

第一原理電子ダイナミクス計算による

メタ表面と極限パルス光の相互作用

First-principles electron-dynamics calculation for the interaction between the metasurface and extreme laser pulse

植本光治

神戸大学 大学院工学研究科

1. 研究目的

本研究プロジェクトは、高強度レーザーパルスとメタ表面間の光物質相互作用を、第一原理電子動力学計算と電磁界計算の結合解法によるシミュレーションから解明する。ナノ薄膜やメタ表面として知られるナノスケールの人工微細構造物の示す光学特性は基礎研究・工学応用の両面から関心を持たれており、強レーザー場との相互作用により現れる物理の理解は重要課題である。最近では、ナノスケールの物質から高次高調波発生(HHG: High Harmonic Generation)が実験的に報告されるようになり、超高速分光における新奇な光源として注目を集めている。また、金属構造物にサブナノメートルの空隙を持たせることで、量子トンネル効果による光電流発生が理論予測されており、トンネル電流のもつ強い非線形性を用いた高効率波長変換デバイスなどのアプリケーションが提案されている。従来、メタ表面などナノ構造の光学応答解析には、時間領域有限差分法(Finite-Different Time-Domain: FDTD)に代表される Maxwell 方程式の数値解法が用いられているが、強レーザー場下での非線形性応答・電子動力学が重要となる上記ターゲットでは、電子系の量子力学的記述をシミュレーションに取り入れることが必要不可欠である。

本課題代表者らのグループでは、時間依存密度汎関数法 (Time-Dependent Density Functional Theory: TDDFT) をもちいた 第一原理電子動力学計算により、高強度レーザーパルス下における光応答の理論予測の手法開発を行ってきた。実時間実空間 TDDFT 計算と FDTD による電磁界解析を結合させた、物質中の光伝搬解析の手法 Maxwell + TDDFT 法の開発を行っている。我々はこれらを実装した計算コードパッケージ: SALMON (Scalable Ab-initio Light-Matter interaction for Optics and Nanoscience) を開発し、オープンソースプログラムとして公開している。

本プロジェクトでは、SALMON コードを駆使した、高強度レーザーとナノスケールの物質の非線形相互作用の解析を行う。また、「Oakforest-PACS」「富岳」などさまざまな超並列計算環境に向けてコード最適化おこなう。

2. 研究成果の内容

- (1) 金属ナノ構造を二次元的に周期配列した薄膜であるメタ表面は、金属ナノ構造の幾何因子により決定する特異な光物性を発現する。特に昨今では、自己組織化を用いることで 1nm 未満(サブ nm)の金属ナノ構造距離(ギャップ)を持つメタ表面が、安定かつ大面積に作成できる手法が確立している。このようなメタ表面は、サブ nm ギャップにて高い光増強を得られ、高い非線形光学効果を発現する。一方、サブ nm ギャップでは量子トンネル効果による光電流が誘起し、光物性が激変することも知られているが、メタ表面における非線形効果における影響は知られていなかった。そこで本研究では SALMON を用い、サブ nm ギャップを持つメタ表面の非線形光学応答を調査した。結果、ギャップ 0.4nm 以下にて量子トンネル効果が生じ、光増強とは独立に非線形効果の急激な上昇が得られた。
- (2) アト秒過渡吸収分光と結晶対称性: 物質と極限パルス光の相互作用というテーマに関連して、アト秒過渡吸収分光における時間分解過渡吸収スペクトルの結晶対称性に関する依存性の研究を行った[1]。一般に、誘電体結晶のアト秒過渡吸収分光においては、バンドギャップ以下の高強度ポンプ光によって誘起された過渡的な光学応答変化をプローブ光の吸収スペクトルにより観測する。本研究では、結晶対称性に対する過渡吸収スペクトルの時間領域における振動数特性を、時間依存摂動論を用いて解析した。空間反転、鏡映、回転、回映対称性の各場合について得られる振動数特性が異なることを理論的に示し、実際にこの予測が成り立つことを六方晶炭化ケイ素(4H-SiC)について TDDFT 第一原理計算を用いて実証した。
- (3) 高強度レーザー・固体物質の相互作用に関する第一原理計算シミュレーション手法としてプログラムコード「SALMON」のマルチスケール計算用コードの整備をすすめた。近日リリース予定の SALMON バージョン 2 で新たに開発されたハミルトニアン・時間発展計算ルーチン向けに 1～3 次元の TDDFT に基づくマルチスケール計算コードの再実装を行った。また、半導体ブロッホ方程式をもちいたマルチスケール計算実装のため、SALMON コードによる第一原理計算からエネルギーバンド・遷移双極子モーメントの抽出を行い、Bloch 基底・Houston 基底にもとづく時間発展計算を行うためのコードを開発、計算精度評価をすすめている。

3. 学際共同利用が果たした役割と意義

- (1) サブ nm ギャップを持つメタ表面の非線形光学応答については、ギャップを細かく変動しつつ、それぞれの場合における非線形効果を調べる必要があり、計算コストが容易に増大する。本研究の一部は、学際共同利用の計算資源を用いて調査されてのものであり、その役割と意義は共に大きい。

- (2) アト秒過渡吸収分光と結晶対称性: 理論的予測を実証するための TDDFT 第一原理計算において、過渡吸収スペクトルの時間領域における振動数特性を解析するためにはポンププローブ実験に相当する計算を大量に実行する必要があったため、学際共同利用による OFP の計算リソースを活用した。
- (3) あらたに実装されたマルチスケール計算コードのデバッグ作業と計算精度評価のため大規模計算を必要とした。また Houston 規定に基づく半導体ブロッホ方程式計算のために必要な稠密なバンド構造データを作成するための計算資源として OFP を活用した。

4. 今後の展望

- (1) サブ nm ギャップを持つメタ表面の非線形光学応答については、今回の結果より量子トンネル効果に基づく高い非線形効果発現が実証され、現在論文投稿を準備中である。また、将来的にはこのような非線形効果の増強機構を利用した光情報通信素子の設計を行う予定である。
- (2) アト秒過渡吸収分光と結晶対称性: 六方晶炭化ケイ素(4H-SiC)についての第一原理計算は理論予測と一致したことから、実験の報告例がある窒化ガリウム(GaN)についても同様の解析を行い、実験との比較と検証を行う予定である。
- (3) ブロッホ方程式をもちいたコードの実装、精度評価をすすめるとともに、現在の SALMON のマルチスケール計算への組み込み、さらに3次元構造物の工学応答解析への適用を目指す。

5. 成果発表

(1) 学術論文

[1] T. Takeuchi, M. Noda, K. Yabana “Operation of Quantum Plasmonic Metasurfaces Using Electron Transport through Subnanometer Gaps” ACS Photonics **6**, 2517-2522 (2019): 10.1021/acsphotonics.9b00889

[2] Shunsuke Yamada and Kazuhiro Yabana “Symmetry properties of attosecond transient absorption spectroscopy in crystalline dielectrics” Physical Review B **101**, 165128 (2020): 10.1103/PhysRevB.101.165128

(2) 学会発表

竹内嵩, 矢花一浩 「ジェリウム模型計算によるサブ nm ギャップを持つメタ表面の非線形光応答」、日本物理学会第 75 回年次大会、3 月 16-19 日、2020、名古屋

竹内嵩, 矢花一浩 「サブ nm ギャップを有するプラズモニックメタ表面の非線形光学応答解析 —ジェリウム模型を適用した時間依存密度汎関数理論による検討—」、第 67 回応用物理学会秋季学術講演会、3 月 12-15 日、2020、東京

竹内嵩, 矢花一浩 「時間依存密度汎関数理論を用いたプラズモニックメタ表面の非

線形光学応答解析」、2019 年 CREST 次世代フォトニクス領域会議、1 月 21 日、2020、東京

T. Takeuchi, M. Noda, K. Yabana 「Refractive index variation of quantum plasmonic metasurface with sub-nm gaps」、The International Symposium on Plasmonics and Nano-photonics」、11 月 11-14 日、2019、神戸

竹内嵩, 野田真史, 矢花一浩 「サブ nm ギャップを有するプラズモニックメタ表面の屈折率変動機構の解明」、第 80 回応用物理学会秋季学術講演会、9 月 18-21 日、2019、札幌

T. Takeuchi, M. Noda, K. Yabana 「Linear and nonlinear optical responses of plasmonic metasurface with sub-nm gaps」、27th International Conference on Advanced Laser Technologies (招待講演)、9 月 15-20 日、2019、Prague, Czech Republic

T. Takeuchi, M. Noda, K. Yabana 「Numerical Analysis of Quantum Plasmonic Metasurface by Time-Dependent Density Functional Theory」、19th International Conference on Numerical Simulation of Optoelectronic Devices、7 月 8-12 日、2019、Ottawa, Canada

Mitsuharu Uemoto, Kazuhiro Yabana 「Development of Multiscale First-Principles Approach for Optical Response in Nanostructure」、iSPN2019、11 月 12 日、2019、Kobe

Mitsuharu Uemoto, Atsushi Yamada and Kazuhiro Yabana 「Maxwell+TDDFT multiscale method for light-propagation in solids」、27th International Conference on Advanced Laser Technologies (招待講演)、9 月 16 日、2019、Prague, Czech Republic

植本光治, 蔵田 真太郎, 河口 紀仁, 矢花 一浩 「第一原理計算によるパルス光とグラファイト薄膜の相互作用」、日本物理学会秋季大会、9 月 12 日、2019、岐阜大学

植本光治, 山田篤, 矢花一浩 「大規模計算をもちいた極限パルス光・固体物質相互作用の第一原理シミュレーション」、ポスト「京」重点課題 7 第 5 回シンポジウム 2019 年 8 月 9 日、8 月 9 日、2019、東京大学

植本光治 「固体物質の光学応答第一原理計算～RNN による誘電応答学習の提案～」、MI²I・元素戦略・ポスト京・計算物質科学コンソ・合同 Working、7 月 20 日、2019、東工大

植本光治、「TDDFT による第一原理電子ダイナミクス計算とナノフォトニクスへの適用に向けて」、光量子科学連携研究機構 (UTripl) セミナー、7 月 1 日、2019、東京大学

山田俊介, 矢花一浩 「薄膜における高次高調波発生の第一原理計算、日本物理学会

第 75 回年次大会」、2020/3/16-2020/3/19、2020、名古屋

S. Yamada, M. Noda, K. Nobusada, and K. Yabana 「First-principles study for interaction of pulsed light with thin materials」、iSPN2019、2019/11/11-

2019/11/14、2019、Kobe, Japan

山田俊介, 矢花一造 「結晶対称性と時間分解動的 Franz-Keldysh 効果の関係：理論と第一原理計算」、日本物理学会第 2019 年秋季大会、2019/9/10-2019/9/13、

2019、岐阜

(3) その他

使用計算機	使用計算機 に○	配分リソース※	
		当初配分	追加配分
Cygnus	○	235,000	0
Oakforest-PACS			

※配分リソースについてはノード時間積をご記入ください。