

3P115

ガウス基底核波束動力学法の改良：位相空間上での自動基底生成
(東北大院理) ○荒井 雄太, 菅野 学, 河野 裕彦

Refinement of the Gaussian wavepacket method for nuclear dynamics:

Automatic basis expansion in the phase space

(Tohoku Univ.) ○Yuta Arai, Manabu Kanno, Hirohiko Kono

【序論】近年、多次元系の量子ダイナミクスの追跡に適した時間依存 Schrödinger 方程式の近似解法が数々提唱されており、その 1 つに波動関数をガウス基底で展開する手法がある。例として、波動関数を時間依存ガウス基底の Hartree 積で表して多配置理論を適用したガウス基底多配置時間依存 Hartree(G-MCTDH)法[1]がある。この手法では、多粒子系の時間発展をガウス基底と展開係数の運動方程式に帰着させる。時間発展に必要な種々の積分をガウス積分で表せることによって計算コストが抑えられる利点がある。しかし、基底が時間変化して相互の重なりが大きくなると、ガウス基底の過剰完備性によって運動方程式の解が数値的に収束しなくなる欠点がある。

この他に、ガウス基底展開法には、波動関数を時間に依存しないガウス基底で展開する Basis Expansion Leaping Multiconfiguration Gaussian (BEL MCG)法[2]がある。BEL MCG 法では展開係数のみが時間に依存し、波束の形がある程度変化したときに新しいガウス基底の組で再展開を行い、波束の時間発展を適切に記述する。あらかじめ基底間の重なりが十分小さいガウス基底の組を用意すれば、過剰完備性による運動方程式の解の不安定化を回避できる。しかし、BEL MCG 法は展開に要する基底の数が多くなっていく傾向があり、実際には重なりが大きい基底が生じやすい。

本研究では、波束の時間発展を安定にかつ効率良く行うために、位相空間表示に基づいた von Neumann lattice と呼ばれる手法[3]を採用して新たな波動関数展開法の開発を行った。von Neumann lattice は、位相空間を等間隔のセルに分割し、そのセル上に配置したガウス基底で波動関数を展開する方法である。これまでは波束が伝搬する方向を推測して基底を置いていたが、伝搬方向を自動的に予測して基底を生成するよう改良し、精度も改善した。改良した本手法を 2 次元のモデル系に適用して、基底の自動生成の効率性とプロトンのトンネル効果に対する有効性を検証した。

【理論】本手法では、波動関数 Ψ を時間に依存しないガウス基底 $\{g_j(\mathbf{R})\}$ で展開する。

$$\Psi(\mathbf{R}, t) = \sum_{j=1}^N A_j(t) g_j(\mathbf{R}) \quad (1)$$

\mathbf{R} は原子核の自由度、 $\{A_j(t)\}$ は展開係数である。この波動関数に Dirac-Frenkel 変分原理を適用すると展開係数 \mathbf{A} の運動方程式

$$i\dot{\mathbf{A}} = \mathbf{S}^{-1} \mathbf{H} \mathbf{A} \quad (2)$$

が得られる。 \mathbf{S} は基底間の重なり積分、 \mathbf{H} は Hamiltonian 行列である。これらの行列要素はガウス積分を用いて高速に計算できる。必要なガウス基底 $\{g_j(\mathbf{R})\}$ を次の手順で選ぶ。

① エネルギー期待値 $\langle \Psi | \hat{H} | \Psi \rangle$ とポテンシャルエネルギー期待値 $\langle \Psi | \hat{V} | \Psi \rangle$ を古典力学と対応させた(3)式から、ガウス基底の指数 α (波数の 2 乗の次元を持つ) を決定する。

$$\hbar^2 \alpha = 2m \left(\langle \Psi | \hat{H} | \Psi \rangle - \langle \Psi | \hat{V} | \Psi \rangle \right) \quad (3)$$

ただし、 $\alpha_1 = \dots = \alpha_N$ とする。運動エネルギーが大きいほど、配位空間で狭い幅の基底になる。

多自由度の場合、自由度ごとに分割したエネルギーを(3)式に当てはめる。

② 位相空間を von Neumann lattice に従って等間隔のセルに分割し、その上にガウス基底を置く。中心座標(Q, P)は隣り合う基底の重なり積分の絶対値が 0.8 程度になるように与える。

③ セル上にある基底のうち、確率分布がある小さな値以上を持つ領域の基底 $\{g_j\}$ を選ぶ。また、運動方程式の解の安定性を確保するために、中心運動量 P は期待値 $\langle \Psi | \hat{p} | \Psi \rangle$ の基底に限定する。

④ 非直交基底の完全性から得られる(4)式から展開係数 \mathbf{A} を決定して波動関数 Ψ を展開する。

$$A_j = \sum_{k=1}^N (\mathbf{S}^{-1})_{jk} \langle g_k | \Psi \rangle \quad (4)$$

これらの手順で展開すると十分な精度で波束を再現できる。時間発展を追って、基底が張る領域から外に波束が出て行くとき(端にある基底の中心における確率分布 $|\Psi|^2$ がある小さな値を越えるとき)に③で $\{g_j\}$ を選び直し、④で新たな \mathbf{A} を決定してから再び時間発展を追う。

【結果と考察】本手法を Fig.1(a)に示す 2 次元拡張井戸型ポテンシャル

$$V(x, y) = \frac{U}{d^4} \{ (x^2 - d^2)^2 + (y^2 - d^2)^2 - G(xy - d^2) \} \quad (5)$$

に適用した結果を報告する。パラメータの値は $U = 2420 \text{ cm}^{-1}$, $d = 1 a_0$ とした。ここで、 a_0 はボーア半径である。また、 $G = 5 \times 10^{-4} a_0^2$ としてカップリングを表す項を取り込んだ。初期波束は井戸の 1 つを調和近似して得られる 1 つのガウス波束(中心位置 $x = y = -0.96 a_0$, 幅 $\Delta x = \Delta y = 0.2 a_0$)を用意した。本手法の手順②に従って基底の α を決定すると、初期波束と同じ値になる。初期時刻で Fig.1(a)のように、幅 $\Delta x = \Delta y = 0.2 a_0$ のガウス基底を格子間隔 $0.2 a_0$ (重なり積分 0.88) で $P_x = P_y = 0$ の x - y 平面上に 96 個生成させた。時間発展を追うと、

Fig.1(b), (c), (d)のように、波束の移動に先立って、波束が進む方向へ必要な時刻に必要な分だけ基底が自動的に生成している。 $t = 4.5 \text{ ps}$ までに基底の取捨選択が 12 回行われ、波束が運動する全領域を覆う 358 個の基底が生成した。空間全体に基底を敷き詰めずに、不要な基底を生成していないことも確認できた。その後、波束は左下の井戸と右上の井戸を周期 $T = 20.5 \text{ ps}$ で行き来した。グリッドを用いて時間依存 Schrödinger 方程式を厳密に解いた結果と比較すると、波束の形や井戸間を移動する周期が一致しており、本手法が小さなカップリング効果を精度良く評価して波束の運動を記述していることがわかった。

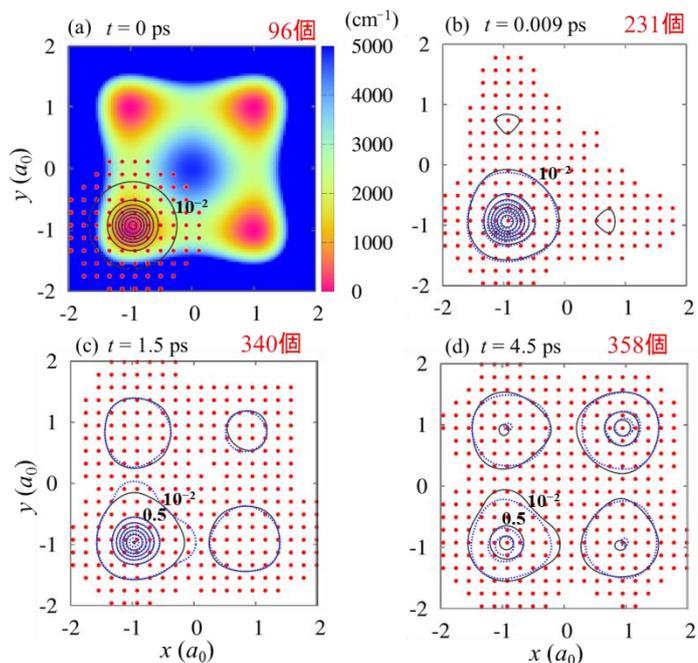


Fig.1 (a) 2 次元拡張井戸型ポテンシャルと $t = 0$ での基底の中心(点)、波束(黒線), (b) $t = 0.009 \text{ ps}$ での基底の中心、波束(黒線: 本手法、青点線: 厳密計算), (c) $t = 1.5 \text{ ps}$ での基底の中心、波束, (d) $t = 4.5 \text{ ps}$ での基底の中心、波束