

レーザー場中にある固体電子の励起過程の 第一原理シミュレーション

(原子力機構¹、筑波大数物科²、筑波大計科セ³)
○乙部智仁¹、矢花一浩^{2,3}、岩田潤一³

【序】大強度超短パルスレーザーの発展により非常に強いレーザー場中での原子・分子の振る舞いが明らかになってきており、レーザーによる分子のコントロールが盛んに研究されている。更に近年、固体中電子のレーザーによる励起及びそのコントロールへと発展している。一方、アト秒 (10^{-18} sec) 領域のコヒーレントな光源を使った電子ダイナミクスの実時間観測の可能性が出てきており、固体中電子の励起過程及びダイナミクスの実時間観測を目指した研究が盛んに提案されている。

しかし、強いレーザー場中での固体電子の計算は解析的手法によるモデル計算が主であり、分子系でされているような第一原理計算シミュレーションは殆どされていない。バンドギャップをもつ物質はバンド構造や電子状態密度がその物性を支配しており量子力学に基づいた実時間シミュレーションの必要が高まっている。本研究では時間依存密度汎関数法

(TDDFT) の基礎方程式である時間依存 Kohn-Sham 方程式 (TDKS) を実時間・実空間法で解くことで大強度超短パルス中での透明素材の電子励起過程及び電子ダイナミクスを第一原理シミュレーションを可能とし、その基礎課程の理解を目指した。

【計算方法】固体電子に対する TDKS 方程式は

$$i\hbar \frac{\partial}{\partial t} \psi(\vec{r}, t) = \left\{ \frac{1}{2m} \left(\vec{p} + \frac{e}{c} \vec{A}_{tot} \right)^2 + V_H[\rho(\vec{r}, t)] + V_{xc}[\rho(\vec{r}, t)] + V_{ION} \right\} \psi(\vec{r}, t) \quad (1)$$

と書ける[1]。結晶の周期性を保つ為に外場はベクトルポテンシャルで表現している。このベクトルポテンシャルは電子ダイナミクスによって誘起される表面電荷による分極電場 A_{ind} と計算の為に導入する電場 A_{ext} からなる。

$$\vec{A}_{tot} = \vec{A}_{ext} + \vec{A}_{ind} \quad (2)$$

分極電場は巨視的な電子流密度から

$$\frac{d^2}{dt^2} \vec{A}_{ind} = 4\pi c^2 \vec{j} \quad (3)$$

の式で計算することができる。

ポテンシャル及び波動関数は3次元の実空間格子を用いて離散化し、運動エネルギー項は高次差分法により計算し、時間発展は時間発展演算子を Taylor 展開し、その4次までで近似

して逐次的に行う。波動関数はブロッホの定理に従うとしてブロッホの位相空間を離散化して計算した。

【計算結果】

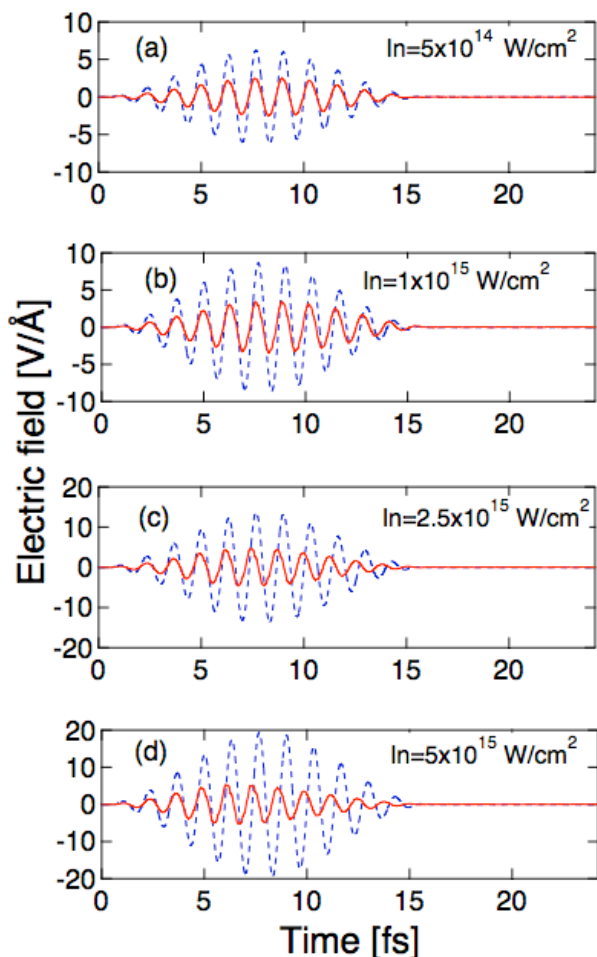


図 短パルスレーザーを照射したときの α -Quartz内部の電場の時間発展

にずれていることが見て取れる。図(d)では更に電子励起が起き、レーザーパルスの後半では外場に対して電場が逆位相になっている。これは入射した光を強く打ち消していることになり金属的な応答となっている。このように短パルスレーザーによる透明固体中電子の励起過程及びダイナミクスがTDDFTに基づいたシミュレーションから記述可能であることが分かった。講演では更に電子励起状態の特徴や欠陥の影響について議論したい。

【参考文献】

- [1] G.F.Bertsch, J.-I. Iwata, Angel Rubio, and K. Yabana, *Phys.Rev.B* **62**, 7998
- [2] T.Otobe, K. Yabana, and J.-I. Iwata, *J. Phys.: Condens. Matter* **21**, 064224

典型的な結果として、図に α -Quartzに短パルスレーザーを照射したときの外場(青破線)と固体内部での電場(赤実線)を示した[2]。レーザー強度(I_n)は外場のピーク強度をレーザー強度に換算したものである。この外場と固体に入射したレーザー場

$$A_{\text{laser}} \text{ は Maxwell 方程式から } A_{\text{ext}} = \frac{2\epsilon}{1 + \epsilon^{1/2}} A_{\text{laser}}$$

で関係付けられる。 ϵ は固体の誘電率である。

図(a)では外場に対して固体内部での光は同じ位相で振動している。この時の電場強度の比は物質の誘電率とほぼ一致していることを確認した。

図(b)(c)ではレーザーが強いためにバンドギャップを超えた荷電帯から導電帯への電子励起が起きている。その影響から外場に対して電場の位相が徐々