

## 大規模第一原理計算をもちいた光ナノデバイスのデザイン

### Design of Nanophotonic Device by Large-Scale Ab-initio Calculation

植本光治

神戸大学大学院工学研究科

#### 1. 研究目的

本研究課題では、高強度レーザーパルスとナノ物質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ことを目標とする。本年度は、光科学向けシミュレータ SALMON による大規模計算をもちいてナノ薄膜（半導体や半金属）の非線形光学応答を調査したほか、微粒子やナノ構造の光学応答計算向けの高速な手法の開発をおこなった。

#### 2. 研究成果の内容

##### ① ナノ薄膜による非線形光学応答の入射角度依存性

薄膜にたいして斜め方向からレーザーパルスが入射した場合の透過・反射を記述するためのフォーマリズムの構築し、SALMON コードの Maxwell+TDDFT マルチスケール計算へ実装した。デモンストレーションとして、厚さ 100~200 [nm] のシリコンナノ薄膜による非線形効果の入射光角度依存性の計算を試み、ナノ薄膜からの高調波発生の角度依存性や、光励起されたキャリアによる金属化が表面によるフレネル反射に及ぼす影響を解析した。

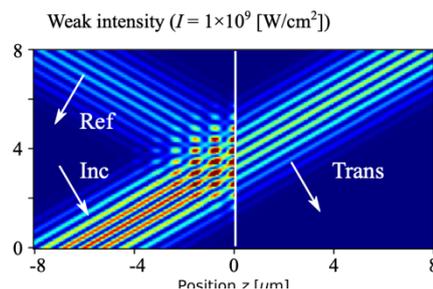


図 1 Si ナノ薄膜 への斜め入射の計算例  
Maxwell+TDDFT マルチスケール法による

##### ② 2次元物質ナノ薄膜における超高速可飽和吸収の理論予測

グラファイト・グラフェンなどの炭素の2次元物質はその特異な電子状態により、巨大かつ高速な非線形性応答（可飽和吸収）を見せる。本研究では、グラファイトのナノ薄膜に対する Maxwell+TDDFT マルチスケール法をもちいたレーザーパルス伝搬シミュレーションにより、特徴的な超高速の可飽和吸収が 10 フェムト秒以下の時間スケールかつ広い電場強度領域で出現することを確認した。これにより薄膜中の光伝搬は、線形応答モデルの場合に比べ遥かに深く侵入することが明らかになった。同成果は 2021 年 2 月に Physical Review B 誌に掲載された。さらに本課題では、二次元的電子構造をもつ遷移金属ダイカルコゲナイド(TMDC)系化合物である TiS<sub>2</sub> (硫化チタン) についても同様の第一原理計算に基

づく解析おこないを、10~20フェムト秒のごく短時間で光吸収率の変化を確認した。

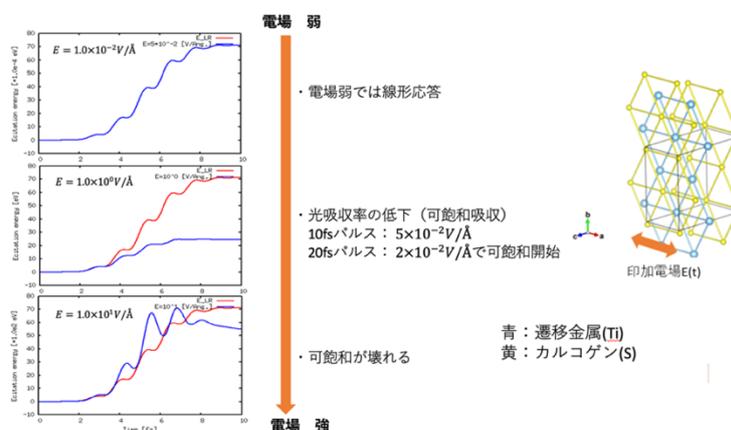


図 2 TiS<sub>2</sub>における高強度レーザーパルス下の光吸収の入射光強度依存性

### ③大規模ナノ構造の光学応答計算に向けた計算コード準備

筑波大学を中心に開発されている SALMON コードの v 2.0.x 向けに Maxwell+TDDFT マルチスケールシミュレーションの実装・機能拡張を行った。また、大規模な 3 次元構造物において TDDFT の適用は現状では計算量的に困難のため、より高速な半導体ブロッホ方程式(SBE)をもちいたソルバーを開発した。本コードは SALMON の基底状態計算と連携して動作可能であり、シリコンバルク結晶をもちいたデモンストレーションでは SALMON の TDDFT 計算と概ね同等の光応答が再現できることが明らかになった。

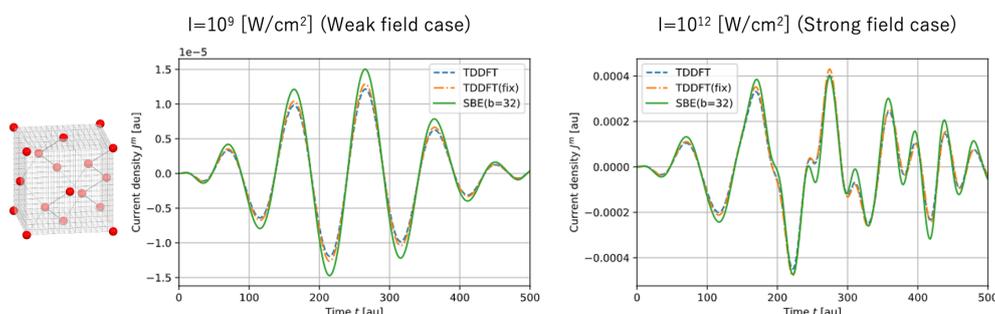


図 3 高強度レーザーパルス下のシリコン結晶の誘起電流密度：TDDFT (青) および SBE (緑) による  
オレンジは比較のため動的スクリーニング効果を無視した TDDFT 計算

### ④Graphene/FePd の第一原理電子状態計算

遷移金属化合物に炭素の二次元物質であるグラフェンを積層したナノ構造物は、電子のスピンをもちいたスイッチング・情報処理を行うデバイスへの応用が期待される。本研究では、東北大学の実験グループと協力し、鉄・パナジウム合金(FePd)表面上の炭素原子の安定配置の探索および電子状態の第一原理的な予測を試みた。先行する実験とよく整合する特性を持つ表面構造を見出すことに成功した。

### 3. 学際共同利用が果たした役割と意義

前述の①射方入射計算では単一の入射光条件あたりの計算コストとして100ノード時間積程度ほどが必要であり、さまざまな入射条件（強度・角度など）の探査や計算コードの調整作業のため、その100倍程度のコストを必要とした。また、成果②でとりあつかった遷移金属化合物のTDDFT計算では、実空間・ $k$ 空間ともに細密グリッドが必要となり、単一の入射光条件あたり500~1000ノード時間積と予想以上に計算コストが必要となった。いずれも研究室で使用する通常のワークステーションでは扱いが困難な規模の計算であり、本共同利用課題のリソースにより実現できたと考える。

### 4. 今後の展望

①斜方入射計算については高速化、精度改善のため計算手法を模索中である。将来的には第一原理的な高調波発生の角度依存性調査や表面プラズモン励起の理論予測に応用を行いたい。②TMDC系の二次元物質は多くの化合物が発見されており、他の組成の化合物においても非線形光学応答の計算を行っていききたい。また、現在の材料科学におけるマテリアルズインフォマティクス的手法と組み合わせることで、非線形光学材料の探索といった応用ができないか検討中である。③SBE計算コードについては計算精度の改善をすすめ、メタ表面・メタ物質への適用を目指す。

### 5. 成果発表

#### (1) 学術論文

[1] Mitsuharu Uemoto, Shintaro Kurata, Norihito Kawaguchi, Kazuhiro Yabana First-principles study of ultrafast and nonlinear optical properties of graphite thin films, *Physical Review B* **103**(8) (2021)

### 6. 学会発表

#### (1) その他

[1] 植本光治, 安達隼人, 永沼博, 小野倫也 「Graphene/FePd(001)表面の構造探索について」 新合同ワーキング 2021年3月21日

[2] 植本光治, 安達隼人, 永沼博, 小野倫也 「Graphene/FePd(001)表面上の第一原理電子状態計算」 日本物理学会第76回年次大会 2021年3月12日

[3] 植本光治, 安達隼人, 永沼博, 小野倫也 「第一原理電子状態による Graphene/FePd(001)表面上の構造予測について」 強的秩序とその操作に関する第12回講演会 2021年1月4日

[4] 峰雪序也, 栗田寅太郎, 下間靖彦, 隅谷和嗣, 今井康彦, 木村滋, 藤原正規, 水落憲和, 清水雅弘, 三浦清貴 「パルスレーザー照射によるダイヤモンド内部へのNVセンター形成と制御」 レーザー学会学術講演会第40回年次大会 2020 仙台国際センター

[5] 矢野下瑠星, 栗田寅太郎, 下間靖彦, 藤原正規, 水落憲和, 清水雅弘, 三浦清貴  
 「フェムト秒パルスレーザーのパルス間の時間変化によるダイヤモンド内の NV  
 センター形成への寄与」レーザー学会学術講演会第 41 回年次大会 2021 (遠隔)

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			
Oakforest-PACS	○	230,000	
※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。			