

## 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

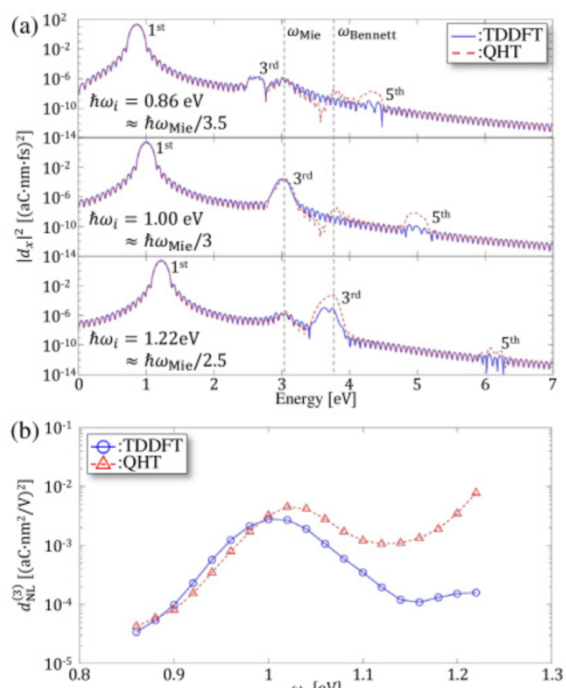
#### 1. 研究目的

本課題は、量子論に基づく記述により、パルス光が照射した物質中の電子ダイナミクスを計算することで光と物質の相互作用を明らかにすることを目的としている。本年度は金属ナノ粒子の光応答に対して量子流体理論に基づく計算法を開発し、ナノ粒子の線形・非線形光応答において電子運動の量子効果がどのように現れるのかを明らかにす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た。

#### 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重要な役割を果たす。この応答は古典電磁気学により記述することが可能であるが、最近では古典論では記述できない量子効果として、ナノ粒子の表面における電子染み出しの効果や、複数のナノ粒子が接近した時に生じるトンネル電流の効果などが大きな関心を集めている。そのような量子効果を記述するのに、時間依存密度汎関数理論(TDDFT)を用いた記述が有効であるが、TDDFTの計算は物質に含まれる数だけの軌道を用意する必要があることから、計算量が物質のサイズの2乗に比例し、サイズの大きいナノ粒子に対して計算を行うことが困難であった。このような事情のため、TDDFTに対する半古典近似とみなせる量子流体模型(QHT)が発展してきた。しかしQHTでは、流体方程式を電子密度が非常に小さい領域で正確に解くことが難しく、これまでほとんど線形応答に対する計算しか行われていなかった。

本研究はそのような困難を克服する方策として、QHTの基礎方程式と1軌道の時間依存シュレディンガー方程式の等価性



QHT と TDDHF を用いたナノ粒子の非線形光応答の比較 (1)。

に着目し、新たな数値解法を提案した。この方法を用いることで、非線形応答を何ら問題なく調べることが可能になった (1)。図に、直径が4.3nmのナノ粒子に対するQHTとTDDFTの非線形光応答の計算結果の比較を示している。(a)では横軸をパルスに含まれる振動数成分とした比較を示しており、(b)では系に加えたパルスの平均振動数に対する3次の非線形応答の比較を示している。いずれの場合も、電子染み出しを適切に記述すると、非線形応答もQHTを用いた記述がTDDFTにほぼ一致することを示している。

### 3. 学際共同利用が果たした役割と意義

本課題の計算は、差分法を用いて極めて大きい空間で量子力学に基づくの時間発展を記述する必要があることから、スパコン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

本研究で開発した手法により、数nm以上のサイズを持つプラズモニック・ナノ粒子やメタ表面の非線形光応答を調べることが可能となった。今後は、そういった物質の非線形光応答の特徴を明らかにするとともに、量子効果を用いたデバイス設計に向けた貢献をしたいと考えている。

### 5. 成果発表

#### (1) 学術論文

T. Takeuchi, K. Yabana, “Numerical scheme for a nonlinear optical response of a metallic nanostructure: quantum hydrodynamic theory solved by adopting an effective Schrödinger equation”, *Optics Express* 30, 11572 (2022).

#### (2) 学会発表

K. Yabana, “Ab initio description of ultrafast dynamics in solids”, CLEO Europe, June 20-24, 2021, online.

K. Yabana, “Ab initio simulations of ultrafast phenomena in solids: state of the art and challenges”, 1st Int. Conf. on Scientific Opportunities with Advanced Attosecond Lasers, Jan. 15-18, 2022, 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	○	5000	0
Oakforest-PACS	○	283333	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。			