電子・正孔対相互作用を取り込んだ固体電子ダイナミクスの 第一原理計算

First-principles calculation including electron-hole pair interaction for solid-state electron dynamics

東大院工¹, °篠原 康¹

School of Engineering, The Univ. of Tokyo¹, °Yasushi Shinohara¹

E-mail: shinohara@atto.t.u-tokyo.ac.jp

物質のギャップよりも小さな光子エネルギーを持った高強度光電場に誘起される電子ダイナミクスは、電場振幅に対して極めて非線形な応答を示し、関与する自由度が多岐にわたるため、その統一的理論の開発は十分ではない。こうした現象を理解するうえで、物質個々の電子状態を取り込んだ第一原理計算によるシミュレーションと実験の比較が有効なアプローチの一つである。

固体に対する電子ダイナミクスの第一原理シミュレーションとしては、時間依存密度汎関数理論(TDDFT)[1]がよく用いられてきた。TDDFTは現実的な計算コストで、固体の電子ダイナミクス計算が出来る理論である。しかし、TDDFTの精度を決定する交換相関汎関数については、専らシンプルなものを用いられており、バンドギャップは実験値と同じものが得られる一方、電子・正孔引力に伴う励起子の記述が不十分であることが知られていた。この汎関数に対して、交換項を部分的に混ぜたハイブリッド汎関数が電子系基底状態を精緻に記述するため、電子基底状態の記述法として一般的になってきた。この交換項は励起子形成において重要な役目を演じる[2]一方、その計算コストの大きさが問題である。近年の計算機技術の進展で、何とか電子励起状態にも適用可能な目算が立ってきたが、未だ十分な調査がなく、その適用例はわずか三例[1, 3, 4]のみである。本研究では、ハイブリッド汎関数を用いたTDDFTの精度調査を目的に、独自に開発したハイブリッド汎関数を取り込んだTDDFTの計算コードで調べたいくつかの固体の誘電応答、および非線形光吸収の結果を報告する。

[1] Shunsuke A. Sato, et al., *J. Chem. Phys.* **143**, 224116 (2015).

[2] Takuya Ikemachi, Yasushi Shinohara, et al., *Phys. Rev. A* **98**, 023415 (2018).

[3] Joachim Paier, Martijn Marsman, and Georg Kresse, *Phys. Rev.* **78** (2008) 121201.

[4] C.D.Pemmaraju, *Computational Condensed Matter* **18**, (2019) e00348.