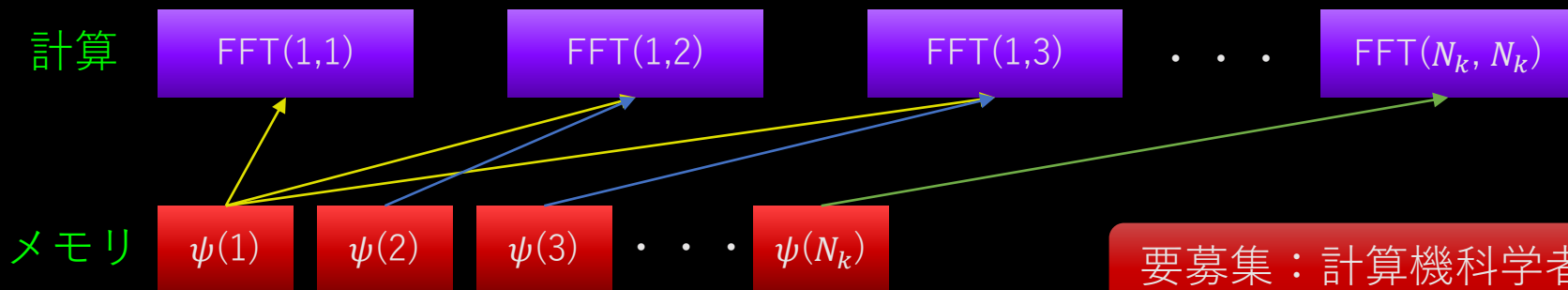
• 運動方程式

$$i \frac{\partial}{\partial t} \psi_{b\mathbf{k}}(t) = \left[\frac{1}{2} \left(\frac{\nabla}{i} + A \right)^2 + v_{\text{ext}} + v_H + \hat{v}_F \right] \psi_{b\mathbf{k}}(t)$$
$$(\hat{v}_F \psi_{b\mathbf{k}})(\mathbf{r}t) = - \sum_{b'\mathbf{k}'} \left(\int d^3r' \frac{\psi_{b\mathbf{k}}^*(\mathbf{r}'t) \psi_{b'\mathbf{k}'}(\mathbf{r}'t)}{|\mathbf{r} - \mathbf{r}'|} \right) \psi_{b'\mathbf{k}'}(\mathbf{r}t)$$

- 畳みこみ積分はFFTを利用
- 計算のスケーリング

$$o(N_G \log N_G \times N_b^2 \times N_k^2 \times N_t) \quad N_G \sim 1024, N_b \sim 4, N_k \sim 4096, N_t \sim 100000$$

- 単一時間ステップあたり、 $4^2 \times (4096)^2 / 2 = 134\text{M}$ 回のFFT
- アルゴリズムの概要： b のインデックスについてはスレッド並列化



要募集：計算機科学者のhelp

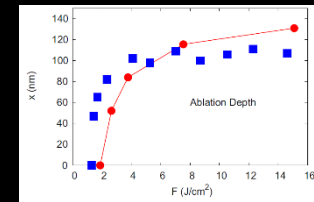
まとめ

• 強光子場現象に表れる二つのマルチスケール

• 空間自由度に対するマルチスケール

- 「京」を用いたMaxwell方程式とTDDFTとの連立による大強度光電場の物質中伝播の第一原理シミュレーション
- 物質界面のアブレーション現象との定量的な一致を見た

$$\left[\frac{1}{c^2} \frac{\partial^2}{\partial t^2} - \frac{\partial^2}{\partial Z^2} \right] \mathbf{A}(Z, t) = \mu_0 \mathbf{J}(Z, t)$$
$$i\hbar \frac{\partial}{\partial t} \psi_{bk}^{Z_i}(\mathbf{r}, t) = \hat{h}_{KS}^{Z_i}(t) \psi_{bk}^{Z_i}(\mathbf{r}, t),$$
$$\mathbf{J}(Z_i, t) = -e \sum_{bk} \langle \psi_{bk}^{Z_i}(t) | \mathbf{v} | \psi_{bk}^{Z_i}(t) \rangle$$



• 時間自由度に対するマルチスケール

- 固体の緩和過程、電子間散乱の記述が期待される波動関数理論
- 「京」、ポスト「京」を駆使することで波動関数理論を使った固体の量子ダイナミクス計算への目論見
- 時間依存Hartree-Fockへの取り組み

