

# ナノ薄膜とナノ粒子における微視的な光・電子相互作用の第一原理計算 First-principles calculations of microscopic light-matter interaction in nanoscale thin films and nanoparticles

山田 俊介

筑波大学 計算科学研究センター

## 1. 研究目的

我々は高強度光パルスと物質との相互作用に関して、時間依存密度汎関数理論 (TDDFT) に基づく第一原理計算による研究を推進している。パルス光照射により引き起こされる電子の時間発展を実時間・実空間法を用いて計算するオープンソースソフトウェア SALMON (Scalable Ab-initio Light-Matter simulator for Optics and Nanoscience, <http://salmon-tddft.jp>) の開発プロジェクトに参画し光科学と物質科学の研究に貢献することを目指している。本課題では、ナノ薄膜における高次高調波発生 (HHG) の第一原理計算とアト秒過渡吸収分光における結晶対称性に関する研究を行う。

## 2. 研究成果の内容

### (1) ナノ薄膜における高次高調波発生 (HHG) の第一原理計算

固体薄膜における高次高調波発生 (HHG) の膜厚依存性、特に高次高調波を最大化する膜厚を求めるための第一原理計算は、理学・産業両面から興味ある研究テーマである。薄膜に高強度パルス光を照射した際に観測される反射波及び透過波に含まれる高次高調波は、薄膜中における光伝搬の効果により、バルク中の微視的な HHG 信号から大きく変調を受ける。また、極めて薄い薄膜においては電子状態の表面効果による HHG の変調が顕著になると考えられる。そこで本研究では電子系の表面効果と光伝搬の効果を統一的に記述可能な微視的 Maxwell-TDDFT 法を用いて Si 薄膜の HHG に関する第一原理計算を行った。本手法は、光電磁場のための微視的 Maxwell 方程式と電子系のための時間依存 Kohn-Sham 方程式を結合し、共通の実空間グリッド上で同時に時間発展させる第一原理計算法である。

図 1 に Si 薄膜に高強度パルス光を照射した際の反射波・透過波に含まれる 3 次から 9 次の高次高調波成分の膜厚依存性を示した。表面効果が重要

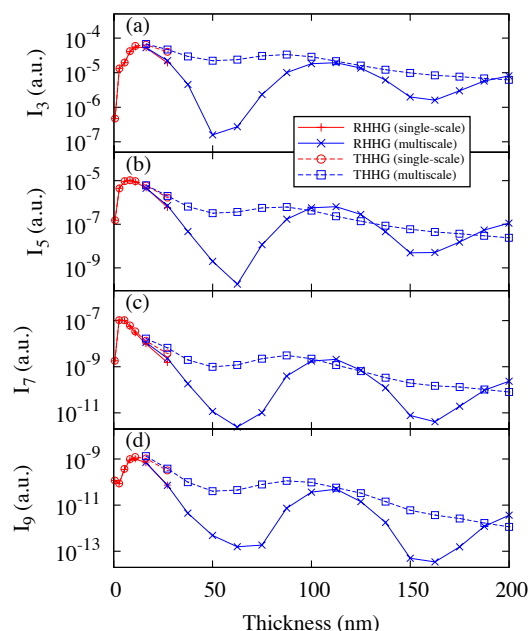


図 1: Si 薄膜における光振動数 1.5 eV の入射光に対する反射 HHG (RHHG) と透過 HHG (THHG) の膜厚依存性

となる膜厚の小さい領域では微視的 Maxwell-TDDFT 法 (赤)、膜厚の大きい領域では表面効果を見逃したマルチスケール Maxwell-TDDFT 法 (青) を用いている。この膜厚依存性は線形領域での透過率と概ね相関しており、前面・裏面における基本波の強度が反射・透過 HHG の強度を決定していることが明らかになった。また、高次高調波を最大化する膜厚は概ね 2 から 15nm 程度であり、薄膜を 2 次元的に記述する近似的な理論を用いてこの膜厚を伝導率の値から予測することができた。

## (2) アト秒過渡吸収分光における結晶対称性に関する研究

多くの固体におけるアト秒過渡吸収分光ではポンプ光の 2 倍の振動数に対応する信号が観測されるが、一部の固体ではその他の振動数も確認されている。本研究ではアト秒過渡吸収分光で観測される振動と結晶対称性の関係を明らかにするために、理論的解析と第一原理計算による検証を行った。固体におけるポンプ光照射下の伝導率テンソルを解析した結果、波動関数の結晶対称性に対する依存性が伝導率の振動特性を決定することが明らかになった。特に反転対称性または鏡映対称性を持つ結晶では 2 倍の振動数となることが予測され、多くの実験結果と整合している。また、N 回回転対称な結晶では円偏光のポンプ光に対して N 倍の振動数の信号が予想されることがわかった。実際にポンプ・プローブ実験を模擬した第一原理計算を 4H-SiC 結晶に対して実施したところ、理論的予測を裏付ける結果が得られた。

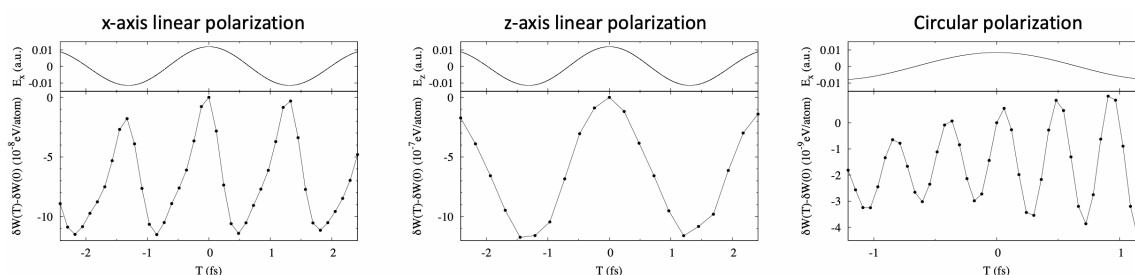


図 2: 4H-SiC における過渡吸収 (プローブ光の吸収エネルギー) の第一原理計算。左から順に鏡映対称の場合 (直線偏光)、対称性の無い軸の場合 (直線偏光)、6 回回転対称の場合 (円偏光) に対応している。

## 3. 学際共同利用が果たした役割と意義

SALMON は OFP 用にチューニングされているため計算効率が良く、学際共同利用のリソースを活用することで大規模計算を多数実行できた。上記の研究成果はナノ薄膜の膜厚やポンプ・プローブ過程のディレイ時間等様々なパラメータを変化させながら大量の第一原理計算を実行することで始めて達成することができた。

## 4. 今後の展望

時間領域における光電磁場と電子系の微視的な相互作用を記述するさらなる計算機能、解析手法を進展させ、SALMON の開発をさらに推進していくとともに、これらを活用した

光科学の研究を展開していく。

5. 成果発表

(1) 学術論文

- [1] Shunsuke Yamada and Kazuhiro Yabana, “Symmetry properties of attosecond transient absorption spectroscopy in crystalline dielectrics”, *Phys. Rev. B*, **101**, 165128 (2020).
- [2] Shunsuke Yamada and Kazuhiro Yabana, “Determining the optimum thickness for high harmonic generation from nanoscale thin films: An ab initio computational study”, *Phys. Rev. B*, **103**, 155426 (2021).

(2) 学会発表

- 1. 山田俊介、矢花一浩、「半導体ナノ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 2020 年秋季大会、2020 年 9 月 8～11 日（オンライン）
- 2. Shunsuke Yamada and Kazuhiro Yabana, “Symmetry aspects of attosecond transient absorption spectroscopy in a dielectric crystal”, The 22nd International Conference on Ultrafast Phenomena, 2020 年 11 月 16～19 日（オンライン）
- 3. Shunsuke Yamada and Kazuhiro Yabana, “The most efficient thickness of Si nano film for high-harmonic generation”, APS March Meeting 2021, 2021 年 3 月 15～19 日（オンライン）

(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			
Oakforest-PACS	○	240,00	0
※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。			