

## 第一原理計算にもとづく光・電子デバイスの研究

### Ab-initio study of nanoscale optical and electronics devices

植本光治

神戸大学 大学院工学研究科

#### 1. 研究目的

##### (1) 遷移金属ダイカルコゲナイドの可飽和吸収の第一原理計算

グラフェンや遷移金属ダイカルコゲナイド(TMDC: Transition Metal Dichalcogenide) に代表される 2 次元原子層物質は、その次元性を反映した特異な電子構造から近年広く関心が持たれている。非線形な光吸収特性である可飽和吸収特性においても、比較的弱い励起光強度のもと 10 フェムト秒オーダーの短時間でありながら高速かつ巨大な光吸収率変化を示すことが知られ、超短パルスレーザー発振器におけるモードロッカーとしての応用に向けた実験が行われている。本課題に先立ち、申請者は炭素（グラフェン・グラファイト）ナノ薄膜による可飽和吸収の第一原理計算に基づくシミュレーションを行っており、既存の実験報告に近い強度領域において高速な可飽和吸収の予測に成功した。[[M. Uemoto et al., Phys Rev B 103, 085433 \(2021\)](#)] MoS<sub>2</sub>, WS<sub>2</sub>, TiS<sub>2</sub> などに代表される TMDC もまた可飽和吸収体として関心が持たれている。本研究では同様の解析手法を硫化チタン(TiS<sub>2</sub>)に対して適用し、炭素以外の物質系においてどの程度有効であるかを調査した。

##### (2) 強磁性合金・グラフェン界面の第一原理計算

鉄・パラジウム(FePd)は L<sub>10</sub> 秩序構造をもった強磁性合金である。巨大な磁気異方性エネルギーと薄膜における低い Gilbert 緩和係数からスピントロニクスデバイスの材料として関心が持たれ、磁気トンネル接合素子(Magnetic Tunnel Junction: MTJ)などへの応用が期待されている。従来、上記物質による MTJ にはバリア層に MgO などがもちいられたが、FePd との格子定数の不一致が大きく輸送特性への悪影響が懸念される。最近、申請者と協力関係にある実験グループ（東北大永沼ら）により FePd(001)面上にグラフェンを積層した構造 (FePd(001)/Gr) が実験的に作成され良好な性質をもつことが報告された。[[H. Naganuma, M. Nishijima, H. Adachi, M. Uemoto et al., ACS Nano 16, 3 \(2022\)](#)]。界面上の詳細な原子構造は実験的には明らかとなっていない。また、FePd とグラフェンの格子対称性に違いにより、既存の FCC 金属・グラフェン吸着メカニズムに関する知見がそのまま適用できない。本研究では理論計算を用いた界面構造、電子状態・磁気状態の予測を行い、このような L<sub>10</sub> 秩序合金・グラフェン界面の理解を深める。

2. 研究成果の内容

(1) 遷移金属ダイカルコゲナイドの可飽和吸収の第一原理計算

本研究では、TiS<sub>2</sub>の短パルス高強度レーザー場下における電子系ダイナミクスを第一原理計算によりシミュレーションした。計算には筑波大計算科学研究センターにおいて開発されている SALMON (Scalable Ab-initio Light-Matter simulator for Optics and Nanoscience)コードを使用した。バルク結晶に対する計算では、10<sup>-2</sup>~10<sup>-1</sup> V/Å 程度で光吸収による誘起電流に飽和が現れ始めることが明らかとなった。さらに、薄膜近似にもとづく光透過シミュレーションをおこない、原子数層程度の TiS<sub>2</sub> 薄膜による光透過率の強度依存性[図(a)]を調べた。これを現象論的モデルと比較することにより飽和強度を定量的に計算することに成功した。飽和強度 (または飽和フルーエンス) はパルス長さに強く依存しており、パルス長さが伸びるほど飽和に必要なエネルギー量は減少する。パルス長さが 80fs に近づくにつれ、飽和強度は実験値に漸近することが明らかとなった。

(2) 強磁性合金・グラフェン界面の第一原理計算

本研究では、FePd 表面上を被覆するグラフェン構造を探索するため、さまざまな変形 (微小な引き伸ばしや圧縮) や回転 (ツイスト角) を含む界面構造を機械的に自動生成するコードを開発した。グラフェン層の歪みを最小にするようなスクリーニング条件のもとツイストした界面モデル[図(b)]を探索し、第一原理計算にもとづく構造最適化により -0.21 eV/atom の吸着エネルギーを得た。このような金属グラフェイト界面の吸着メカニズムは化学吸着と物理吸着に分類される。FePd(001)/Gr に関する計算結果は、化学吸着された遷移金属(Ni 等)とグラフェン界面のそれと同程度のオーダーであり、見出された原子配置が高い安定性を有することが確認された。また、Fe-C あるいは C-C 層間の距離の計算結果はおおむね最近行われた電子顕微鏡による測定結果とよく一致する。さらに、格子対称性の不一致は Fe-C 原子間相互作用に一種の平均化を引き起こし、界面にモアレ状のバックリンクを引き起こすことなどが確認された。[M. Uemoto *et al.*, arXiv:2201.07942] グラフェンの存在が磁気的性質に与える影響についても最近の X 線円二色性(XMCD)計測とよく整合する結果を得ている。

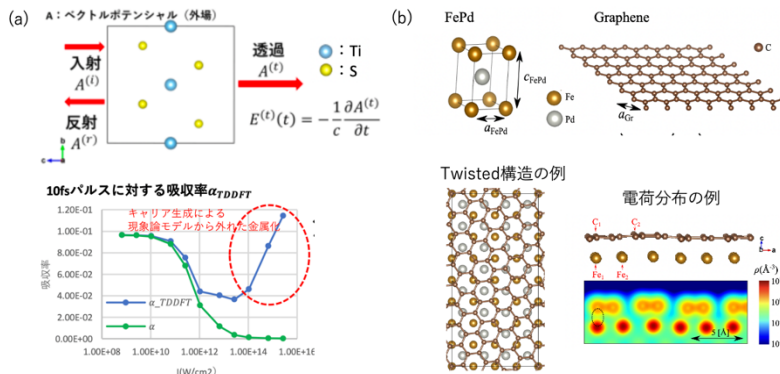


図: (a) TiS<sub>2</sub> の計算モデルと光透過率の計算例  
(b) FePd, Graphene(Gr) の構造と、ツイストした FePd(001)/Gr 界面構造の例

### 3. 学際共同利用が果たした役割と意義

「(1) 遷移金属ダイカルコゲナイドの可飽和吸収の第一原理計算」では SALMON コードによる TDDFT 計算のほぼすべてを Oakforest-PACS 上で実行した。2次元物質の光応答ではギャップ端の低状態密度の準位に関わる電子遷移が重要な役割を果たす。計算精度の向上のため、ブリルアンゾーンを多くの k 点でサンプリングする必要があり、ノード数の大きな並列計算が必要となった。また、「(2) 強磁性合金・グラフェン界面の第一原理計算」についても、構造生成プログラムの実行や開発作業の一部に同環境を使用した。

### 4. 今後の展望

「(1) 遷移金属ダイカルコゲナイドの可飽和吸収について」では硫化チタン(TiS<sub>2</sub>)名の薄膜に関する現在の計算結果をとりまとめ論文投稿を目指す。また、リン二次元物質(Phosphorene)などの物質系への適用、転移などの構造欠陥を含むグラフェンにおける非線形光学特性の理論予測を試みる。また、「(2) 強磁性合金・グラフェン界面の第一原理計算」では界面の磁気異方性エネルギー(Magnetic Anisotropy Energy)や、MTJ 形成時の伝導特性の理論計算を試みる。

### 5. 成果発表

#### (1) 学術論文

- 村上圭伊, 植本光治 「遷移金属カルコゲナイド系二次元物質の可飽和吸収特性の第一原理予測」光物性研究会論文集 75-78 2021 年 12 月 (査読なし・プロシーディング)
- Mitsuharu Uemoto, Naoki Komatsu, Yoshiyuki Egami, Tomoya Ono 「First-Principles Study on Structure and Anisotropy of High N-atom Density Layer in 4H-SiC」、Journal of the Physical Society of Japan 90(12) 2021 年 12 月 (査読あり・筆頭著者)

#### (2) 学会発表

- 植本光治 「第一原理電子ダイナミクス計算による半導体ナノ構造の非線形光学応答の理論予測」日本物理学会 第 77 回年次大会 2022 年 3 月
- 安達隼人, 植本光治, 永沼博, 小野倫也 「FePd(001)/Graphene の第一原理計算による磁気特性の計算」強的秩序とその操作に関する第 14 回講演会 2022 年 1 月、2022 年 1 月
- 村上圭伊, 植本光治 「遷移金属カルコゲナイド系二次元物質の可飽和吸収特性の第一原理予測」第 3 2 回光物性研究会 2021 年 12 月
- 村上圭伊, 植本光治 「遷移金属カルコゲナイド系物質の可飽和吸収特性の第一原理予測」日本物理学会 2021 年秋季大会 2021 年 9 月
- 安達隼人, 植本光治, 永沼博, 小野倫也 「FePd(001)/Graphene の第一原理計算

による電子状態計算」日本物理学会 2021 年秋季大会 2021 年 9 月

- 下間靖彦,栗田寅太郎,矢野下瑠星,木内康平,藤原正規,水落憲和,植本光治,矢花一浩,清水雅弘,三浦清貴「フェムト秒レーザー照射によるダイヤモンド内部への NV 中心形成」2021 年第 82 回応用物理学会秋季学術講演会 2021 年 9 月

(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	○	22000	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。			