

PACS-CSにおける原子核・原子・分子・光科学

矢花 一浩

計算科学研究センター・数理物質科学研究科物理学専攻
(物質・生命部門、原子核理論分野)

橋本幸男(計算科学研究センター)
中務孝(計算科学研究センター)
伊藤誠(数理物質科学研究科)

量子ダイナミクスの基礎科学に対する展開

- ・少数粒子系の厳密計算
- ・多粒子系の平均場近似計算

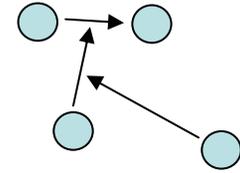
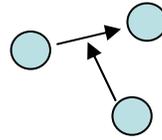
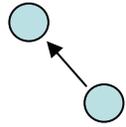
量子ダイナミクスの記述

時間依存シュレディンガー方程式

$$\left[\sum_{i=1}^N -\frac{\hbar^2}{2m} \Delta_i + V(\vec{r}_i) + \sum_{i<j}^N v(\vec{r}_i - \vec{r}_j) \right] \Psi(\vec{r}_1, \vec{r}_2, \dots, \vec{r}_N, t) = i\hbar \frac{\partial}{\partial t} \Psi(\vec{r}_1, \vec{r}_2, \dots, \vec{r}_N, t)$$

ダイナミクスの厳密な計算が可能なのは、高々数粒子系 (2, 3, 4, ...)

多粒子系の記述には、時間に依存する平均場理論
(平均場ポテンシャルを介した1粒子問題)



ヤコビ座標

$$\vec{R}_{1-2}$$

$$\vec{R}_{1-2}, \vec{R}_{12-3}$$

$$\vec{R}_{1-2}, \vec{R}_{12-3}, \vec{R}_{123-4}$$

自由度の数

1

4

7

(角運動量が保存する場合)

n粒子系: 3n-5自由度

1自由度あたりN点に分割: 波動関数のサイズ: N^{3n-5}

$$\Psi(\vec{r}_1, \vec{r}_2, \dots, \vec{r}_N, t)$$

散乱境界条件

2粒子系の場合

$$\Psi(\vec{r}) = e^{ikz} + f(\theta, \phi) \frac{e^{ikr}}{r}$$

3粒子以上

??

少数散乱問題の時間依存波束法

80年代後半から、
主に原子分子衝突の分野で発展

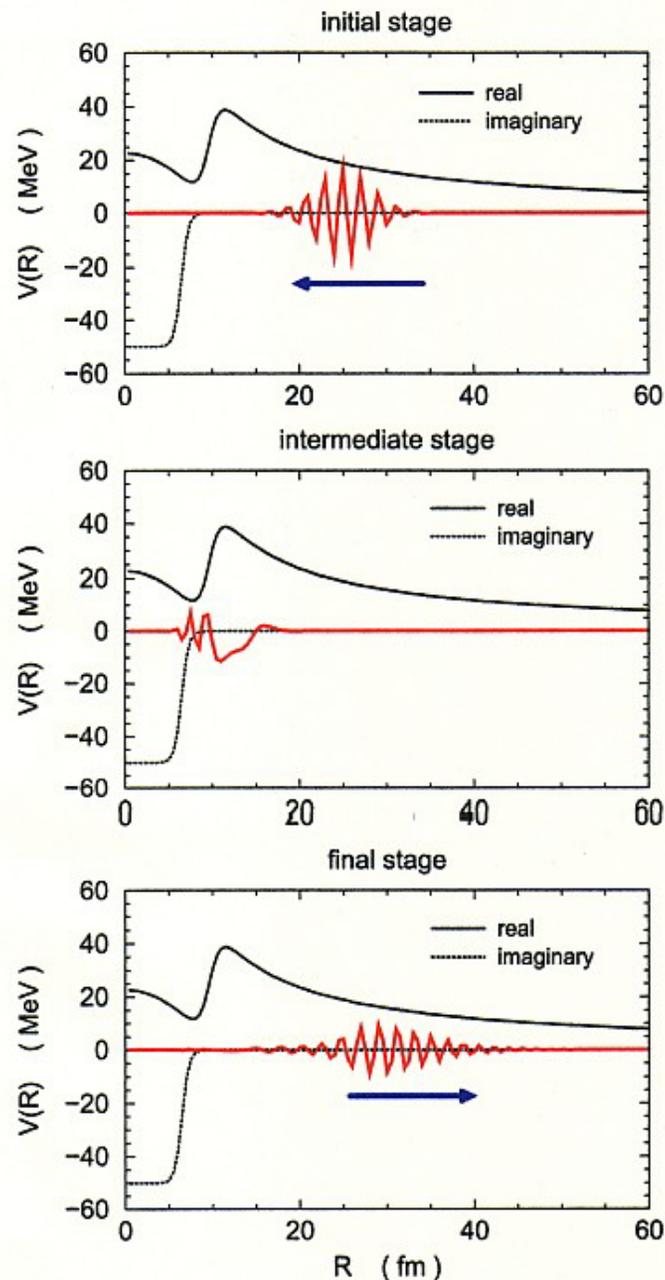
$$\left[\sum_{i=1}^N -\frac{\hbar^2}{2m} \Delta_i + V(\vec{r}_i) + \sum_{i<j}^N v(\vec{r}_i - \vec{r}_j) \right] \Psi(\vec{r}_1, \vec{r}_2, \dots, \vec{r}_N, t) = i\hbar \frac{\partial}{\partial t} \Psi(\vec{r}_1, \vec{r}_2, \dots, \vec{r}_N, t)$$

$$\Psi(\vec{r}_1, \vec{r}_2, \dots, \vec{r}_N, t) = \Phi(\vec{r}_1, \vec{r}_2, \dots, \vec{r}_N) e^{-iEt/\hbar}$$

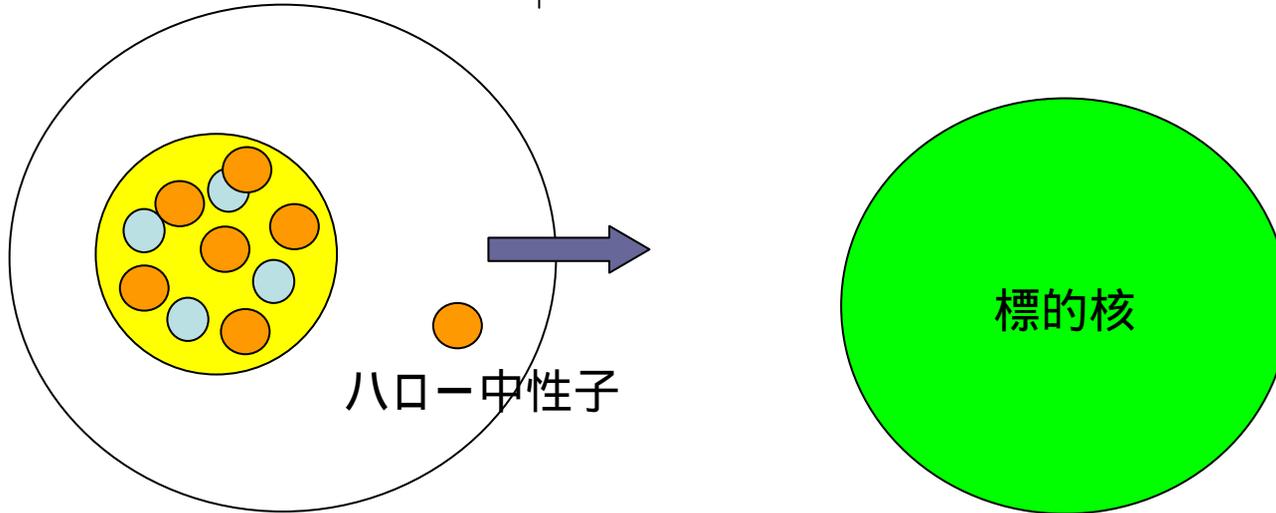
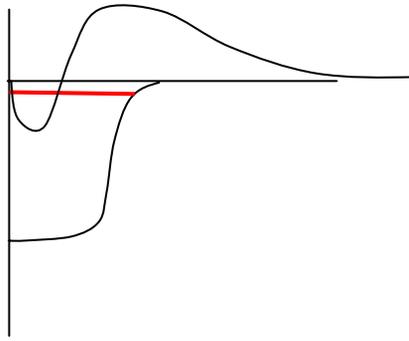
$$\left[\sum_{i=1}^N -\frac{\hbar^2}{2m} \Delta_i + V(\vec{r}_i) + \sum_{i<j}^N v(\vec{r}_i - \vec{r}_j) \right] \Phi(\vec{r}_1, \vec{r}_2, \dots, \vec{r}_N) = E\Phi(\vec{r}_1, \vec{r}_2, \dots, \vec{r}_N)$$

変数分離できる問題を、なぜ時間依存で解くのか？

- ・散乱境界条件は考えなくて良い。
- ・ダイナミクスが分かりやすい。
- ・様々なエネルギーの情報が一度に得られる。



3体波束散乱計算の例： ハロー核の反応



原子核に中性子を次々に加えていくと、
最後の中性子はトンネル現象で拡がる。

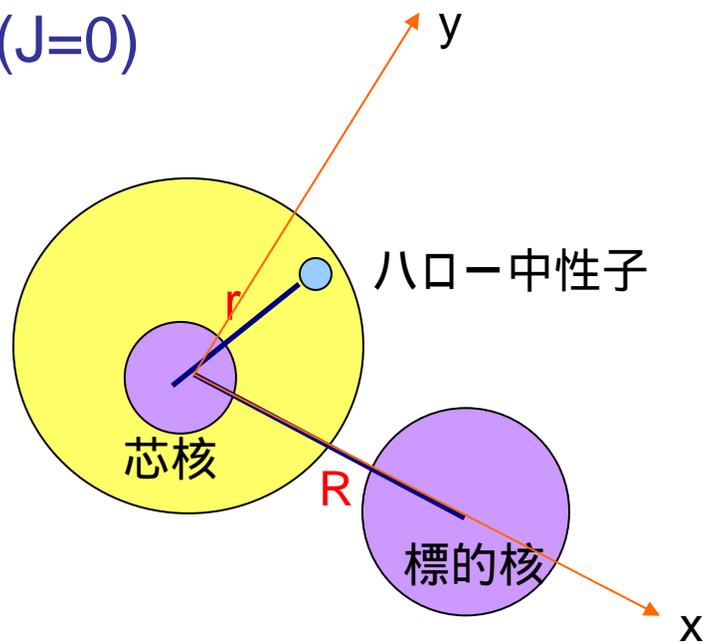
このような原子核の融合反応はどのように起こるのか？

$^{11}\text{Be}(n+^{10}\text{Be})\text{-}^{208}\text{Pb}$ head-on collision ($J=0$)

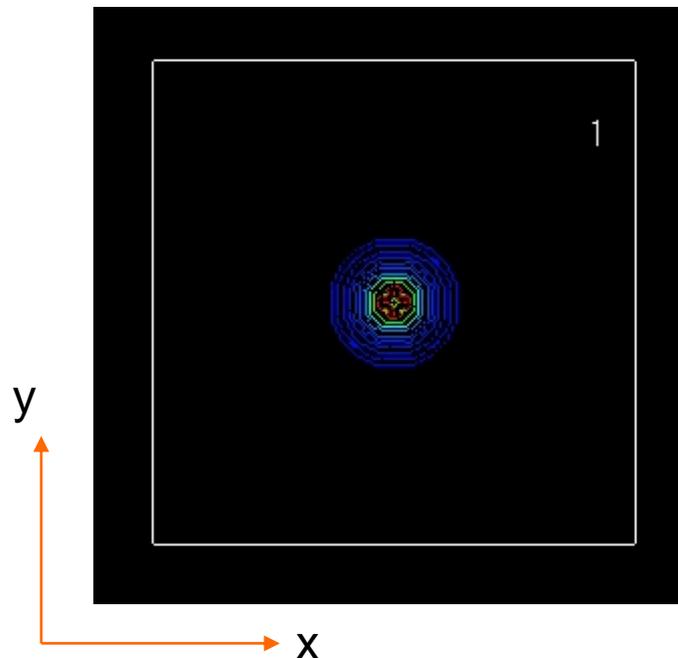
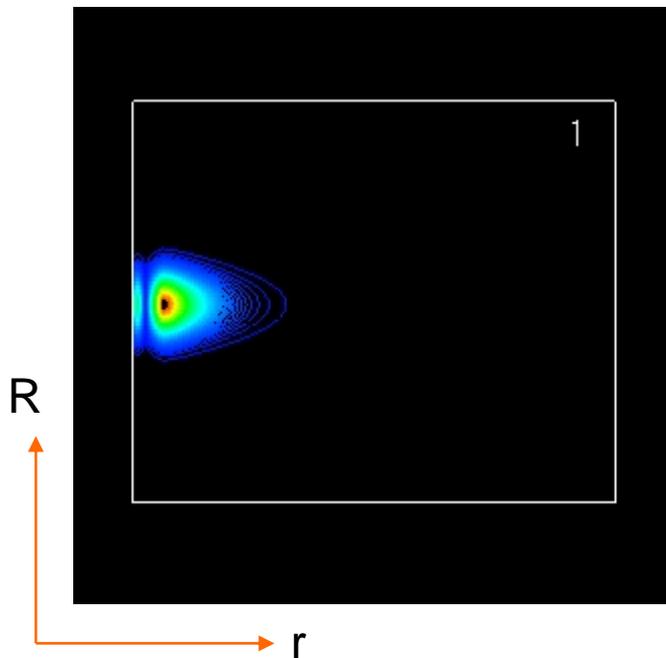
物体固定系での部分波展開

$$\psi_{JM}(\vec{R}, \vec{r}, t) = \sum_{J\Omega l} \frac{u_{\Omega l}^J(R, r, t)}{Rr} \Theta^{\Omega l}(\theta) D_{\Omega M}^J(\alpha\beta\gamma)$$

- ・差分法 (離散変数表示) : R, r
- ・部分波展開: 収束するまで取る (最大で $l_{\max}=70$)
- ・時間発展演算子のテイラー展開 (TDHFで用いている方法)

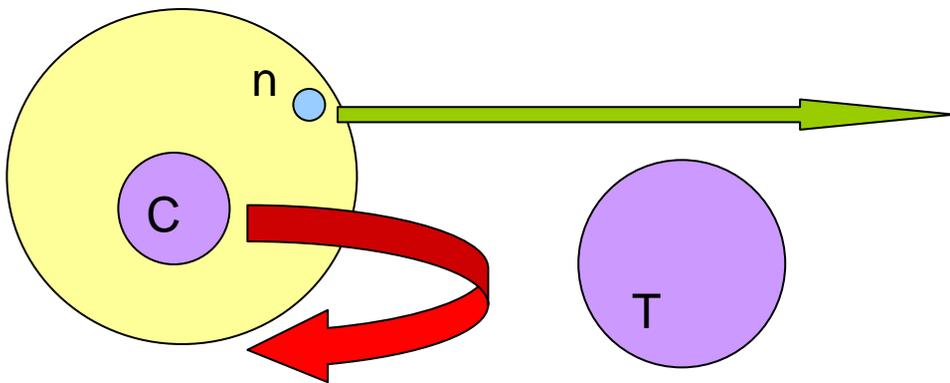


$$\rho(R, r, t) = \int d(\cos\theta) |\psi(R, r, \theta, t)|^2$$



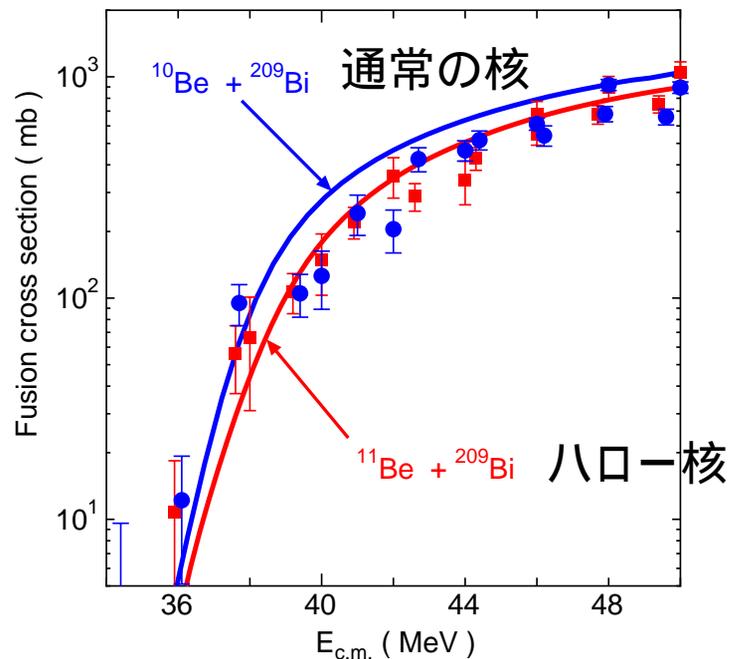
計算の結果は:

弱く束縛した中性子は素通りするだけで、
反応の大勢には無関係



核融合反応の断面積

Three body full calculation of $^{11}\text{Be} + ^{209}\text{Bi}$

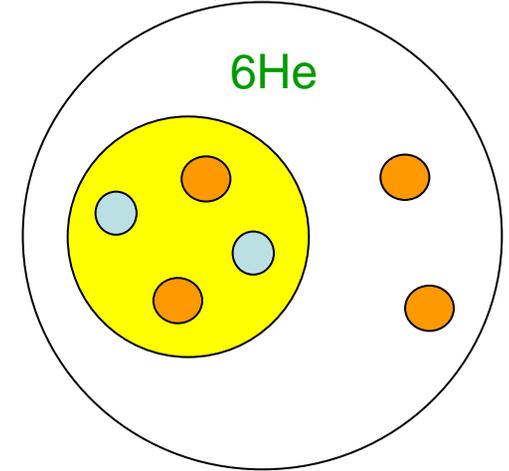


Experiment

C. Signorini et.al, Nucl. Phys. 735 (2004) 329.

実験的には、

長い間、多くの測定で核融合反応断面積の大幅な増大が報告されてきた。
しかし、最近...

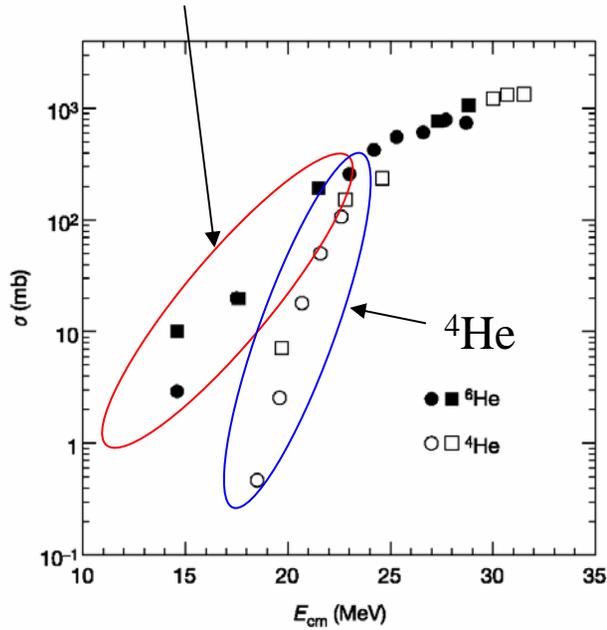


${}^6\text{He}$, ${}^4\text{He}$ - ${}^{238}\text{U}$ 融合断面積測定

4年前

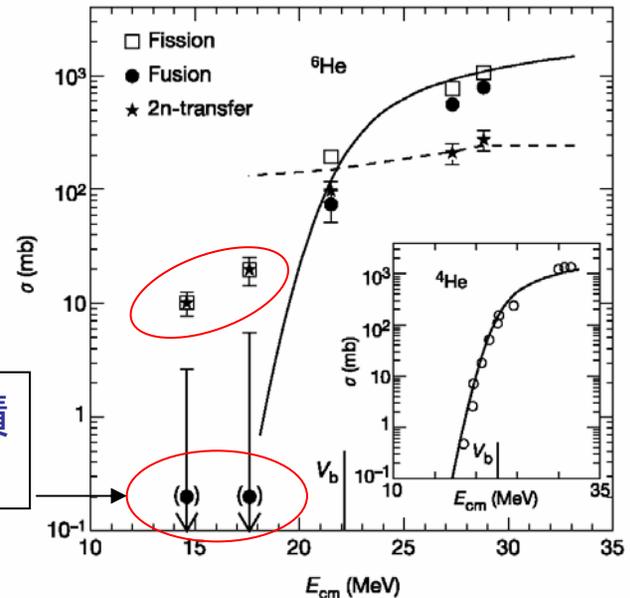
${}^6\text{He} + {}^{238}\text{U}$ M. Trotta et.al, PRL84(2000)2342.

${}^6\text{He}$, 核分裂を伴う反応が大きい



昨年

${}^6\text{He} + {}^{238}\text{U}$ R. Raabe et.al, Nature 431(2004, Oct.) 823.



融合断面積
は無い。

多粒子の量子ダイナミクス： 平均場近似が不可欠

静的な問題： 密度汎関数法の成功 (電子系、原子核、液体ヘリウム)

多電子ダイナミクスの第一原理計算

時間依存密度汎関数法

TD DFT (Time-dependent density functional theory)

静的な理論 (電子基底状態) から、
動的な問題 (電子励起状態、衝突現象の電子ダイナミクス) へ

時間依存Kohn-Sham方程式

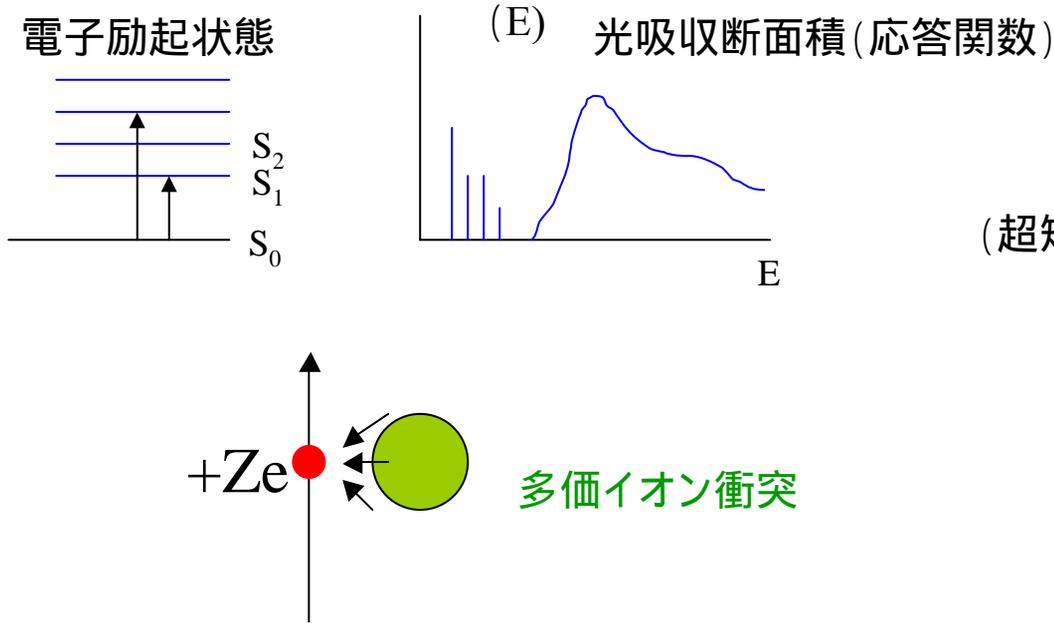
$$\left\{ -\frac{\hbar^2}{2m} \bar{\nabla}^2 + \sum_a V_{ion}(\vec{r} - \vec{R}_a) + e^2 \int d\vec{r}' \frac{n(\vec{r}', t)}{|\vec{r} - \vec{r}'|} + \underbrace{\mu_{xc}(n(\vec{r}, t))}_{\text{green}} + \underbrace{V_{ext}(\vec{r}, t)}_{\text{red}} \right\} \psi_i(\vec{r}, t) = i\hbar \frac{\partial}{\partial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

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

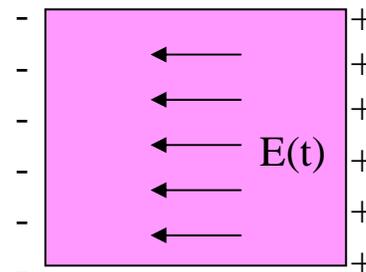
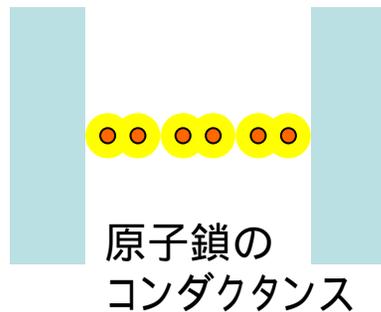
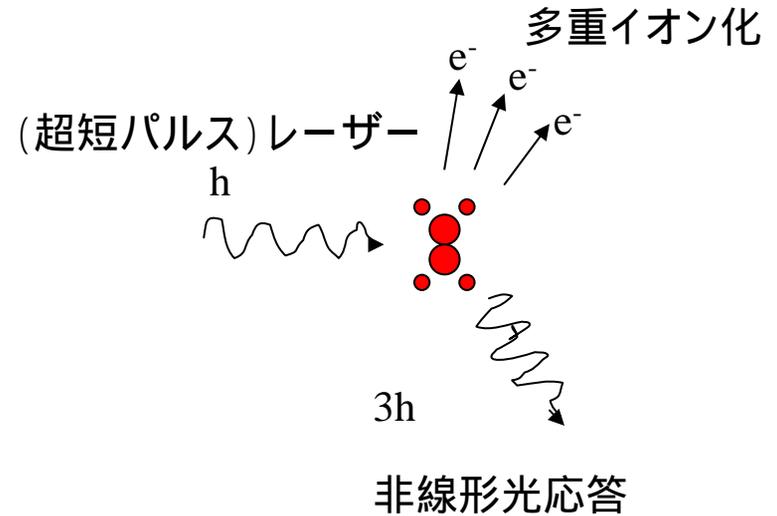
局所ポテンシャルを持つ1電子の時間依存Schroedinger方程式
を解くことで、多電子ダイナミクスを記述できる。

TD-DFTによる様々な多電子ダイナミクスの記述

原子・分子・クラスター科学



強光子場科学



固体の光応答
誘電率、プラズマ振動

弱い外場のダイナミクス： 実時間での線形応答計算

K. Yabana, G.F. Bertsch, Phys. Rev. B54, 4484 (1996).

1. 弱いパルス電場 $t=0$

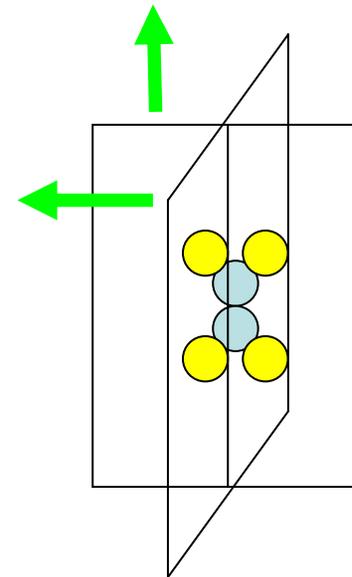
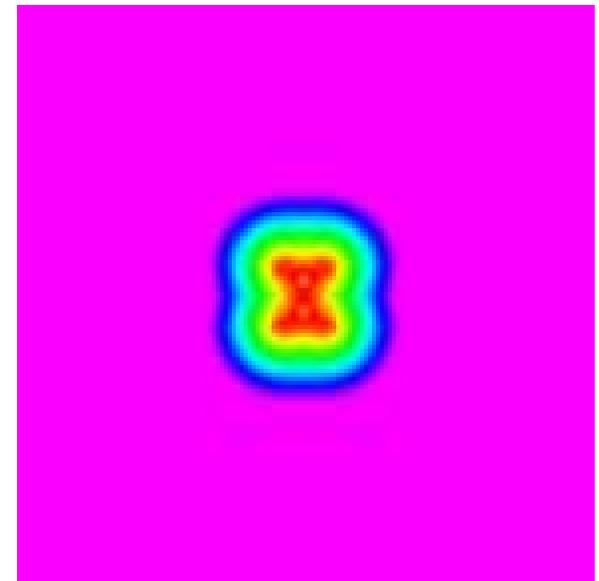
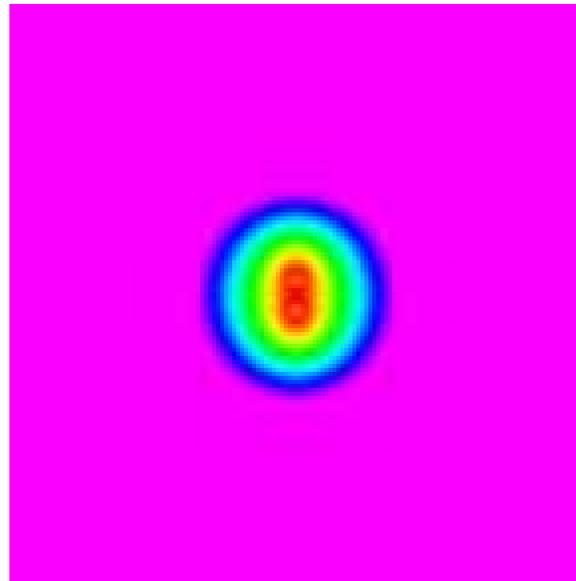
$$V_{ext}(\vec{r}, t) = -kz\delta(t)$$

2. 双極モーメントの実時間発展 $d(t)$

$$d(t) \propto \int d\vec{r} zn(\vec{r}, t)$$

3. 時間・振動数フーリエ変換

$$\alpha(\omega) \propto \int_0^T dt e^{i\omega t} d(t)$$



エチレン分子
電子密度の時間発展

1. 弱いパルス電場 $t=0$

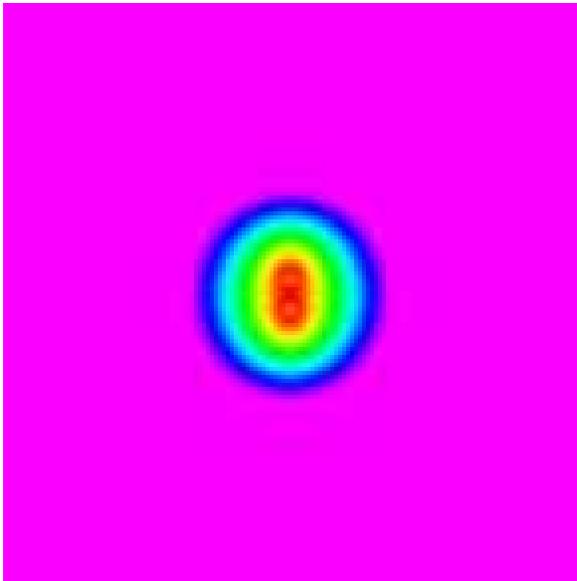
$$V_{ext}(\vec{r}, t) = -kz\delta(t)$$

2. 双極モーメントの実時間発展 $d(t)$

$$d(t) \propto \int d\vec{r} z n(\vec{r}, t)$$

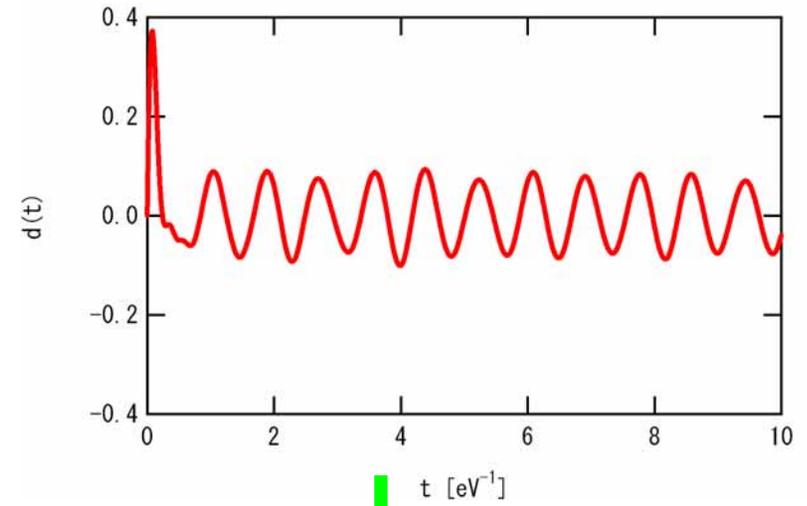
3. 時間・振動数フーリエ変換

$$\alpha(\omega) \propto \int_0^T dt e^{i\omega t} d(t)$$

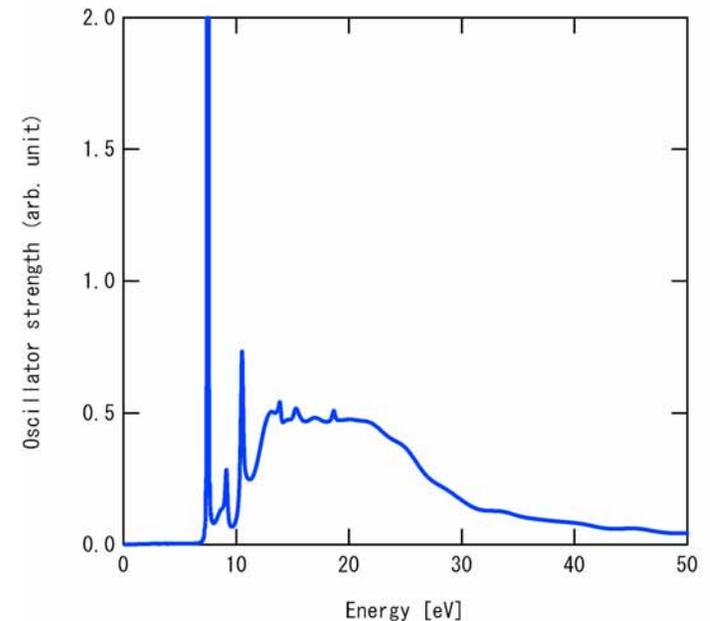


単一の実時間計算から全スペクトルが得られる

双極モーメント $d(t)$

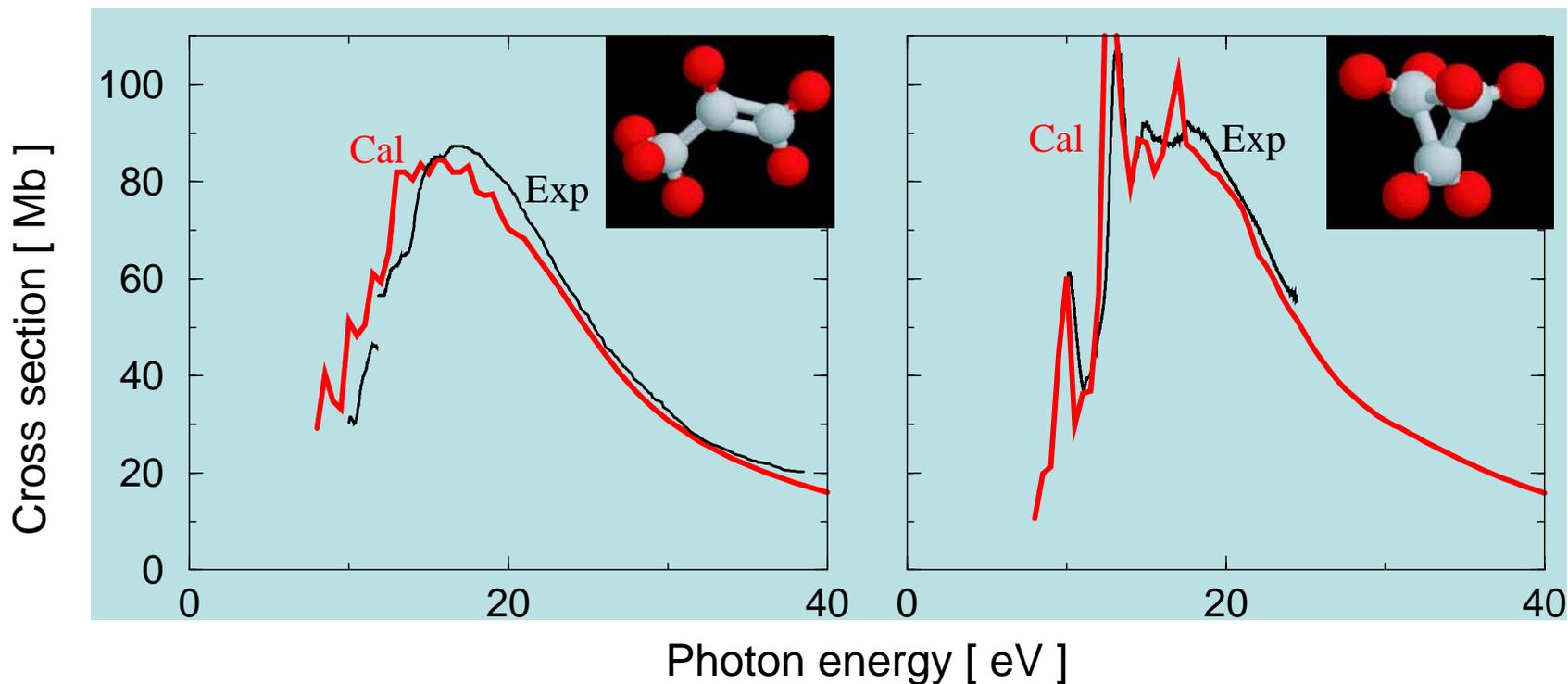


振動子強度



光学異性体 C_3H_6 の光吸収 (実空間応答関数計算、 $O(N^2)$)

T. Nakatsukasa & K. Yabana, Chem. Phys. Lett. 374 (2003) 613.



Exp: K. Kameta, K. Muramatsu, S. Machida, N. Kouchi, Y. Hatano, J. Phys. B32(1999)2719.

掌性のある分子の光学活性

旋光強度

$$R(E) = -\frac{e^2\hbar}{2mc} \sum_n \left(\frac{1}{E_{n0} - E - i\delta} - \frac{1}{E_{n0} + E + i\delta} \right) \langle \Phi_0 | \sum_i \vec{r}_i | \Phi_n \rangle \cdot \langle \Phi_n | \sum_i \vec{r}_i \times \vec{\nabla}_i | \Phi_0 \rangle$$

円2色性

(Circular Dichroism)

$$\Delta\varepsilon \propto \text{Im}(n_L - n_R)$$

$$\propto \text{Im} R(E)$$

旋光性

(Optical Rotatory Power)

$$[\alpha] \propto \frac{1}{\lambda} \text{Re}(n_L - n_R)$$

$$\propto E \text{Re} R(E)$$

双極場と磁気モーメントの時間相関関数

$$\psi_i(\vec{r}, t=0) = \exp[ikz] \phi_i(\vec{r})$$

$$L_z(t) = \sum_i \langle \psi_i(t) | -i(\vec{r} \times \vec{\nabla}) | \psi_i(t) \rangle$$

$$R_z(E) = \frac{e^2\hbar}{2mc} \frac{i}{\hbar k} \int_0^\infty dt e^{iEt/\hbar} L_z(t)$$

例：最小のキラル・フラーレン

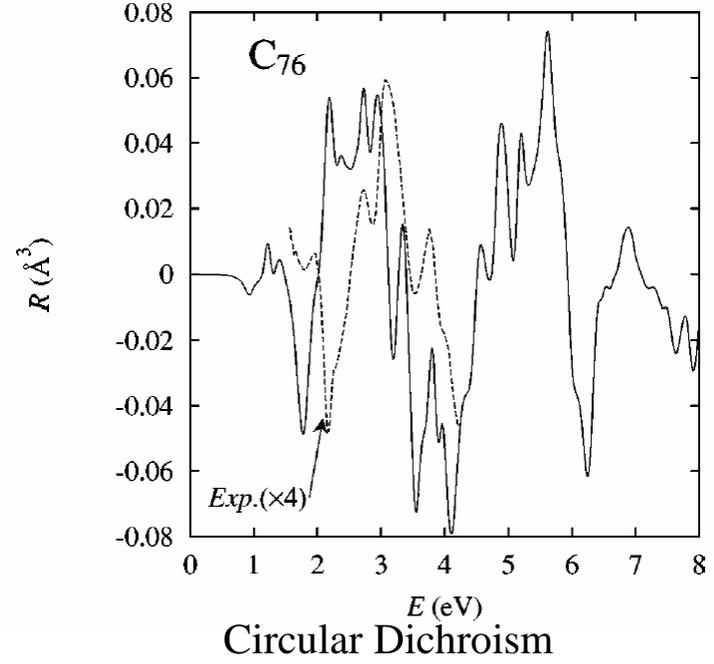
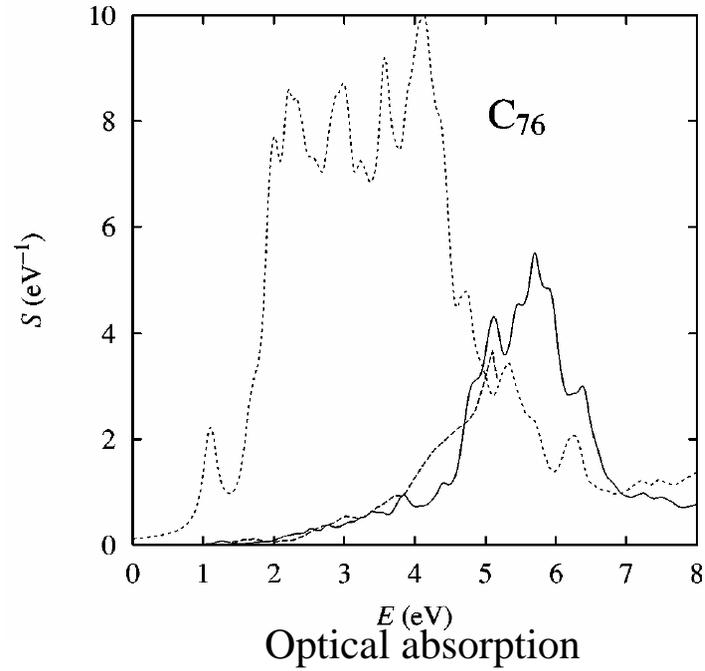
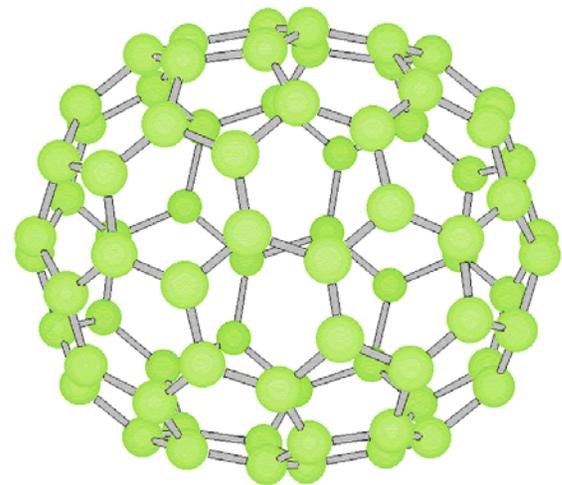
$C_{76} D_{2d}$

Isolation

R.Ettl et al, Nature353(91)149

Separation of chiral isomer

J.M.Hawkins et al, Science260(93)1918



強レーザー場と分子の相互作用

摂動領域 ← → 非摂動領域

束縛電子運動

自由電子運動

多光子イオン化

高次高調波発生

トンネルイオン化

クーロン爆発

線形応答

非線形感受率
(超分極率)

相対論

Hard X
 Rays

Multi - Mev
 Electron

10^{13}
(=0.8V/Å)

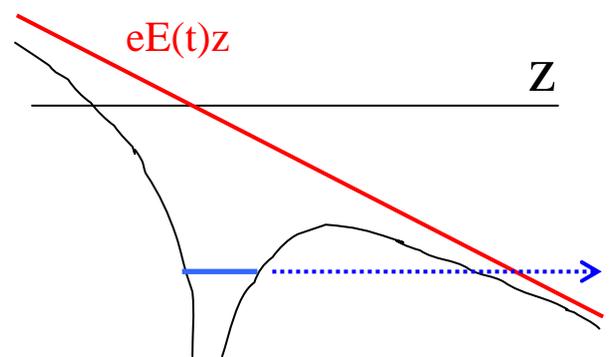
10^{15}
(=8.7V/Å)

10^{18} W/cm²

強レーザー場中の電子運動: 非線形・非断熱ダイナミクス

電場強度: E [eV/Å] ~ 物質中のイオンからの束縛電場

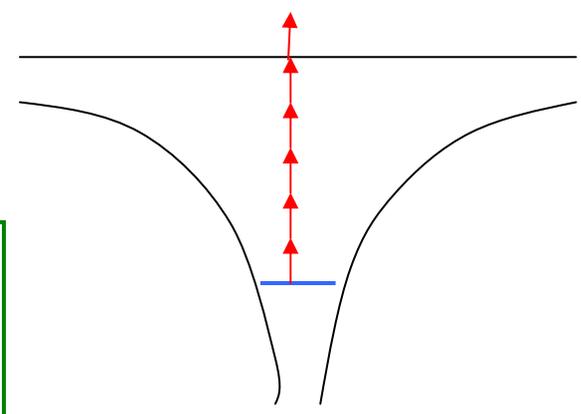
振動数: $\hbar\omega$ ~ 電子励起エネルギー (HOMO-LUMOギャップ)



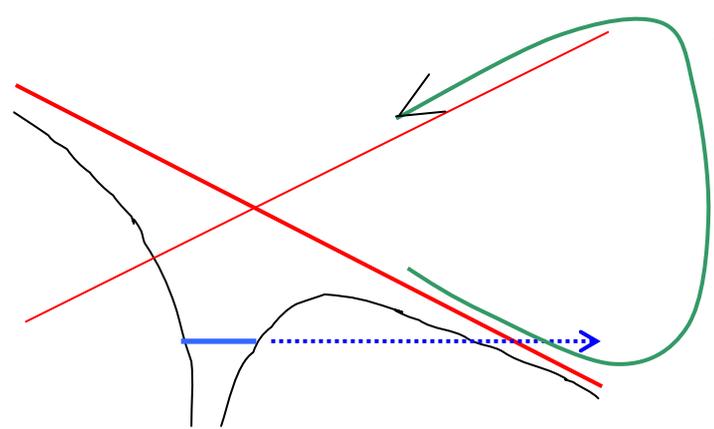
ゆっくり変動する場
トンネルイオン化

Keldysh パラメータ

$$\gamma = \tau_{tunnel} \omega_{laser}$$



速い場の変動
多光子イオン化

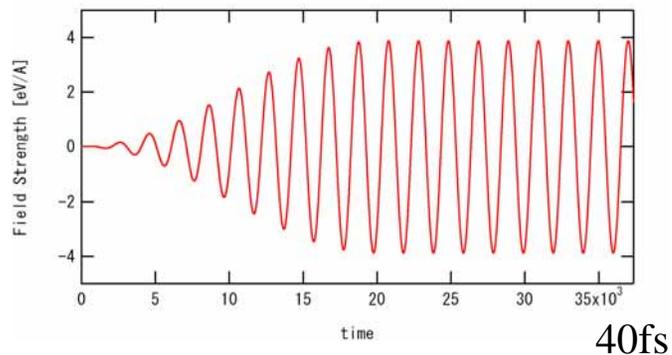


再散乱過程: 電子構造の新しいプローブとして期待

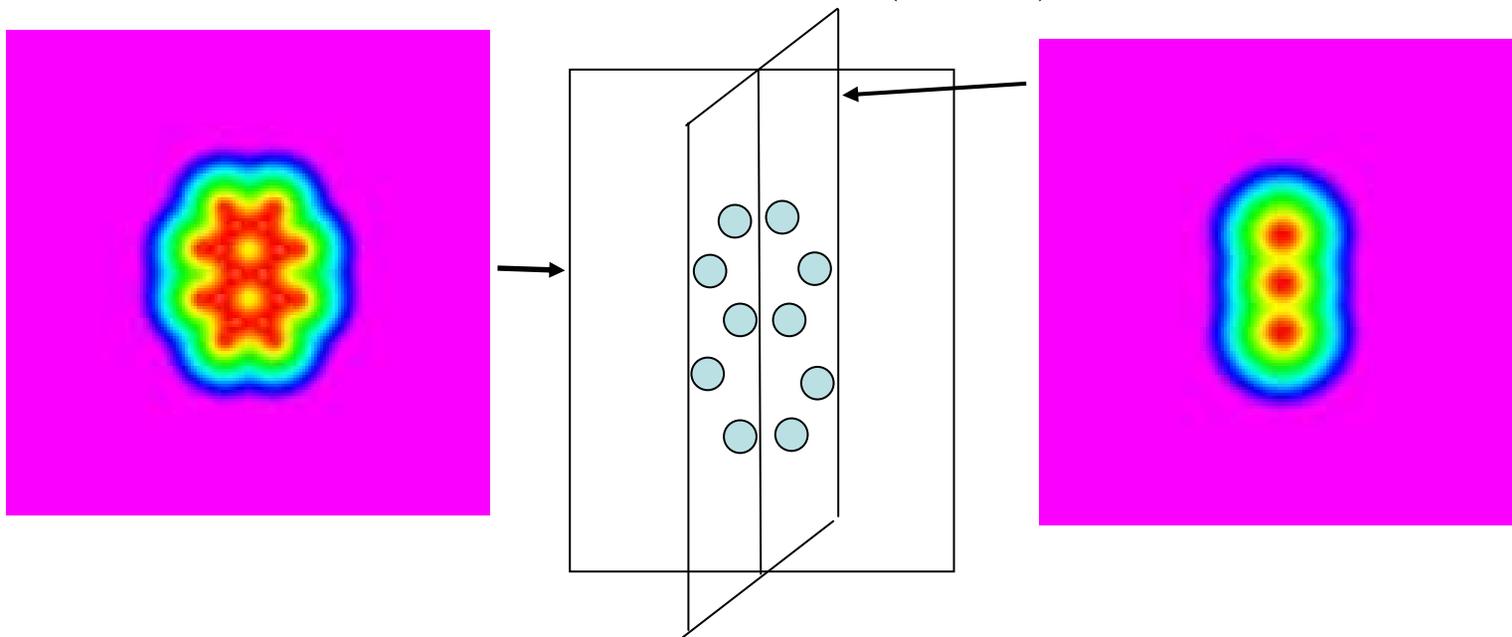
トンネルイオン化により分裂した波束が
電場により再加速



分子のイオン化メカニズム: ナフタレンを例にとって



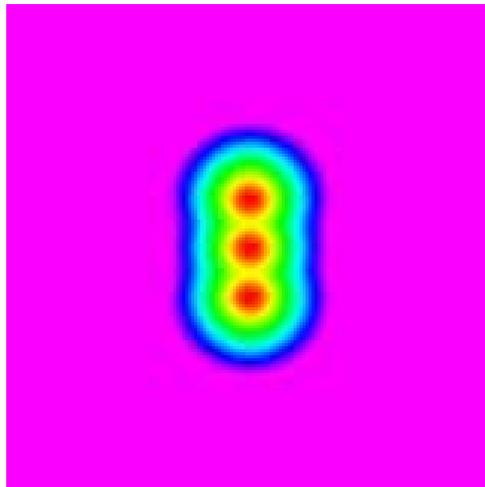
$2.5 \times 10^{13} \text{W/cm}^2$, 800nm (1.55eV)



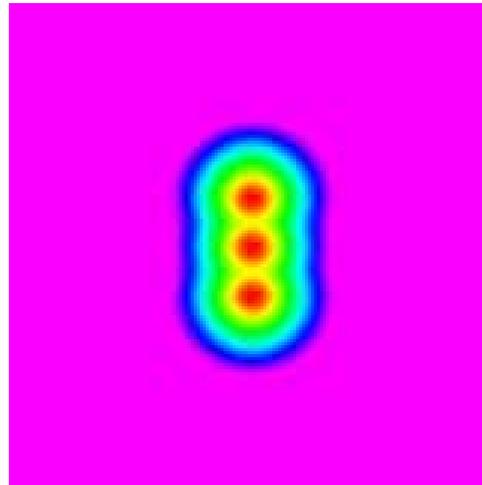
振動数によるイオン化機構の変化: トンネルから多光子へ

$2.5 \times 10^{13} \text{W/cm}^2$

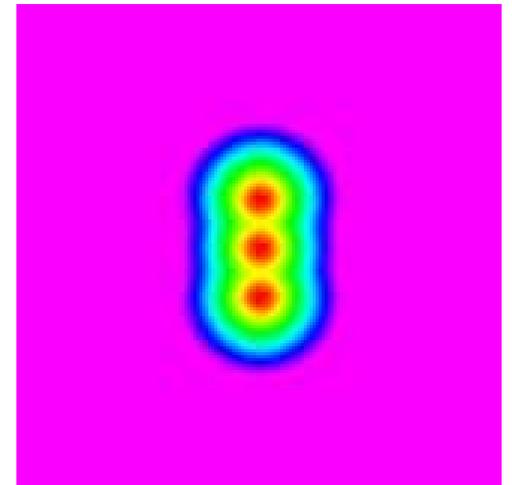
1600nm (0.78eV)



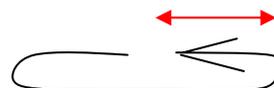
800nm (1.55eV)



400nm (3.1eV)

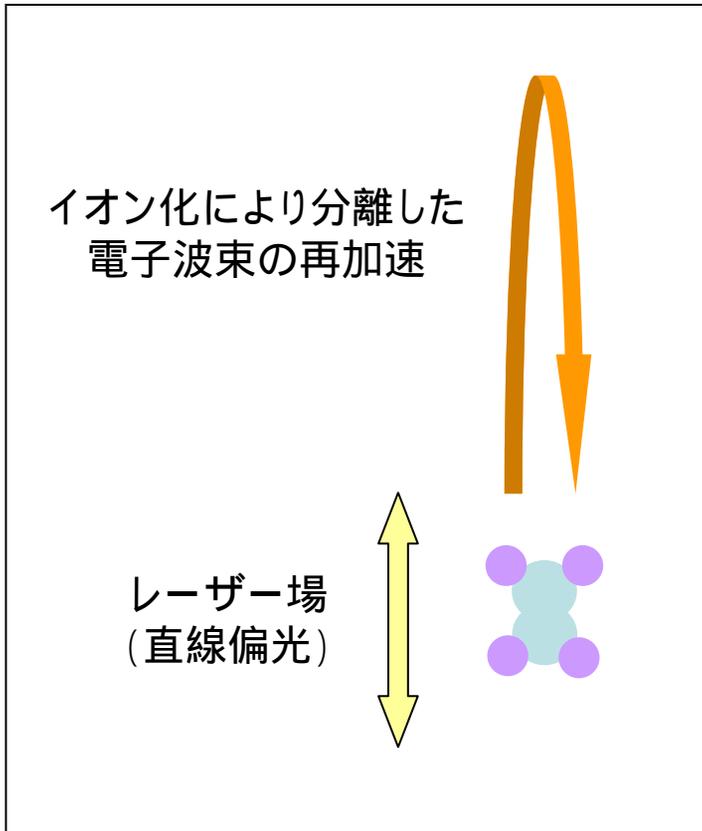


Jitter radius $E_0/L^2=4.3$



高次高調波発生 (HHG: High Harmonic Generation)

再散乱電子
ナノ物質を探る新しいプローブとして期待



J. Itatani et.al, Nature, 2004 Dec.
Tomographic imaging of molecular orbitals (分子軌道関数のトムグラフィー)

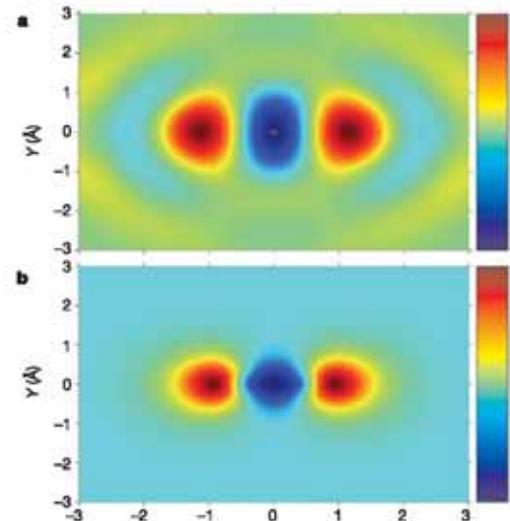
J. Itatani^{1,2}, J. Levesque^{1,3}, D. Zeidler¹, Hiromichi Niikura^{1,4}, H. Pépin³, J. C. Kieffer³, P. B. Corkum¹ & D. M. Villeneuve¹

¹National Research Council of Canada, 100 Sussex Drive, Ottawa, Ontario K1A 0R6, Canada

²University of Ottawa, 150 Louis Pasteur, Ottawa, Ontario K1N 6N5, Canada

³INRS- Energie et Matériaux, 1650 boulevard Lionel-Boulet, CP 1020, Varennes, Québec J3X 1S2, Canada

⁴PRESTO, Japan Science and Technology Agency, 4-1-8 Honcho Kawaguchi Saitama, 332-0012, Japan



高次高調波による
N₂ HOMO軌道の再構成
(Molecular Tomography)

Ab-initio計算による
N₂ HOMO

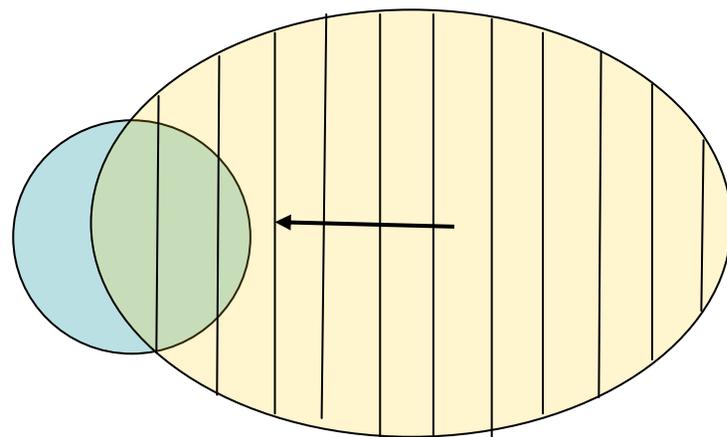
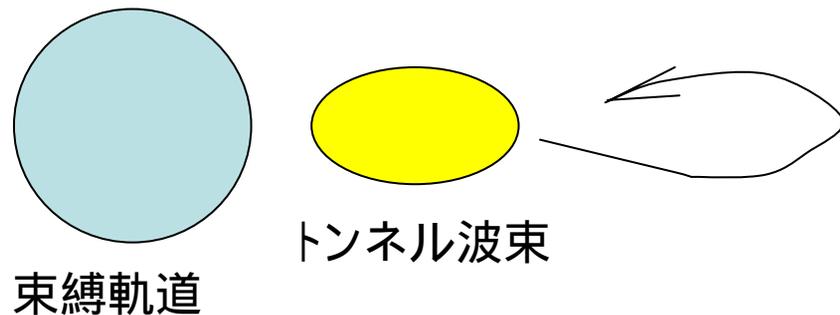
高次高調波発生 の 量子力学

$$\psi(t) = \alpha\phi + \beta e^{i\vec{k}\cdot\vec{r} - iE_k t/\hbar}$$

$$d(t) = \langle \psi(t) | z | \psi(t) \rangle \approx \langle \phi | z | e^{i\vec{k}\cdot\vec{r} - iE_k t/\hbar} \rangle + cc$$

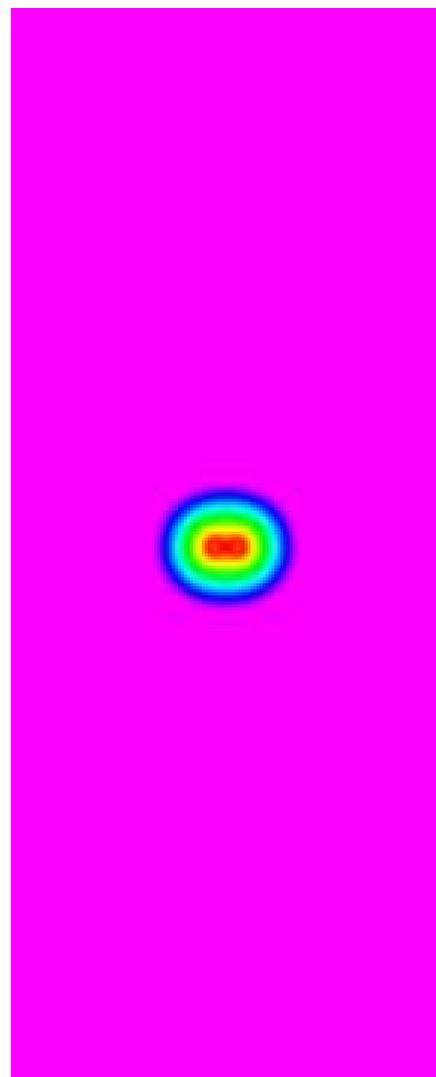
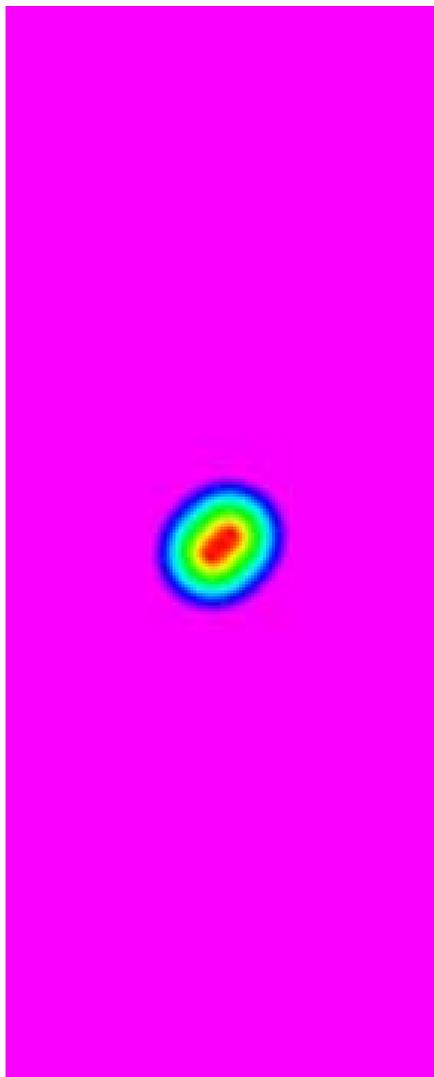
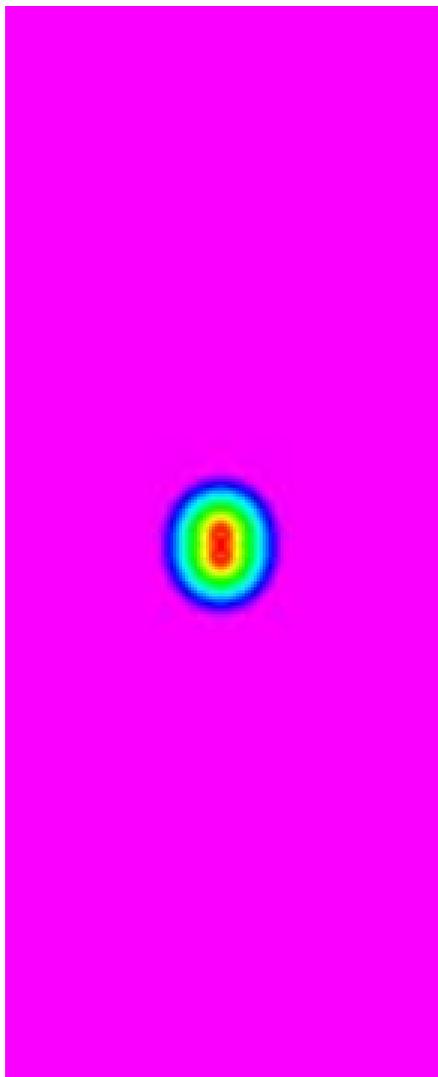
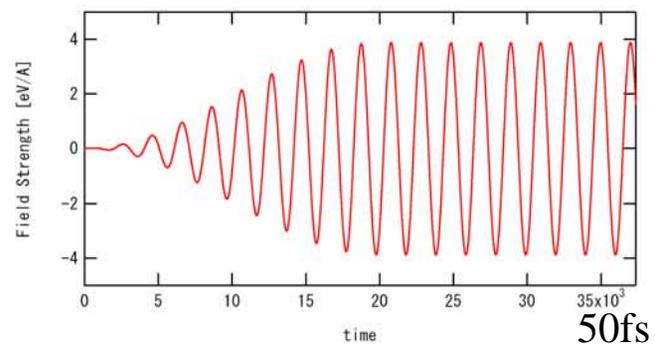
$$I(\omega) \propto \left| \int dt e^{i\omega t} d_A(t) \right|^2$$

高次高調波は、
束縛波動関数のフーリエ変換
の情報を持つ。



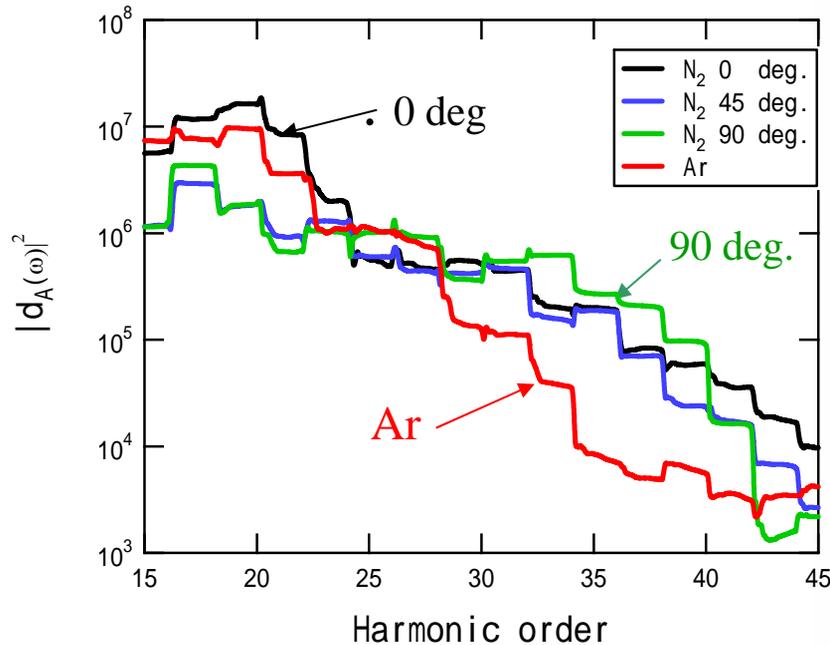
散乱面(レーザー偏極と分子軸の作る面)での電子密度

N_2 分子 $2 \times 10^{14} \text{W/cm}^2$, 800nm laser



配向した分子の高次高調波：測定と計算

時間依存密度汎関数法による
第一原理計算



Molecular Tomographyに用いられた
配向した N_2 分子の高次高調波

J. Itatani et.al, Nature 432(2004)867

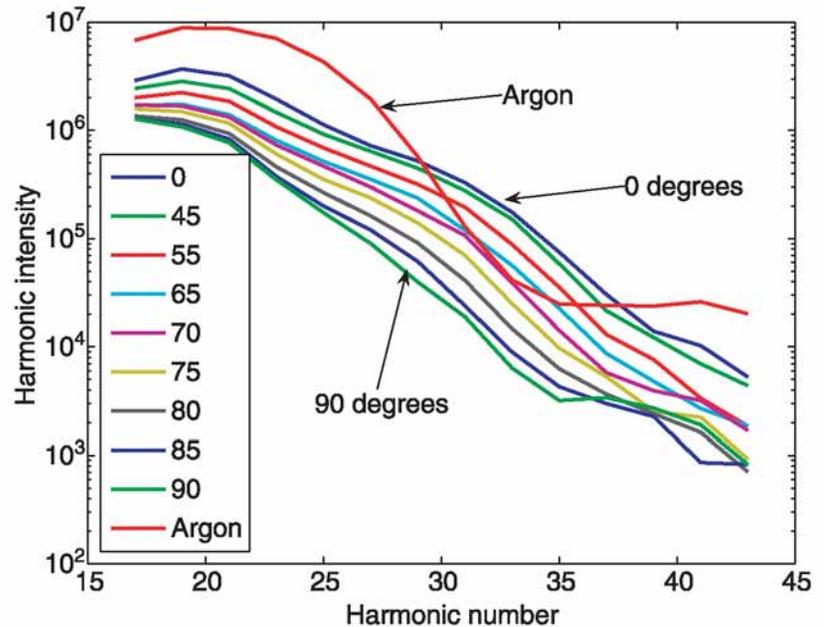


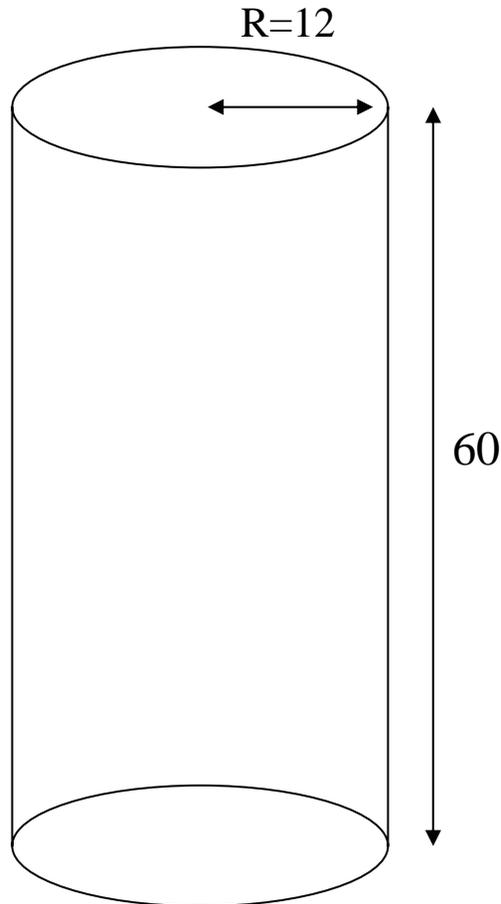
Figure 3 High harmonic spectra were recorded for N_2 molecules aligned at 19 different angles between 0 and 90° relative to the polarization axis of the laser. For clarity, only some of the angles have been plotted above. The high harmonic spectrum from argon is also shown; argon is used as the reference atom. Clearly the spectra depend on both the alignment angle and shape of the molecular orbital.

Time-dependent Kohn-Sham equation

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

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

simple local-density approximation



3D uniform Cartesian grid points
inside cylinder

Absorbing potential of 4 thick

Grid size 0.3

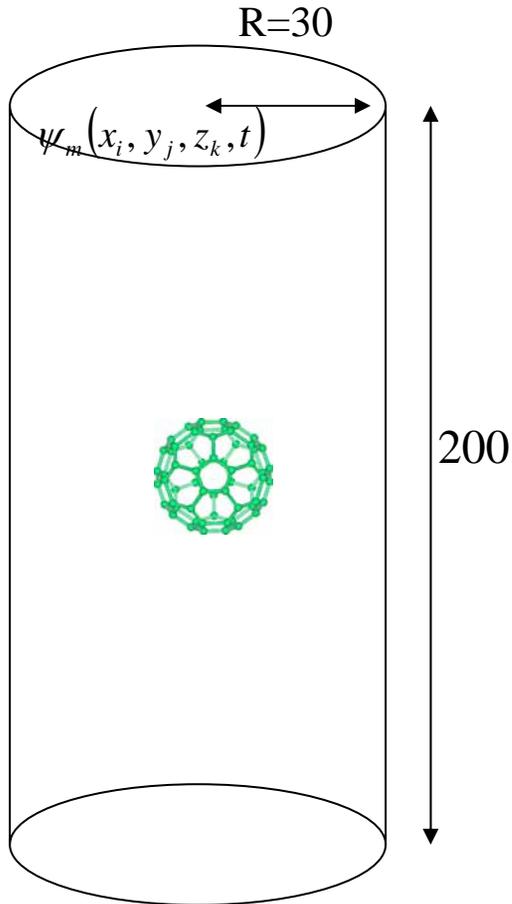
of points: approx. 1,000,000

Time step: 30000 for 40fs

30h by Hitachi SR11000 1-node (600Gflops)
(NAREGI project)

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

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



軌道の数 m 電子数に比例 120
 空間格子の数 i, j, k 系のサイズ(電子数)に比例
 20,000,000

Memory : 20M x 120 x 16byte = 40GB

CPU time: 500h (20Tflops)

まとめ

量子ダイナミクス計算による原子核、原子・分子・光科学の基礎研究

原子核物理

- ・少数系の構造
- ・様々な相関構造を記述する理論

レーザー科学

- ・フェムト秒、アト秒レーザー、実時間電子ダイナミクス
- ・光応答(分子、ナノ物質)

PACS-CS: まずは、実時間・実空間 - 密度汎関数法計算を並列化

緩やかなサイズスケーリング $O(N^2)$
空間領域の分割による並列化

さまざまなAMO基礎科学、物性計測への応用