

瞬間誘導ラマン分光の Maxwell/TDDFT/MD マルチスケール シミュレーション
 — ダイヤモンドにおけるコヒーレントフォノンのポンプ・プローブ分光シグナルの解析 —
 Maxwell/TDDFT/MD Multi-Scale Simulation of Impulsive Stimulated Raman
 Spectroscopy — Analysis of Pump-Probe Signal of Coherent Phonon of Diamond —

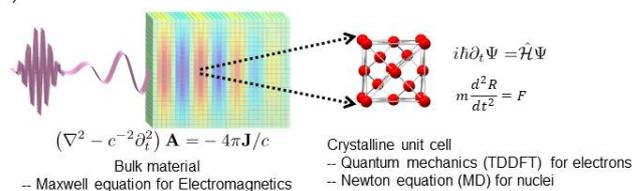
筑波大・計科セ¹ °山田 篤志¹, 矢花 一浩¹

Univ. Tsukuba¹, °Atsushi Yamada¹, Kazuhiro Yabana¹

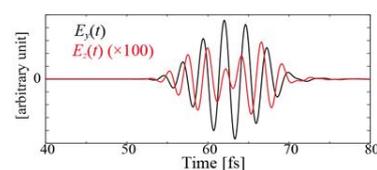
E-mail: ayamada@ccs.tsukuba.ac.jp

物質中の電磁波の伝搬を記述する Maxwell 方程式と、原子・ナノスケールにおいて第一原理的に電子ダイナミクスを記述する時間依存密度汎関数理論(TDDFT)の異なる二つのスケールを組み合わせたマルチスケールシミュレーション法が当研究グループにより開発されてきた。この手法では実験系全体を模倣することができ、透過や反射といった一連の分光プロセスの結果として得られる非線形性まで含む観測シグナルを直接的に再現することができる。本発表では、その手法に原子核のダイナミクス(MD)を導入した Maxwell/TDDFT/MD マルチスケールシミュレーションの開発および瞬間誘導ラマン分光への適用を報告する。本計算では図(a)に示すように、マクログリッド(幅=15nm)で記述した電磁波(今回は一次元)と、各マクログリッド点での原子・電子状態を表すダイヤモンドの単位セル(三次元周期系, 一辺 3.57Å)を与える。ミクロレベルでは TDDFT に従った電子の波動関数とカップルして原子核についてのニュートン方程式を解く。波動関数と核の運動から得られるミクロレベルの電流密度と巨視的なベクトルポテンシャルが両スケールを繋ぐ媒介物理量となり連立した方程式を解いてそれぞれの時間発展を得る。図(b)にダイヤモンド中のプローブ光の伝搬(図(b)上)とラマン散乱の増幅(図(b)下)が再現された様子を示す。これはその前のポンプ光で生成されたコヒーレントフォノンにより誘起されて起こる。プローブ光の透過波(図(c))から実験に対応した観測スペクトルを見積もることができ、その一例としてコヒーレントフォノンによる透過変化スペクトルを示す(図(d))。実験による測定結果(Nakamura, et al., Phys.Rev.B, 94,024303 (2016))が示すようなプローブ光のピーク ω_p の $\pm\Omega$ (フォノン周波数) に正と負のピークを再現した。

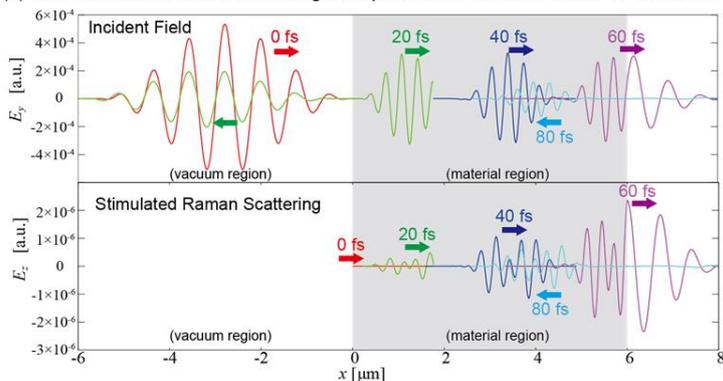
(a) Maxwell/TDDFT/MD multi-scale simulation



(c) Transmission Wave



(b) Multi-scale Simulation of Probing in Impulsive Stimulated Raman of Diamond



(d) Transmission Change

