

量子論に基づくメタ表面・バルク表面の光応答計算

First-principles calculation of optical response of meta- and bulk surfaces

矢花 一浩

筑波大学計算科学研究センター

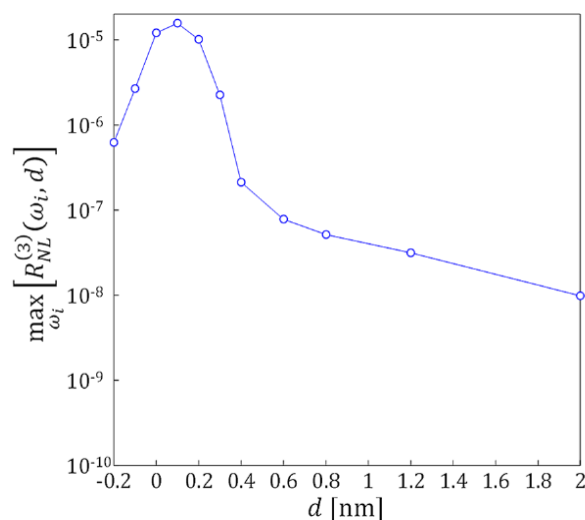
1. 研究目的

本課題は、物質科学の第一原理計算法に基づき、光のパルス電場が印加された物質中の電子ダイナミクスを計算し、原子スケールから光と物質の相互作用を明らかにすることを大きな目的としている。本年度は金属ナノ粒子が平面上に整列したプラズモニック・メタ表面や、金属や誘電体などのバルク物質の光応答を系統的に調べることを目的とした。またこれらの研究を通して、我々のグループで開発を進めている物質科学の第一原理計算法を用いた光科学ソフトウェア SALMON を発展させることも目的としている。

2. 研究成果の内容

金属ナノ粒子の光応答では表面プラズモンが支配的であり、ナノ粒子の形状や配置を変化させることにより光応答を制御することが可能である。最近のナノ技術の発展により、金属ナノ粒子を2次的に規則正しく配置したメタ表面が作成され、その特徴的な光応答に興味を持たれている。特に、ナノ粒子間の距離が減少するにつれて、ナノ粒子の表面に誘起された電荷どうしが相互作用しプラズマ振動数が低くなり、さらにナノ粒子間の距離が原子サイズにまで縮まると、ナノ粒子間を流れるカレントが発生し、それがメタ表面の光応答に強い影響を及ぼす。このようなナノ粒子間の距離が著しく小さいメタ表面を記述するためには、電子の運動を量子力学的に扱うことが必須となる。そこで我々は、電子の運動を量子論である時間依存密度汎関数理論に基づき記述し、ジェリウム模型の範囲でメタ表面の光応答に関する計算を行った。

右図で、横軸はナノ粒子間の距離 d 、縦軸は3次の非線形反射率 $R_{NL}^{(3)}$ を示す。 $R_{NL}^{(3)}$ はナノ粒子間距離が 0.6nm までは距離の減少とともに単調増加するが、この増加はナノ粒子の間に生じる近接場増強に起因し、先行実験研究とも定性的に一致する。一方、ナノ粒子間距離が 0.4nm 未満の領域では、



サブ nm ギャップを持つメタ表面の3次非線形反射率

$R_{NL}^{(3)}$ は急激に上昇し、特にピークとなる0.1nmでは0.6nmに比べ約千倍高い $R_{NL}^{(3)}$ が得られている。この増加は近接場光増強だけでは説明できず、金属ナノ粒子間を流れるカレントが示す強い非線形性に起因すると考えられる。このような著しく強い非線形光応答は、光情報素子の高効率化に役立つと考えられ、興味深い結果である。

また、バルク金属物質、誘電体物質の光応答を系統的に調べ、データベース化する取り組みを始めた。まずは金属としてLi、誘電体としてSiをとりあげ、種々の計算パラメータ（空間格子サイズ、k点など）に関して収束性を検討した。これらのデータは、ウェブを通じて公表していく予定である。

3. 学際共同利用が果たした役割と意義

本課題の計算は、極めて多くの軌道関数の時間発展を記述する必要があることから、スーパーコンピュータを用いた計算が不可欠である。学際共同利用によるリソースを用いることで、順調に計算結果を取得することが可能になった。

4. 今後の展望

プラズモニック・メタ表面の光応答に関しては、ジェリウム模型を用いたとしても量子論に基づく計算にはサイズの限界がある。現在、半古典近似を用いてより大きなサイズまで計算する手法の開発を進めている。また、種々の物質の計算データをアーカイブ化し、SALMONを使いやすいソフトウェアとして発展させたいと考えている。

5. 成果発表

(1) 学術論文

T. Takeuchi, K. Yabana, “Extremely large third-order nonlinear optical effects caused by electron transport in quantum plasmonic metasurfaces with subnanometer gaps”, Scientific Reports 10, 21270 (2020).

(2) 学会発表

K. Yabana, Y. Hirokawa, A. Yamada, S. Yamada, M. Noda, M. Uemoto, T. Boku, “Large-scale ab initio calculation of ultrafast dynamics in thin-film dielectrics, 22th Int. Conf. on Ultrafast Phenomena, Nov. 16-19 Online.

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	○	2000	0
Oakforest-PACS	○	266667	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。			