

氏名	佐藤駿丞
学位の種類	博士（理学）
学位記番号	博甲第7640号
学位授与年月日	平成28年3月25日
学位授与の要件	学位規則第4条第1項該当
審査研究科	数理物質科学研究科
学位論文題目	Time-dependent density functional theory for extremely nonlinear interactions of light with dielectrics（光と誘電体の極限的非線形相互作用に対する時間依存密度汎関数理論）
主査	筑波大学教授 博士(理学) 中務 孝
副査	筑波大学教授 理学博士 矢花一浩
副査	筑波大学教授 博士(理学) 岡田晋
副査	東京理科大学教授 理学博士 渡辺一之

論文の要旨

本論文は、高強度で非常に短いパルス光と誘電体の相互作用を記述する理論的・計算科学的手法の開発と、その応用を論じたものである。高強度超短パルス光と物質の相互作用は、光科学の分野で発展の著しい分野であり、高強度パルス光と固体の非線形相互作用に関し、現在活発に研究が行われている。本論文は、光電場により生じる電子ダイナミクスを経験的なパラメータを導入することなく記述する第一原理的な枠組みとして時間依存密度汎関数理論に基づく方法を発展させ、その基礎方程式である時間依存コーン・シャム方程式を実時間・実空間で解く数値計算手法を開発している。さらにその電子ダイナミクス計算と光電磁場を記述するマクスウェル方程式を、マルチスケール手法を用いて連結する方法が論じられている。それらを用いて、光が物質に不可逆な変化を生じる前後の強度における、極限的な非線形光応答に対する応用が述べられている。

論文の構成は、以下のようになっている。

第1章は、高強度超短パルスレーザーと物質の相互作用に関する実験的・理論的研究の導入が述べられ、本論文の目的が示されている。

第2章は、理論的枠組みの説明に充てられている。物質の第一原理計算で最も良く知られている密度汎関数理論の基礎に関する説明から出発し、時間依存密度汎関数理論への拡張、結晶における電子ダイナミクスを記述する時間依存コーン・シャム方程式の定式化、マクスウェル方程式と結合した取り扱い、交換相関ポテンシャルの選択などが述べられている。

第3章では、本論文で行う数値計算の手法が詳細に述べられている。実空間及び実時間で時間依存コ

ーン・シャム方程式を解く数値的な手法を述べたのち、超並列計算機を高効率に用いるための並列計算の手法、さらにマクスウェル方程式と結合したマルチスケール計算の数値的な実装が説明され、最後にマルチスケール計算の計算効率に関する結果が述べられている。

第4章では、結晶の単位セルに電場を印加して生じる電子ダイナミクス計算について述べられている。弱い電場に対する線形領域の応答計算、及び強いパルス電場が印加された時の励起エネルギーの計算や、励起電子密度の計算が述べられている。

第5章では、結晶中の電子がパルスレーザーにより強く励起されたときに、物質の光学応答が基底状態からどのように変化するかに関する解析の結果が述べられている。このような分析を実験的に行う際に用いられるポンプ・プローブ分光の方法を計算により模擬するため、外場としてポンプ電場とプローブ電場を共に含む時間依存コーン・シャム方程式が解かれる。プローブ電場により生じるカレントを調べることにより、物質のポンプ電場による変化を調べることができる。本論文ではそのような応答の変化を、パルスレーザーが照射した直後の電子励起が非等方的な場合と、照射後しばらく時間が経過して熱平衡となった場合について、論じている。誘電率の実部については単純なドルーデモデルによる記述が可能であるが、虚部についてはより複雑な振る舞いが見られることが示されている。

第6章では、高強度超短パルス光が誘電体(α クォーツ)薄膜を透過する場合に生じる非線形分極を、マルチスケール計算により調べた結果が論じられている。特に、物質にダメージを与える直前の光強度における、極限的な非線形分極の振る舞いが論じられている。光の強度がダメージ閾値に近づくと、急速に物質中の電子励起が増す様子が示され、最近の実験結果との比較が示されている。

第7章では、さらに強度が増したパルス光で起こる光ダメージに対する応用が論じられている。レーザーは物質を加工する手段として用いられるが、高強度のフェムト秒レーザーを用いると非熱的な加工が可能となることが知られており、その応用が注目を集めている。本論文で発展させたマルチスケール計算により、光から電子への不可逆なエネルギー移行を、物質表面からの深さの関数として得ることができる。これと物質の結合エネルギーを比較することで、アブレーションの起こり始める閾値や表面からの深度の実験値をほぼ再現できることが示されている。このことは、本論文で発展させた方法が、フェムト秒レーザー加工の初期過程の解明に有用であることを示すものである。

第8章では、まとめと今後の展望が述べられている。

審 査 の 要 旨

[批評]

高強度超短パルスレーザー技術の発展により、パルスレーザーと固体の相互作用に関する研究が著しい発展を遂げている。特に、物質に不可逆な変化が起こる前後の光強度における光と物質の非線形相互作用は、強い興味を持たれている課題である。本論文で開発された理論的・計算科学的手法は、このような極限状況下での非線形光応答を調べる手段として、大変有効であると考えられる。本論文で応用例として示された、誘電率の超高速変化、薄膜を透過するパルス光により生じる非線形分極、そしてフェムト秒レーザー加工の初期過程は、いずれも実験研究で測定可能な観測量が計算されており、実験研究との密接な連携により当該分野への高い貢献が期待できるものである。また、本論文で開発した計算手法の中

で、特に電磁界解析と電子ダイナミクス計算を連結したマルチスケール計算法は、今日利用可能な最大規模の超並列計算機を用いることにより可能となるものであり、計算科学的な面からも革新的であると評価できる。

〔最終試験結果〕

平成28年2月17日、数理物質科学研究科学学位論文審査委員会において審査委員の全員出席のもと、著者に論文について説明を求め、関連事項につき質疑応答を行った。その結果、審査委員全員によって、合格と判定された。

〔結論〕

上記の論文審査ならびに最終試験の結果に基づき、著者は博士(理学)の学位を受けるに十分な資格を有するものと認める。