

フェルミ多粒子系ダイナミクスの大規模計算

フェルミ粒子(分子・固体中の電子、原子核中の陽子・中性子)の運動、
密度汎関数理論を用いた光と物質の相互作用を記述する理論と計算

筑波大学数理物質科学研究科
計算科学研究センター

矢花一浩

「ニーズ」と「シーズ」について

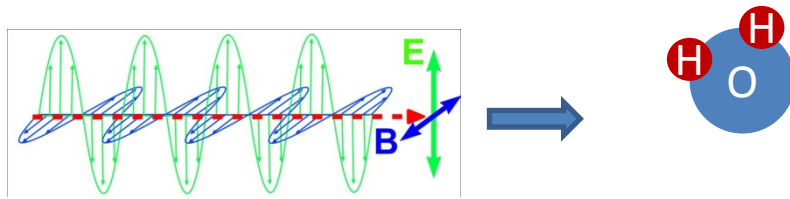
実験研究者	計算アプリ開発者 (理論物理屋)	数理アルゴリズム研究者
<p>(ニーズ)</p> <ul style="list-style-type: none">・実験結果の解釈・理解の深化・新現象の予測	<p>(シーズ)</p> <ul style="list-style-type: none">・新しいモデルの提案・新規な計算法の開発、測定結果の精密解析、新たな解釈・新たな実験の提案	
	<p>(ニーズ)</p> <ul style="list-style-type: none">・速く正確な計算法・新たなモデルを可能にする<ul style="list-style-type: none">- 新規な計算アルゴリズム- 超並列計算機の活用法 <p>これまでの、「みようみまねで、できる計算をする」文化からの脱却</p>	<p>(シーズ)</p> <ul style="list-style-type: none">・体系的な計算アルゴリズムの知識・新規な計算アルゴリズムの開発と応用・大規模計算機を活かした計算アルゴリズムの提案

私の作るアプリの分野: 光と物質の相互作用

伝統的な光科学

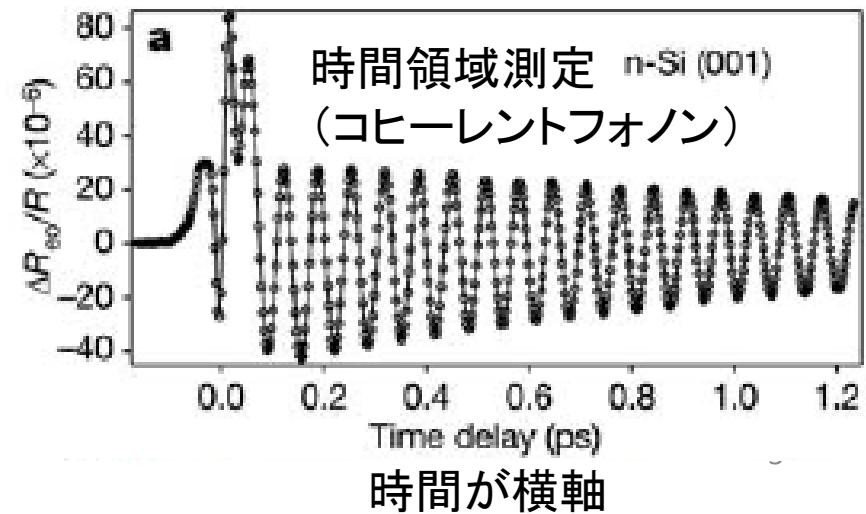
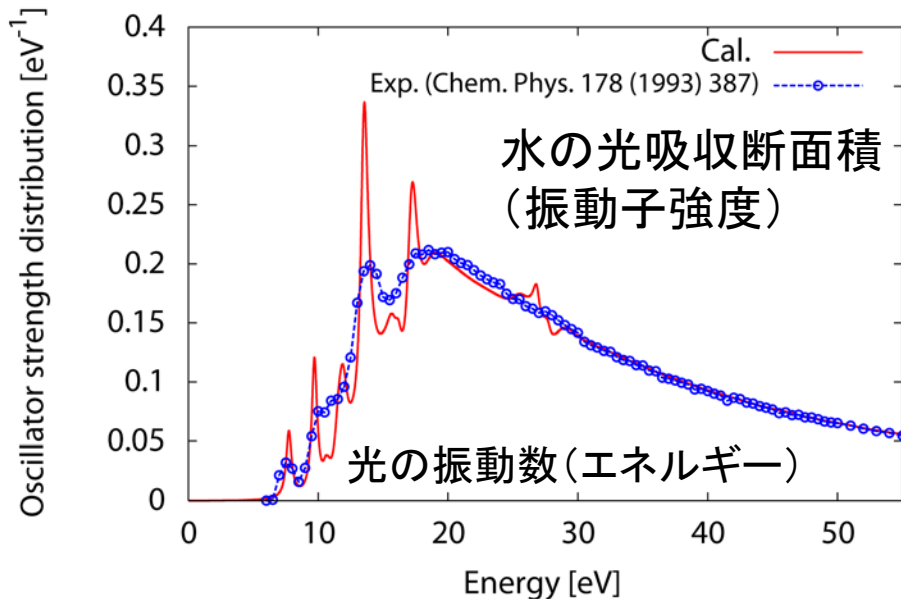
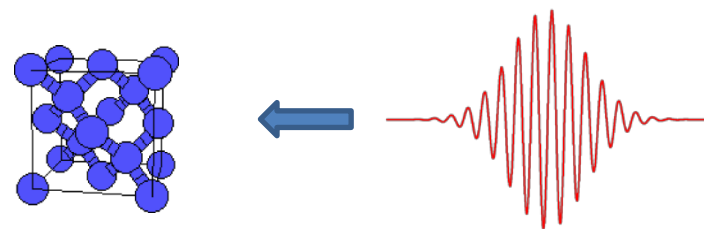
振動数のきまった光(電磁波)を用いて、精密に測定する。

- ・分極率、振動子強度(原子・分子、原子核)
- ・誘電関数(固体)



最近の光科学(の一分野)

- ・非常に短いパルス光を用い、時間領域で測定する。
- ・強い光電場に対する物質の非線形応答を利用して、光自身を制御する。

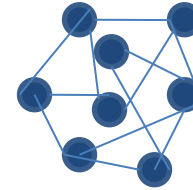


弱い光が引き起こす運動を、どのように記述するのか？

まずはニュートン力学(微小振動)で

つり合いの位置(基底状態)

$$\frac{\partial}{\partial x_i} V(x_1, x_2, \dots, x_N) = 0$$



バネで結ばれた質点系

- ・質量 m
- ・電荷 e

つり合いの点の周りの微小振動

$$V(x_1, x_2, \dots, x_N) = V(x_1^{(0)}, x_2^{(0)}, \dots, x_N^{(0)}) + \frac{1}{2} \sum_{i,j} V_{ij} \eta_i \eta_j$$

$$m \ddot{\eta}_i = - \sum_j V_{ij} \eta_j \quad V_{ij} = \left. \frac{\partial^2 V}{\partial x_i \partial x_j} \right|_{x_i^{(0)}}$$

微小振動を調べる3通りのアプローチ

対角化により基準モードを求める。

$$\eta_i(t) = C a_i e^{-i\omega t}$$

$$\sum_j V_{ij} a_j = m \omega^2 a_i$$

固有値問題

一定振動数の電場 $E(t) = E_0 e^{-i\omega t}$ を加え、強制振動を調べる。

$$m \ddot{\eta}_i = - \sum_j V_{ij} \eta_j + e E_0 e^{-i\omega t}$$

$$\eta_i(t) = a_i e^{-i\omega t}$$

$$m \omega^2 a_i - \sum_j V_{ij} a_j = e E_0$$

線形代数方程式

パルス電場(撃力)を加え、(減衰)振動を調べる。

$$m \ddot{\eta}_i = - \sum_j V_{ij} \eta_j + I \delta(t)$$

$$\left(\dot{\eta}_i(0) = \frac{I}{m} \right)$$

時間変数の微分方程式
(初期値問題)

密度汎関数理論(量子力学)

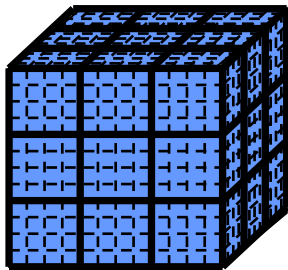
エネルギー E を、軌道関数 $\phi_k(\vec{r})$ の汎関数として表す $E[\phi_i]$ 。

$$\frac{\delta}{\delta\phi_i} \left\{ E[\phi_k] - \sum_{kl} \varepsilon_{kl} \int d\vec{r} \phi_k(\vec{r}) \phi_l(\vec{r}) \right\} = 0$$

$$\int d\vec{r} \phi_k(\vec{r}) \phi_l(\vec{r}) = \delta_{kl}$$

軌道の本数 (Nb) = 電子の数 ÷ 2

軌道関数を表現する様々な方法があるが、ここでは3次元実空間格子で表現する場合に限る。(cf. RSDFT)



空間の点の数 (Nx)

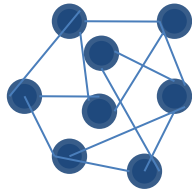
典型的に $20^3 - 200^3$

全自由度の数 Nb x Nx

軌道数 ~ 100、空間 100^3 だと、 10^8 程度になる。

- ・基底状態計算
= Nb x Nx空間の最小化問題。
- ・光応答
= Nb x Nx個の基準振動を
求める問題。

ニュートン力学と密度汎関数法(量子力学)の対応関係



バネで結ばれた質点系

分子や固体の中の電子
原子核の中の陽子や中性子

エネルギーの最小化問題(基底状態)

基底状態=つりあいの位置

$$\min V(x_1, x_2, \dots, x_N)$$

$$\min E[\phi_i(\vec{r})] \quad Nb \times Nx \text{ 自由度}$$

$$\int d\vec{r} \phi_i^*(\vec{r}) \phi_j(\vec{r}) = \delta_{ij}$$

基底状態の方程式(勾配ベクトルの構造)

$$\frac{\partial}{\partial x_i} V(x_1, x_2, \dots, x_N) = 0$$

$$\frac{\delta}{\delta \phi_i^*} E[\phi_i] = H \phi_i = \frac{\vec{p}^2}{2m} \phi_i + v[\rho(\vec{r})] \phi_i = \varepsilon_i \phi_i$$

$$\rho(\vec{r}) = \sum_i |\phi_i(\vec{r})|^2 \quad \text{Kohn-Sham方程式}$$

「ハミルトニアン」

運動方程式

$$m_i \ddot{x}_i = - \frac{\partial}{\partial x_i} V(x_1, x_2, \dots, x_N)$$

ニュートンの運動方程式

$$i\hbar \frac{\partial}{\partial t} \psi_i(\vec{r}, t) = \frac{\vec{p}^2}{2m} \psi_i(\vec{r}, t) + v[\rho(\vec{r}, t)] \psi_i(\vec{r}, t)$$

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

時間依存Kohn-Sham方程式

時間依存コーン・シヤム方程式(電子系の場合)

$$i\hbar \frac{\partial}{\partial t} \psi_k(\vec{r}, t) = H \psi_k(\vec{r}, t) = \frac{\delta}{\delta \psi_k^*} E[\psi_k]$$
$$= \left\{ -\frac{\hbar^2}{2m} \vec{\nabla}^2 + \int d\vec{r}' \frac{\rho(\vec{r}')}{|\vec{r} - \vec{r}'|} + V_{ion}(\vec{r}) + \mu_{xc}(\vec{r}) \right\} \psi_k(\vec{r}, t)$$
$$\rho(\vec{r}, t) = \sum_k |\psi_k(\vec{r}, t)|^2$$

ポアソン方程式を解く

軌道関数 $\psi_k(x, y, z)$

Nb (電子数 ÷ 2) × Nx (空間の格子点数)
の成分を持つベクトル

$$H \psi_k(\vec{r}, t) = \frac{\delta}{\delta \psi_k^*} E[\psi_k]$$

勾配ベクトル計算(ハミルトニアン of 演算)
- 疎行列 × ベクトル
- ポアソン方程式を1回解くことが必要

計算時間: 多くの場合、この疎行列のベクトル演算がほとんど。
問題によっては、ポアソン方程式が律速に。

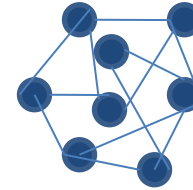
メモリ: 軌道関数が最大。

弱い光が引き起こす運動を、どのように記述するのか？

まずはニュートン力学(微小振動)で

つり合いの位置(基底状態)

$$\frac{\partial}{\partial x_i} V(x_1, x_2, \dots, x_N) = 0$$



バネで結ばれた質点系

- ・質量 m
- ・電荷 e

つり合いの点の周りの微小振動

$$V(x_1, x_2, \dots, x_N) = V(x_1^{(0)}, x_2^{(0)}, \dots, x_N^{(0)}) + \frac{1}{2} \sum_{i,j} V_{ij} \eta_i \eta_j$$

$$m \ddot{\eta}_i = - \sum_j V_{ij} \eta_j \quad V_{ij} = \left. \frac{\partial^2 V}{\partial x_i \partial x_j} \right|_{x_i^{(0)}}$$

微小振動を調べる3通りのアプローチ

対角化により基準モードを求める。

$$\eta_i(t) = C a_i e^{-i\omega t}$$

$$\sum_j V_{ij} a_j = m \omega^2 a_i$$

固有値問題

一定振動数の電場 $E(t) = E_0 e^{-i\omega t}$ を加え、強制振動を調べる。

$$m \ddot{\eta}_i = - \sum_j V_{ij} \eta_j + e E_0 e^{-i\omega t}$$

$$\eta_i(t) = a_i e^{-i\omega t}$$

$$m \omega^2 a_i - \sum_j V_{ij} a_j = e E_0$$

線形代数方程式

パルス電場(撃力)を加え、(減衰)振動を調べる。

$$m \ddot{\eta}_i = - \sum_j V_{ij} \eta_j + I \delta(t)$$

$$\left(\dot{\eta}_i(0) = \frac{I}{m} \right)$$

時間変数の微分方程式
(初期値問題)

時間依存Kohn-Sham方程式の直接計算

$$i\hbar \frac{\partial}{\partial t} \psi_k(\vec{r}, t) = H \psi_k(\vec{r}, t) = \left\{ -\frac{\hbar^2}{2m} \vec{\nabla}^2 \int d\vec{r}' \frac{\rho(\vec{r}', t)}{|\vec{r} - \vec{r}'|} + V_{ion}(\vec{r}) + \mu_{xc}(\vec{r}, t) \right\} \psi_k(\vec{r}, t)$$

$$\rho(\vec{r}, t) = \sum_k |\psi_k(\vec{r}, t)|^2$$

陽解法のアルゴリズム: Taylor展開法

$$\psi(t + \Delta t) = \exp\left[\frac{H\Delta t}{i\hbar}\right] \psi(t) \approx \sum_{k=0}^N \frac{1}{k!} \left(\frac{H\Delta t}{i\hbar}\right)^k \psi(t)$$

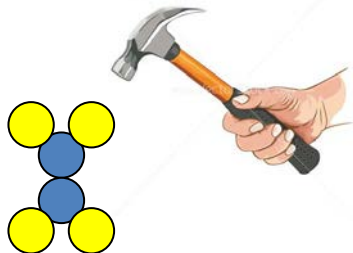
3次以上の場合、時間刻みを適当にとれば、安定な時間発展が可能に。

各時間ステップで、疎行列(ハミルトニアン)演算を4回程度必要 $M \times N_x \times N_b$
必要となるメモリは、軌道関数分だけ $N_x \times N_b \times 16\text{byte}$

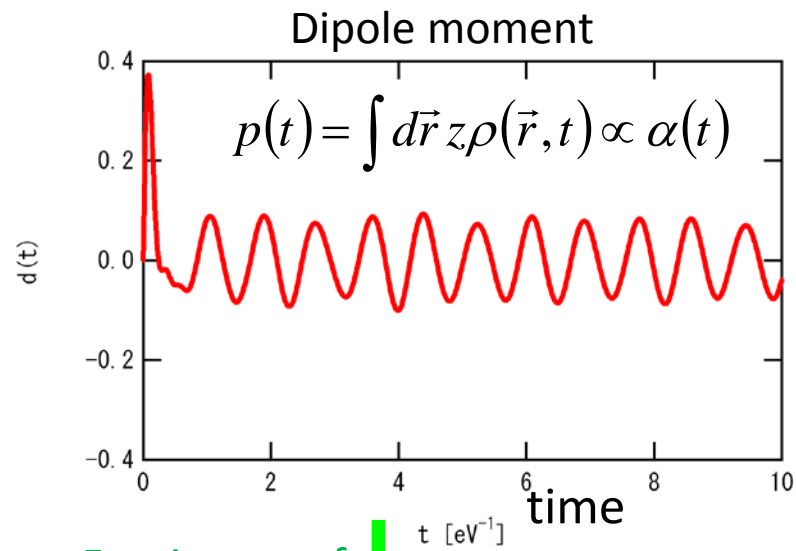
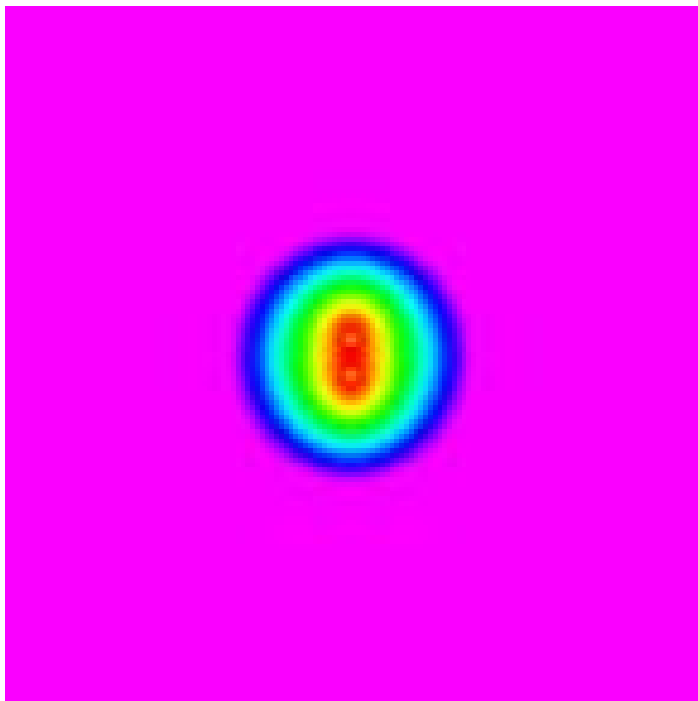
各時間ステップで、ポアソン方程式を解くことも必要
ただし、前ステップの結果を初期条件にすると、共役勾配法を用いて短時間に収束

実時間線形応答計算:
電子に撃力を加えて応答を見る。

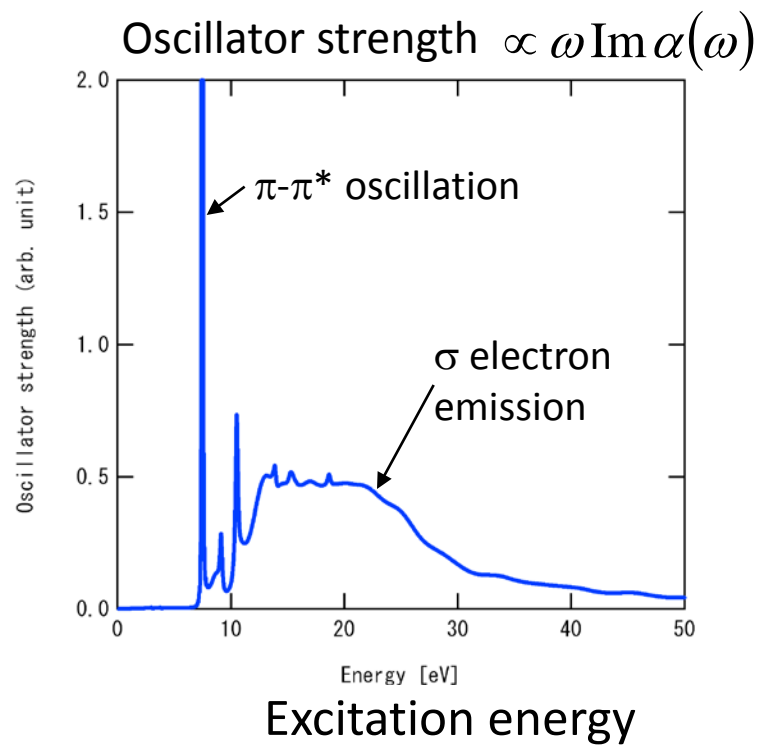
$$V_{ext}(\vec{r}, t) \propto \delta(t)z$$



エチレン (C₂H₄) 分子



Fourier transf. ↓

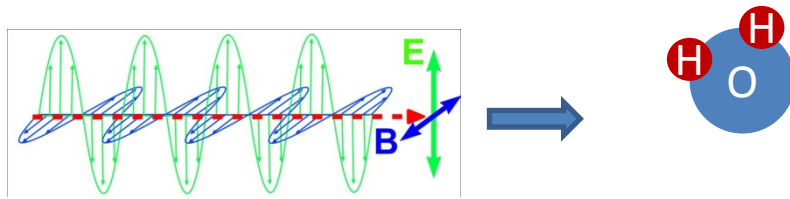


私の作るアプリの分野: 光と物質の相互作用

伝統的な光科学

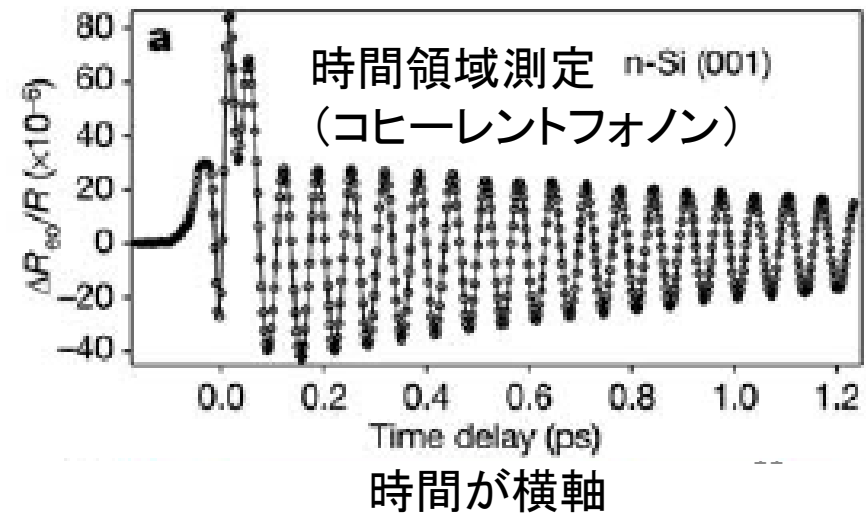
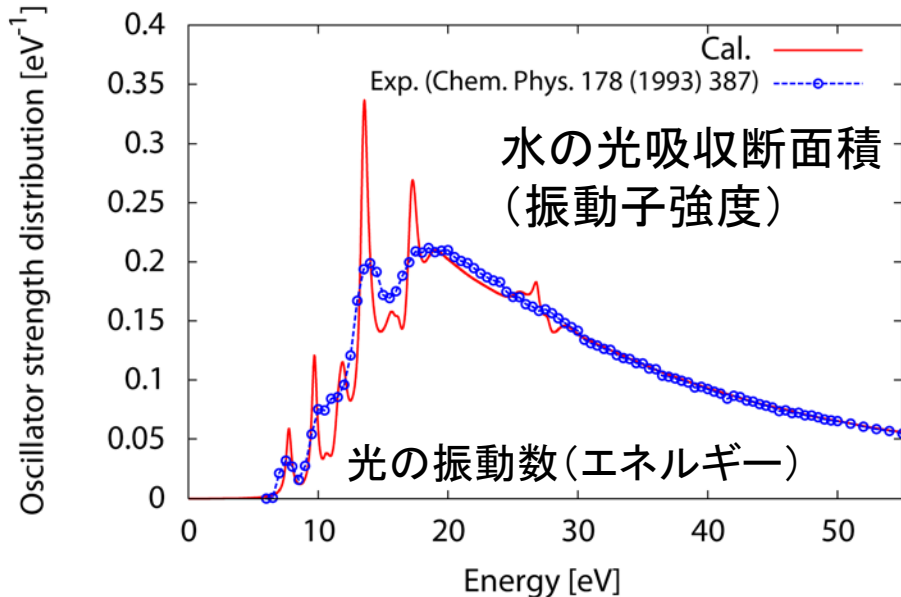
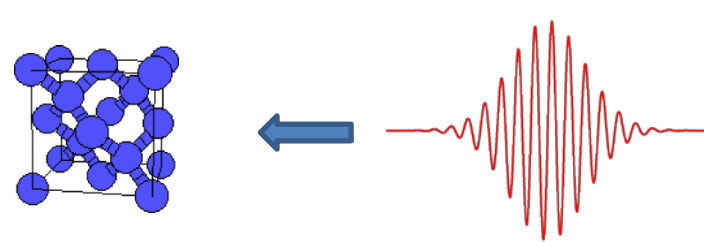
振動数のきまった光(電磁波)と物質の相互作用を用いて、精密に測定する。

- ・分極率、振動子強度(原子・分子、原子核)
- ・誘電関数(固体)

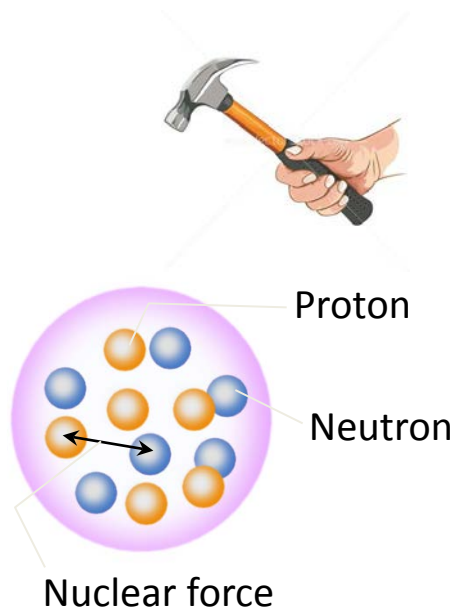


最近の光科学(の一分野)

非常に短いパルス光を用い、実時間計測。強い光による物質の非線形応答を利用して、光自身を制御する。



たたいても、うまくいかない場合も



$$V \propto \delta(t) \sum_{i \in \text{proton}} z_i$$

$$V \propto \delta(t) \sum_i (2z_i^2 - x_i^2 - y_i^2)$$

⋮

原子核の場合、叩くと重心が移動したり回転してしまう場合がある。
(重心が動いてしまうと、微小振動にならない)

方程式を線形化して、強制振動(線形方程式)・固有値問題として解く。

時間依存Kohn-Sham方程式の線形化

$$\psi_i(\vec{r}, t) = [\phi_i(\vec{r}) + \delta\psi_i(\vec{r}, t)]e^{i\varepsilon_i t/\hbar}$$

↓

$$i\hbar \frac{\partial}{\partial t} \delta\psi_i(\vec{r}, t) = (h_0 + V_{ext}(t) - \varepsilon_i)\delta\psi_i(\vec{r}, t) + \phi_i(\vec{r}) \int d\vec{r}' \frac{1}{|\vec{r} - \vec{r}'|} \delta n(\vec{r}', t) + f_{xc} \delta\psi_i(\vec{r}, t)$$

ポアソン方程式を含む。

外場と微小振動解を次の形に置く。

$$\delta\psi_i(\vec{r}, t) = X_i(\vec{r})e^{i\omega t} + Y_i(\vec{r})e^{-i\omega t} \quad V_{ext}(\vec{r}, t) = V_{ext}(\vec{r})e^{-i\omega t}$$

修正Sternheimer方程式(線形方程式)

$$\begin{bmatrix} [-\hbar\omega + (h_{KS} - \varepsilon_i)]\delta_{ij} + \phi_i \frac{1}{|\vec{r} - \vec{r}'|} \phi_j^* + f_{xc} & \phi_i \frac{1}{|\vec{r} - \vec{r}'|} \phi_j + f_{xc} \\ \phi_i^* \frac{1}{|\vec{r} - \vec{r}'|} \phi_j^* + f_{xc} & [\hbar\omega + (h_{KS} - \varepsilon_i)]\delta_{ij} + \phi_i^* \frac{1}{|\vec{r} - \vec{r}'|} \phi_j + f_{xc} \end{bmatrix} \begin{bmatrix} X_j(\vec{r}) \\ Y_j(\vec{r}) \end{bmatrix} = \begin{bmatrix} V_{ext}(\vec{r})\phi_i(\vec{r}) \\ V_{ext}(\vec{r})\phi_i(\vec{r}) \end{bmatrix}$$

$V_{ext}(\vec{r})=0$ と置けば、固有値 ω に対する一般化固有値問題

- ・疎行列問題だが、行列・ベクトル積演算に2回のポアソン方程式を含む。
- ・次元は、軌道Nb × 空間格子点Nx × 2。
- ・線形方程式は、さまざまな光の振動数(シフト)に対して解くことが必要。
- ・光の振動数(シフト)に虚数を加える必要。

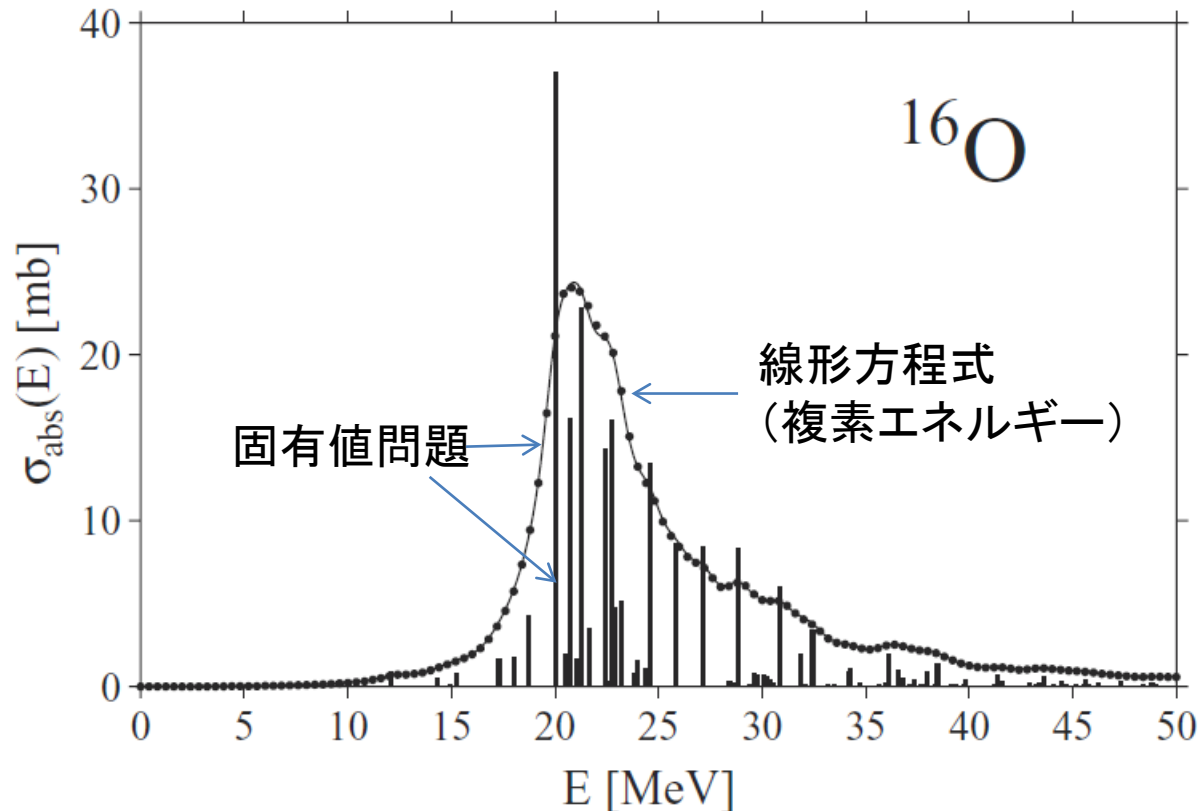
線形方程式 vs 対角化（原子核の光応答計算）

Inakura (RIKEN)

各 ω 毎に線形一次方程式を解いた結果(黒丸)と、対角化の結果(縦線)を滑らかにした結果(実線)は一致する。

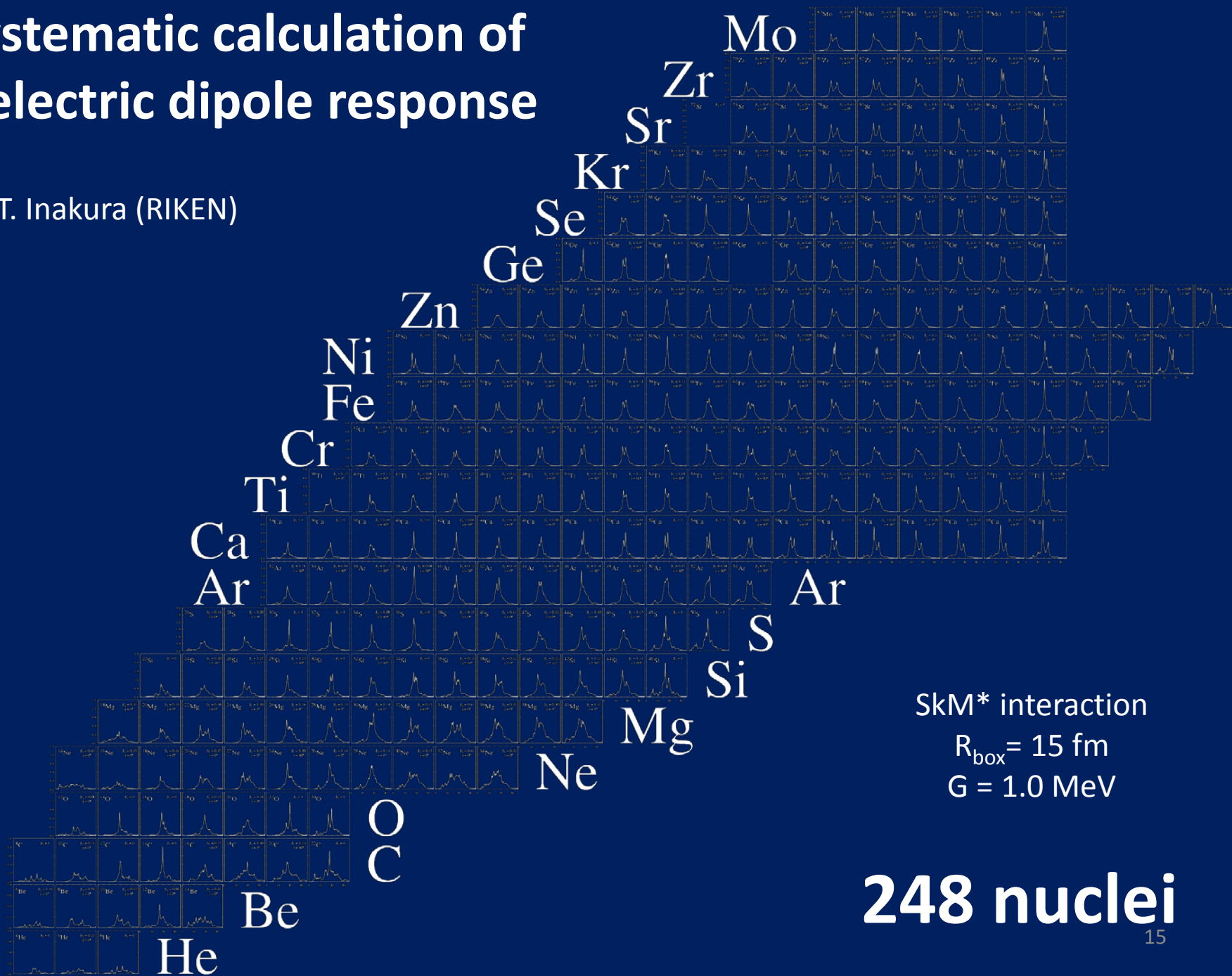
$$\begin{bmatrix} [-\hbar\omega + (h_{KS} - \varepsilon_i)]\delta_{ij} + \phi_i \frac{\delta h_{KS}}{\delta n} \phi_j^* & \phi_i \frac{\delta h_{KS}}{\delta n} \phi_j \\ \phi_i^* \frac{\delta h_{KS}}{\delta n} \phi_j^* & [\hbar\omega + (h_{KS} - \varepsilon_i)]\delta_{ij} + \phi_i^* \frac{\delta h_{KS}}{\delta n} \phi_j \end{bmatrix} \begin{bmatrix} X_j(\vec{r}) \\ Y_j(\vec{r}) \end{bmatrix} = \begin{bmatrix} V_{ext}(\vec{r})\phi_i(\vec{r}) \\ V_{ext}(\vec{r})\phi_i(\vec{r}) \end{bmatrix}$$

線形一次方程式=GCR
固有値問題=CG



Systematic calculation of electric dipole response

T. Inakura (RIKEN)



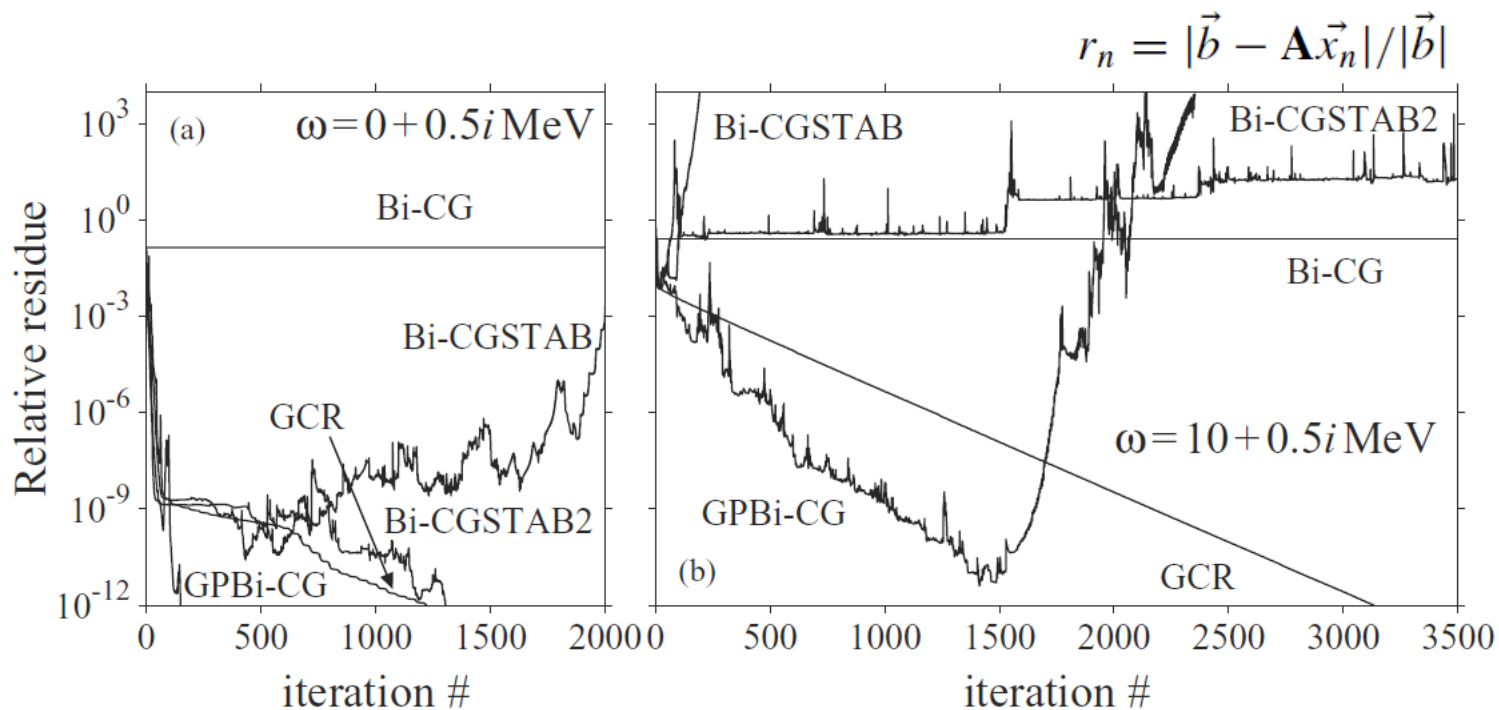
原子核の場合の線形計算 ソルバ毎の収束性

T. Inakura, T. Nakatsukasa, K. Yabana,
Phys. Rev. C80, 044301 (2009)

$$\begin{aligned} \omega X_i(\xi, \omega) &= [h_0(\xi) - \epsilon_i] X_i(\xi, \omega) \\ &\quad + \hat{P} \{V_{\text{ext}}(\xi, \omega) + \delta h(\xi, \omega)\} \phi_i(\xi), \\ -\omega Y_i^*(\xi, \omega) &= [(h_0(\xi) - \epsilon_i) Y_i(\xi, \omega) \\ &\quad + \hat{P} \{V_{\text{ext}}^\dagger(\vec{\xi}, \omega) + \delta h^\dagger(\xi, \omega)\} \phi_i(\xi)]^* \end{aligned}$$

現在のところ、GCR、GPBiCG-ARのみが
全てのエネルギー領域で収束。

シフトに関して独立に(並列)計算。



低いエネルギーの場合

高いエネルギーの場合

シフト法の検討

(篠原、矢花・二村、櫻井)

まずは、素性の良い分子(電子の光応答)の場合から。

修正Sternheimer方程式(線形方程式)

$$\begin{bmatrix} [-\hbar\omega + (h_{KS} - \varepsilon_i)]\delta_{ij} + \phi_i \frac{1}{|\vec{r} - \vec{r}'|} \phi_j^* + f_{xc} & \phi_i \frac{1}{|\vec{r} - \vec{r}'|} \phi_j + f_{xc} \\ \phi_i^* \frac{1}{|\vec{r} - \vec{r}'|} \phi_j^* + f_{xc} & [\hbar\omega + (h_{KS} - \varepsilon_i)]\delta_{ij} + \phi_i^* \frac{1}{|\vec{r} - \vec{r}'|} \phi_j + f_{xc} \end{bmatrix} \begin{bmatrix} X_j(\vec{r}) \\ Y_j(\vec{r}) \end{bmatrix} = \begin{bmatrix} V_{ext}(\vec{r})\phi_i(\vec{r}) \\ V_{ext}(\vec{r})\phi_i(\vec{r}) \end{bmatrix}$$

解法による計算サイズの比較

N_x : 実空間格子点、 N_b : 電子軌道

N_ω : 振動数の分点、 N_ϵ : 固有値の数、 N_t : 時間発展の回数、 N_{iter} : 反復回数

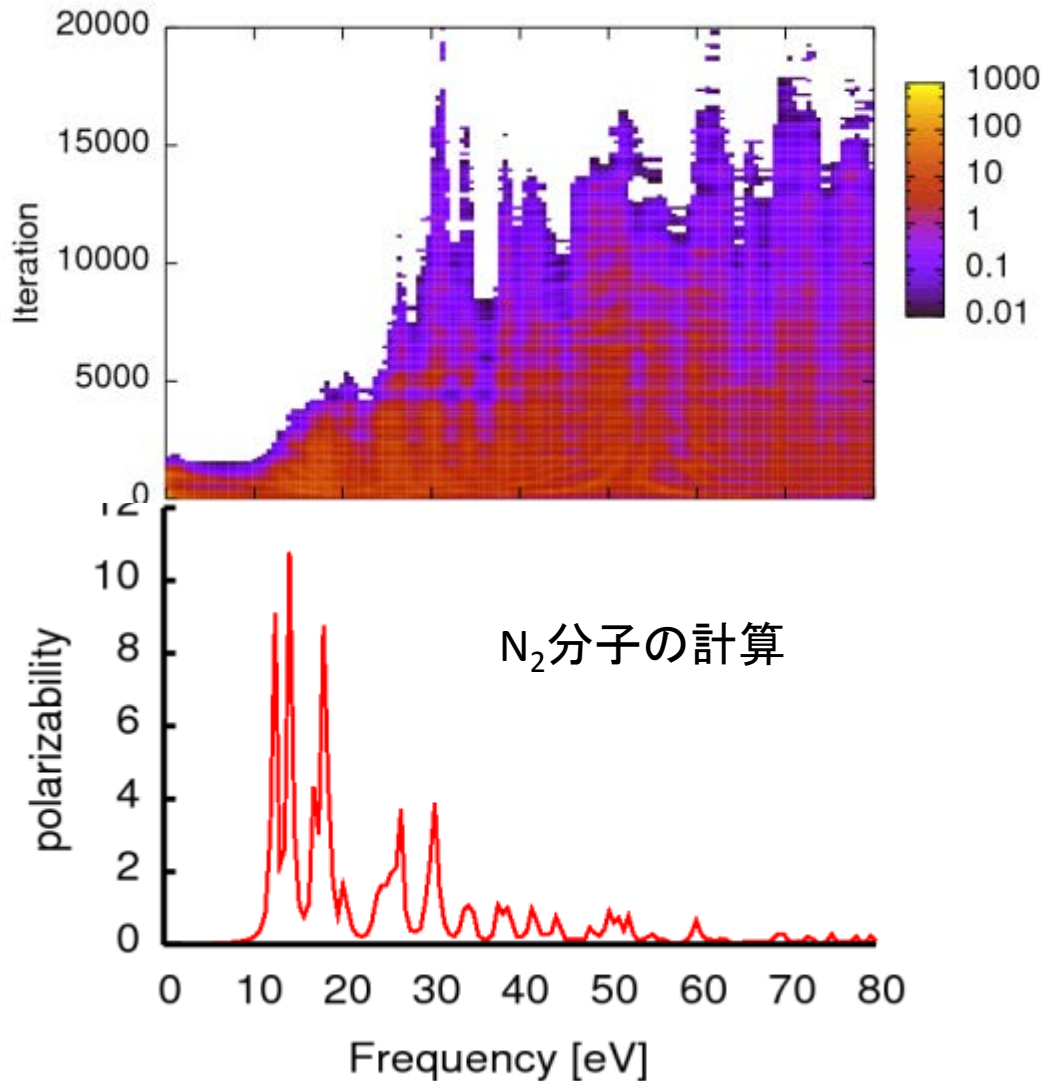
	計算コスト	メモリ
対角化	$N_\epsilon \times N_x \times N_b \times N_{iter}$ + (Gram-Schmidt)	$N_\epsilon \times N_x \times N_b$
線形方程式	$N_\omega \times N_x \times N_b \times N_{iter}$	$N_\omega \times N_x \times N_b$
実時間発展法	$N_t \times N_x \times N_b$ $N_t \sim 50000$	$N_x \times N_b$
連分数展開法	$N_x \times N_b \times N_{iter}$	$N_x \times N_b$
シフト線形方程式の Krylov部分空間法	$1 \times N_x \times N_b \times N_{iter}$	$N_\omega \times N_x \times N_b$



1 (スカラー化)

この他に、ポアソン方程式(空間格子点 N_x)を各ステップで1-2回解くことが全ての方法で必要。

シフト法を用いた場合の残差分布



Shifted BiCG

N₂分子

Nb=5, Nx=30³

$$E = E_r + 0.27i$$

高いエネルギーになるほど
多くのIterationが必要。

	計算コスト	メモリ
対角化	$N_\varepsilon \times N_x \times N_b \times N_{iter}$ + (Gram-Schmidt)	$N_\varepsilon \times N_x \times N_b$
線形方程式	$N_\omega \times N_x \times N_b \times N_{iter}$	$N_\omega \times N_x \times N_b$
実時間発展法	$N_t \times N_x \times N_b$ $N_t \sim 50000$	$N_x \times N_b$
連分数展開法	$N_x \times N_b \times N_{iter}$	$N_x \times N_b$
シフト線型方程式の Krylov部分空間法	$1 \times N_x \times N_b \times N_{iter}$	$N_\omega \times N_x \times N_b$

↓
1 (スカラー化)

20

シフト法とスカラー化で、実時間計算と線形方程式の必要とする計算資源は同程度に見えるが、実際の計算ではポアソン方程式が律速となる場合がある。

$$i\hbar \frac{\partial}{\partial t} \psi_k(\vec{r}, t) = H \psi_k(\vec{r}, t) = \left\{ -\frac{\hbar^2}{2m} \nabla^2 \int d\vec{r}' \frac{\rho(\vec{r}', t)}{|\vec{r} - \vec{r}'|} + V_{ion}(\vec{r}) + \mu_{xc}(\vec{r}, t) \right\} \psi_k(\vec{r}, t)$$

$$\rho(\vec{r}, t) = \sum_k |\psi_k(\vec{r}, t)|^2$$

実時間計算では、前回の解を初期値に計算すれば直ちに収束する。

$$\int d\vec{r}' \frac{1}{|\vec{r} - \vec{r}'|} \sum_k \phi_k(\vec{r}') X_k(\vec{r}')$$

線形方程式計算では、Iterationの度に異なるベクトル $X_k(\vec{r})$ が入るため、毎回收束が遅い。

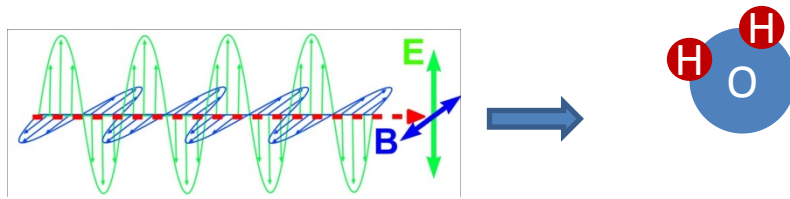
20

私の作るアプリの分野: 光と物質の相互作用

伝統的な光科学

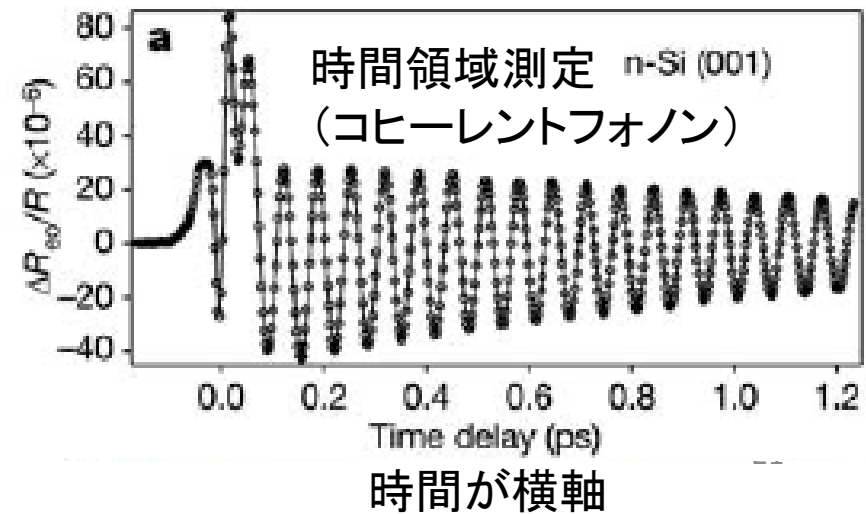
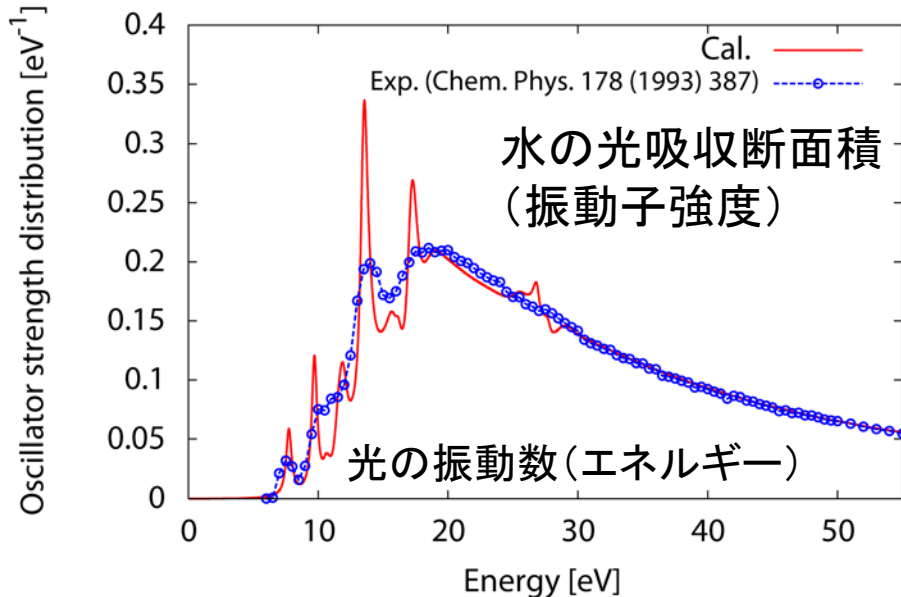
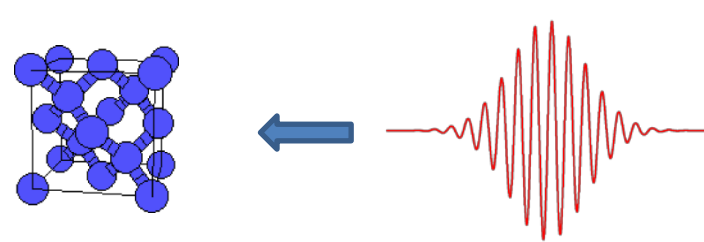
振動数のきまった光(電磁波)と物質の相互作用を用いて、精密に測定する。

- ・分極率、振動子強度(原子・分子、原子核)
- ・誘電関数(固体)



最近の光科学(の一分野)

非常に短いパルス光を用い、実時間計測。強い光による物質の非線形応答を利用して、光自身を制御する。



高強度な光を用いた物質の加工・新しい光通信の試み

最初のプロセスは、強い光電場による物質のプラズマ化

Femtosecond micromachining

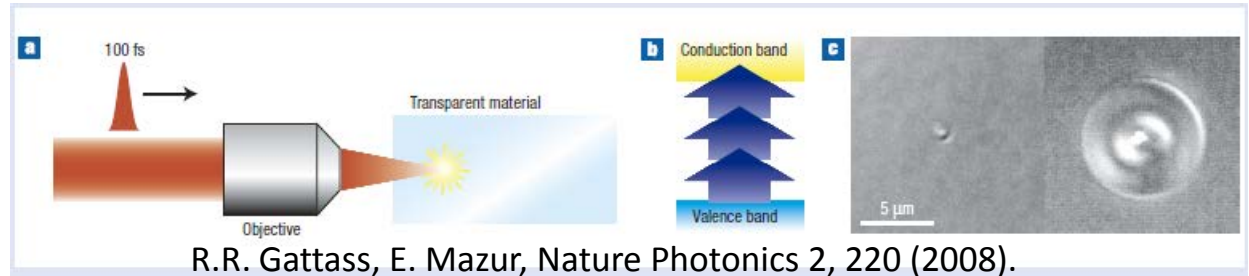
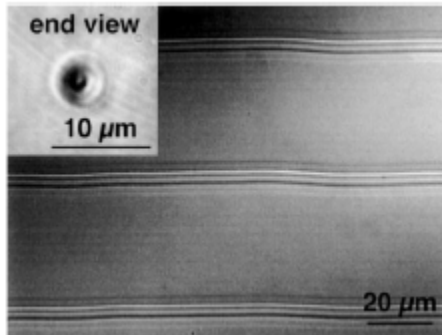


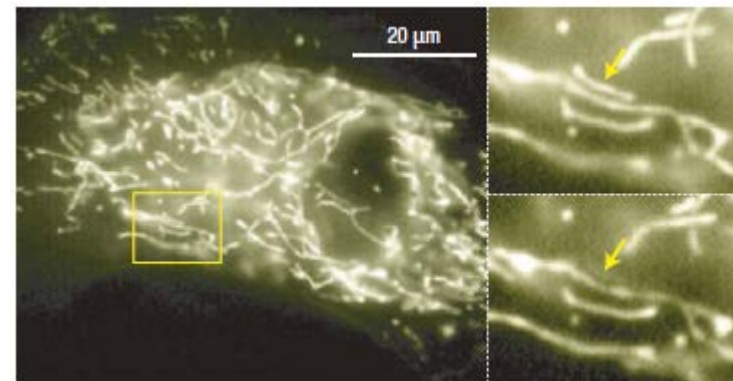
Figure B1 Femtosecond laser micromachining process. **a**, Schematic of the laser incident on a transparent material. **b**, Diagram of the excitation of electrons to the conduction band. **c**, Microscope images showing the large variation in the feature characteristics depending on the experimental conditions. Left: single 10-nJ pulse and right: 25,000 5-nJ pulses at a frequency of 25 MHz (both with the same focal spot).

Micromachining – waveguide-



Optical microscope image of waveguides written inside bulk glass by a 25-MHz train of 5-nJ sub-100-fs pulses, C.B. Schaffer et.al, OPTICS LETTERS 26, 93 (2001)

Nanosurgery



Ablation of a single mitochondrion in a living cell. N. Shen et.al, Mech. Chem. Biosystems, 2, 17 (2005).

光と物質の非線形な相互作用をどうやって記述するか？

弱い光の場合：電磁気学と量子力学の棲み分け

$$D = \varepsilon(\omega)E$$

物質中の光伝播は電磁気学で記述する
(マクスウェルの方程式)

例えば、FDTD法
時間・空間変数を差分化して解く

与えられた光に対する電子の応答を
量子力学で記述する
(時間に依存するシュレディンガー方程式)

時間依存Kohn-Sham方程式
GW近似(多体摂動論)

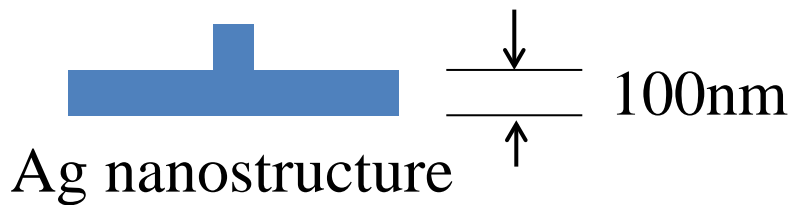
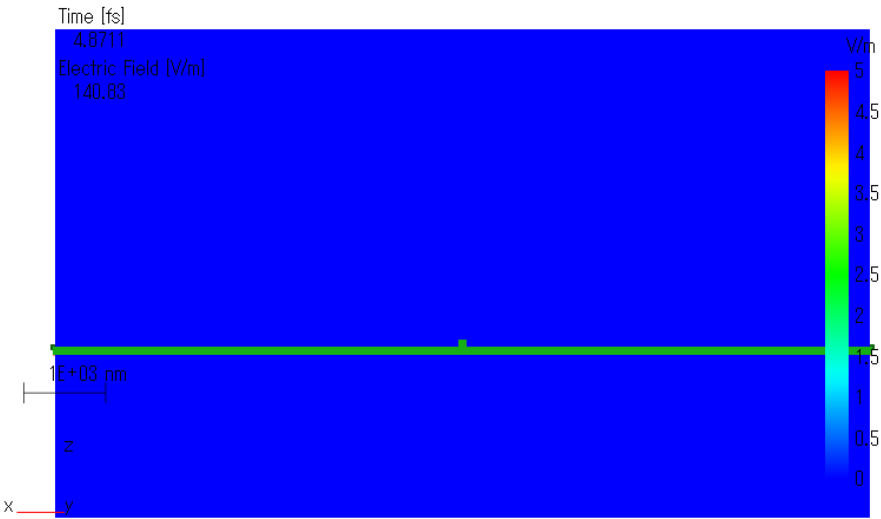
高強度な光では、誘電率を用いた記述は役に立たない。



超並列計算機を用いて、2つの階層を連結する試み

「マクスウェル＋時間依存密度汎関数理論による
マルチスケール・シミュレーション」

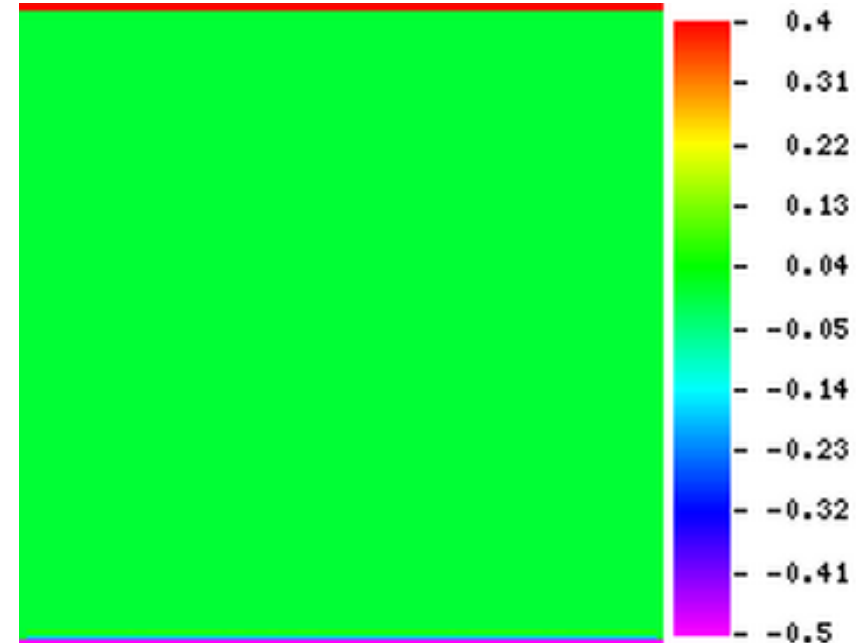
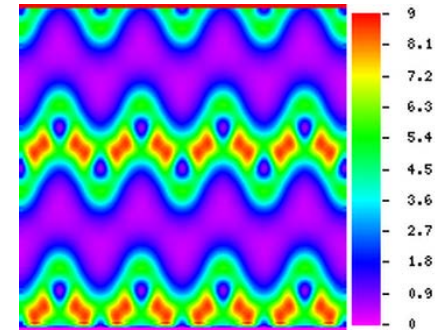
電磁場の2次元的な伝播 (μm スケール)



Courtesy of Dr. A. Kubo, U. Tsukuba

$$\frac{1}{c^2} \frac{\partial^2}{\partial t^2} \vec{A}(\vec{R}, t) - \vec{\nabla}^2 \vec{A}(\vec{R}, t) = \frac{4\pi}{c} \vec{J}(\vec{R}, t)$$

物質中の電子 ダイナミクス (nmスケール)



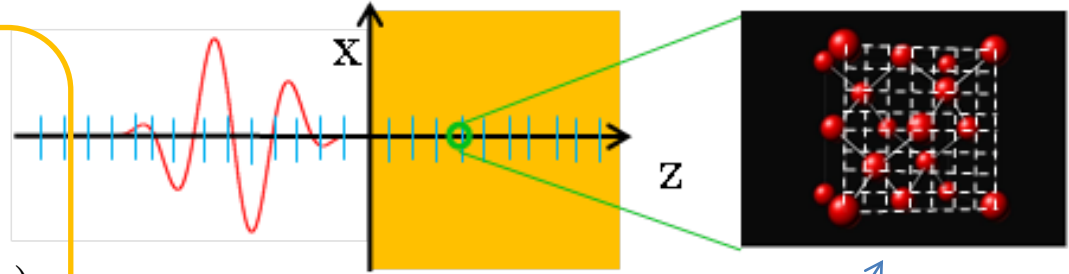
$$i\hbar \frac{\partial}{\partial t} \psi_i(\vec{r}, t) = \left\{ \frac{1}{2m} \left(-i\hbar \vec{\nabla} + \frac{e}{c} \vec{A}(t) \right)^2 - e\phi(\vec{r}, t) + \frac{\delta E_{xc}}{\delta n} \right\} \psi_i(\vec{r}, t)$$

$$\vec{j}(\vec{r}, t) = \frac{\hbar}{2mi} \sum_i \left(\psi_i^* \vec{\nabla} \psi_i - \psi_i \vec{\nabla} \psi_i^* \right) - \frac{e}{4\pi c} n \vec{A}$$

電磁波と電子のダイナミクスを、マルチスケールグリッドで連結

巨視的格子点 (μm)
ベクトルポテンシャルの時間発展

$$\frac{1}{c^2} \frac{\partial^2}{\partial t^2} A(Z, t) - \frac{\partial^2}{\partial Z^2} A(Z, t) = \frac{4\pi}{c} J(Z, t)$$



異なる巨視的格子点の間では、
ベクトルポテンシャルと電流の
情報を交換

$J(Z, t)$

$A(Z, t)$

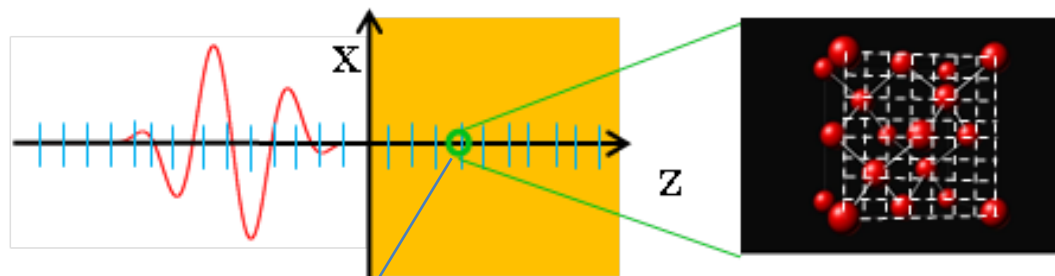
$$J(Z, t) = \int_{\Omega} d\vec{r} \vec{j}_{e,Z}$$

$$\vec{j}_{e,Z} = \frac{\hbar}{2mi} \sum_i (\psi_{i,Z}^* \vec{\nabla} \psi_{i,Z} - \psi_{i,Z} \vec{\nabla} \psi_{i,Z}^*) - \frac{e}{4\pi c} n_{e,Z} \vec{A}$$

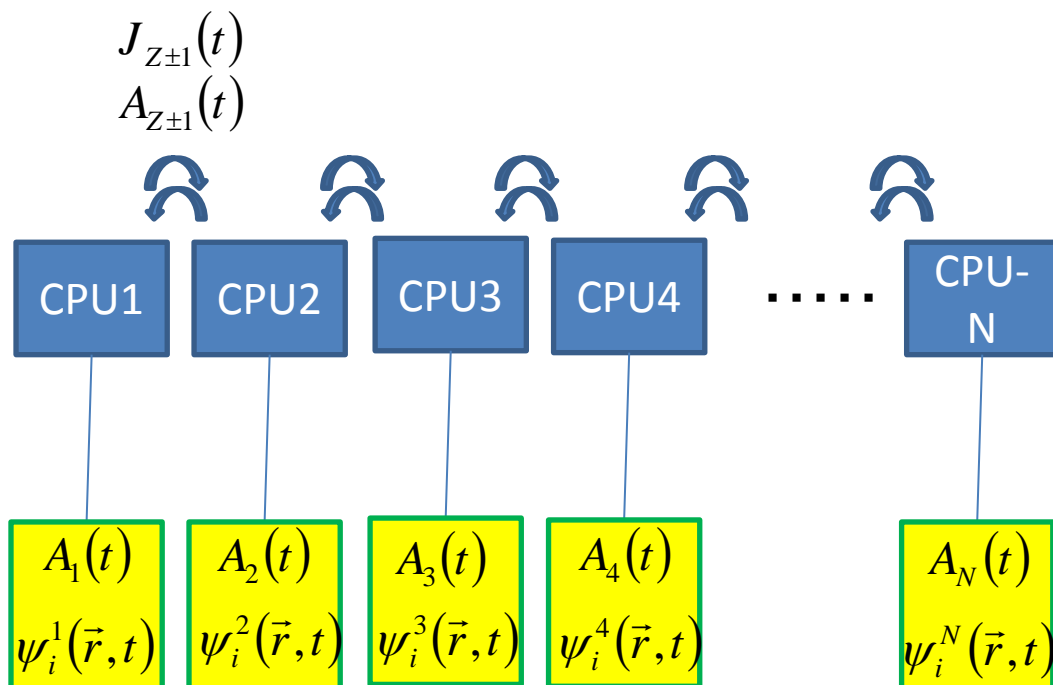
各巨視的格子点毎に、電子の軌道関数を用意 $\psi_{i,Z}$
微視的格子点 (nm以下) して、電子軌道の時間発展

$$i\hbar \frac{\partial}{\partial t} \psi_{i,Z} = \frac{1}{2m} \left(-i\hbar \vec{\nabla} + \frac{e}{c} \vec{A} \right)^2 \psi_{i,Z} - e\phi_Z \psi_{i,Z} + \frac{\delta E_{xc}}{\delta n} \psi_{i,Z}$$

$$\vec{\nabla}^2 \phi_Z = -4\pi \{ en_{ion} - en_{e,Z} \}$$



各巨視的格子点に(複数の)計算ノードを配置、ノード間通信は、高々数十バイト



電磁場(ベクトルポテンシャル)の時間発展は、隣接ノード間で情報を交換。

各ノードでは、独立に電子ダイナミクスの時間発展を計算

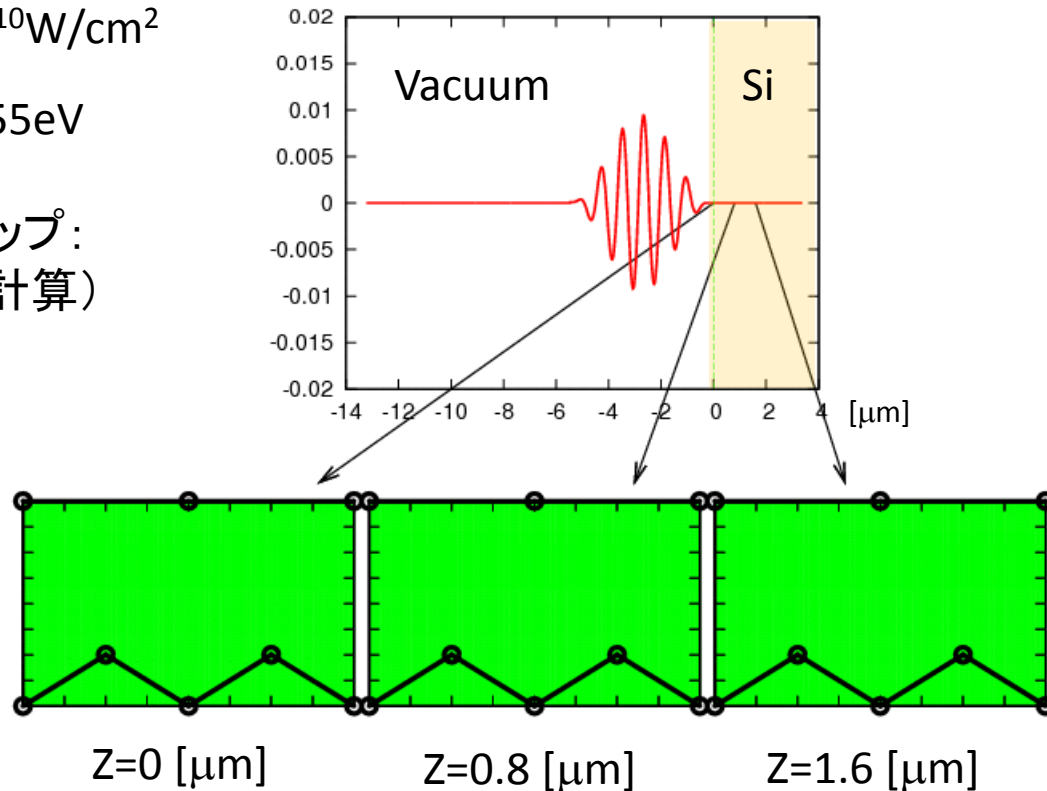
マルチスケール計算の例： 弱い光パルス (電磁場と電子ダイナミクスが分離する場合)

1024コア、10時間程度

光の強度 $I=10^{10}\text{W}/\text{cm}^2$

光の振動数: 1.55eV

直接バンドギャップ:
2.4eV(LDA計算)



方程式が「解けている」ことの確認

保存量が保存されていること(エネルギー保存)で十分？

マルチスケール方程式を
与えるラグランジアンから
ハミルトニアン(保存する
エネルギー)を導くことが
できる。

$$L[\psi, \phi, A] = \int dZ \left[\sum_i \int_{\Omega(Z)} d\vec{r} \psi_{i,Z}^*(\vec{r}, t) i\hbar \frac{\partial}{\partial t} \psi_{i,Z}(\vec{r}, t) \right. \\ \left. - \frac{1}{2m} \left| \left(-i\hbar \vec{\nabla}_r + \frac{e}{c} \vec{A}_Z(t) \right) \psi_{i,Z}(\vec{r}, t) \right|^2 \right. \\ \left. + \int_{\Omega(Z)} d\vec{r} \left\{ e \left(n_{ion,Z}(\vec{r}) - n_{e,Z}(\vec{r}, t) \right) \phi_Z(\vec{r}, t) - E_{xc}[n_Z(\vec{r}, t)] \right\} \right. \\ \left. + \int_{\Omega(Z)} d\vec{r} \frac{1}{8\pi} (\vec{\nabla}_r \phi_Z(\vec{r}, t))^2 + \frac{\Omega}{8\pi c^2} \left(\frac{\partial^2 \vec{A}_Z(t)}{\partial t^2} \right)^2 + \frac{\Omega}{8\pi} (\vec{\nabla}_Z \times \vec{A}_Z(t))^2 \right]$$

$$H = \int dZ \left[\sum_i \int_{\Omega(z)} \frac{1}{2m} \left| \left(-i\hbar \vec{\nabla}_r + \frac{e}{c} \vec{A}_Z(t) \right) \psi_{i,Z}(\vec{r}, t) \right|^2 \right. \\ \left. + \int_{\Omega(Z)} d\vec{r} \left\{ \frac{e}{2} (n_{ion} - n_{e,Z}(\vec{r}, t)) \phi_Z(\vec{r}, t) + E_{xc}[n_Z(\vec{r}, t)] \right\} \right. \\ \left. + \frac{\Omega}{8\pi c^2} \left(\frac{\partial \vec{A}_Z(t)}{\partial t} \right)^2 + \frac{\Omega}{8\pi} (\vec{\nabla}_Z \times \vec{A}_Z(t))^2 \right]$$

差分化の扱いで、エネルギー保存に敏感な部分

do

$$A_Z(t + \Delta t) = 2A_Z(t) - 2A_Z(t - \Delta t) + \frac{c^2 \Delta t^2}{\Delta Z^2} \{A_{Z+\Delta Z}(t) - 2A_Z(t) + A_{Z-\Delta Z}(t)\} + 4\pi c \Delta t J_Z(t)$$

$$\psi_{k,Z}(\vec{r}, t + \Delta t) = e^{-iH_Z(t)\Delta t} \psi_{k,Z}(\vec{r}, t)$$

$$J_Z(t + \Delta t) \leftarrow \psi_{k,Z}(t + \Delta t), A_Z(t + \Delta t)$$

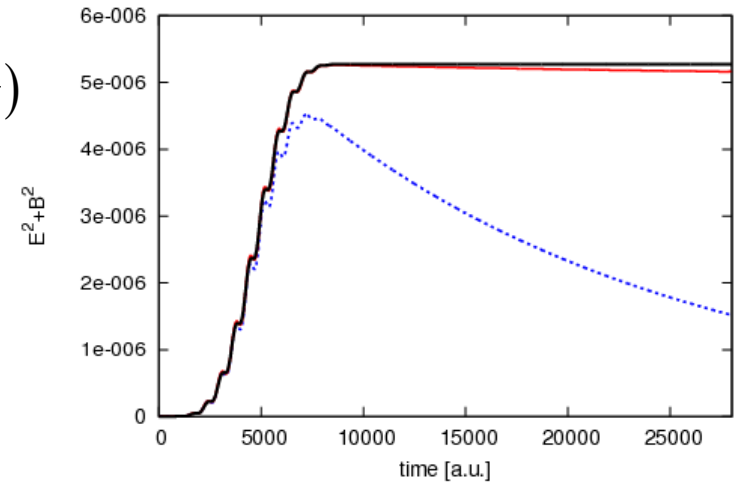
end do

軌道関数の時間発展に、どの時刻のハミルトニアンを用いるか？

$$H_Z[A_Z(t), \rho_Z(\vec{r}, t)]$$

電磁場のエネルギーの時間変化

$$I = 10^{10} \text{W/cm}^2$$



———— FDTD ($\epsilon = \text{constant}$)

- - - - $\hat{h}[A(t), \rho(t)]$

———— $\hat{h}\left[\frac{A(t) + A(t + \Delta t)}{2}, \rho(t)\right]$

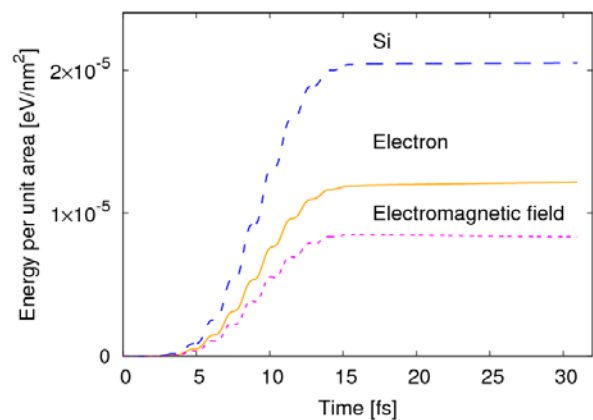
さまざまな強度の光に対して、電磁場と電子のエネルギーの和は良い精度で保存している。

--- 物資の全エネルギー

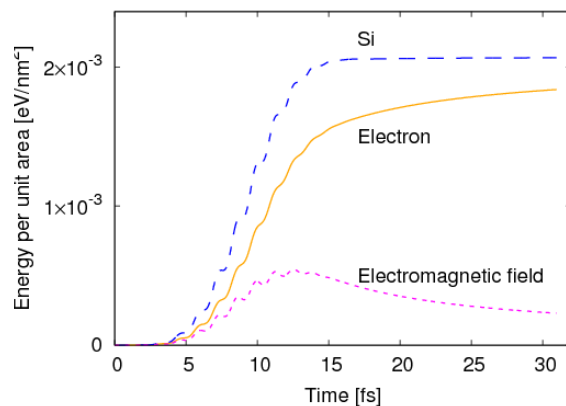
--- 電磁場のエネルギー

— 電子の励起エネルギー

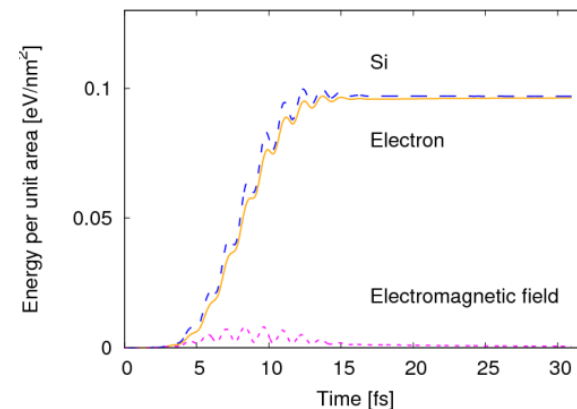
10^{10} W/cm^2



10^{12} W/cm^2



10^{14} W/cm^2



まとめ

(時間依存)密度汎関数理論

- フェルミ多粒子系の量子ダイナミクスを記述するアプローチ
- 実空間3D格子を用いた軌道関数の表現 ⇒ 超並列計算に便利

伝統的な光応答(一定振動数の弱い光電場に対する物質の応答)

- 実時間計算、線形方程式、固有値解法を実装
- 実時間計算は、実行可能であれば全スペクトルを求めるのに有効
- シフト法により、線形方程式と実空間法は、同程度の計算コストに
原子核の問題では、使えるソルバが限られている。
ポアソン方程式の負荷が線形方程式では律速となる場合も。

高強度な光と物質(固体)の相互作用

- 電磁気学と量子力学を融合したマルチスケール・アプローチ。
- 超並列計算機の進展により可能に。
ノード間の通信量が少なく、大規模並列向き。
- 1次元の光伝播で1000-10000コアが必須
2次元(斜入射、p偏光、自己収束、...)では100,000コア以上
- 「解けている」ことの確認?
- なるべく少ない格子での計算。動的格子生成(動的ノード生成)?