内殻電子および磁性を考慮した光電子相互作用の第一原理計算

First-principles calculations of light-matter interaction for core electrons and magnetic systems

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。超短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://salmontddft.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、磁性や内殻電子を考慮した光・電子相互作用に関する第一原理計算を可能にするための SALMON の機能拡張と、これら新機能を遷移金属ダイカルコゲナイド薄膜等の系に適用した光・電子相互作用に関する研究を行った。

２．研究成果の内容

一般に、内殻電子の記述には極めて細かい実空間グリッドが必要になるため、従来の CPU を用いたハイブリッド並列化に加えて GPGPU による演算加速機能を実装することが有用である。そこで今年度は OpenACC を用いた SALMON の GPGPU 機能拡張を行った。結果として、OFP の CPU と Cygnus の GPU による比較で３倍以上の高速化を実現した。また、磁性を記述するために不可欠なスピン軌道相互作用を SALMON に実装し、遷移金属ダイカルコゲナイド薄膜での円偏光によるヴァレー選択的励起の検証などにより、実装に問題がないことを確認した。

SALMON の応用として、遷移金属ダイカルコゲナイド薄膜、特に WSe_2 単層膜について、超短パルス光と電子の相互作用に関する第一原理計算を実施した。WSe_2 単層膜に関して、直線偏光シングルサイクルパルスの CEP 依存性を利用したヴァレー選択的励起や円偏光パルスによる高次高調波発生、反射・透過波の過飽和吸収の研究を行った。計算では、ヴァレー選択的励起に重要なスピン軌道相互作用と、W の 5p 軌道等の内殻電子を考慮している。

３．学際共同利用が果たした役割と意義

SALMON の GPGPU 機能の開発に関して、Cygnus の GPU ノードをテスト環境として活用した。複数ノードを用いた MPI 並列計算での GPU 機能の検証には学際共同利用

の Cygnus リソースが不可欠であった。

光電子相互作用に関する研究に関して、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。上記の研究成果は光パルスの強度や CEP 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、解析手法を発展させ、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] Arqum Hashmi, Shunsuke Yamada, Atsushi Yamada, Kazuhiro Yabana, and Tomohito Otobe, “Nonlinear dynamics of electromagnetic field and valley polarization in WSe2 monolayer”, Applied Physics Letters **120**, 51108 (2022).

[2] Arqum Hashmi, Shunsuke Yamada, Atsushi Yamada, Kazuhiro Yabana, and Tomohito Otobe, “Valley polarization control in WSe2 monolayer by a single-cycle laser pulse”, Physical Review B **105**, 115403 (2022).

[3] David Freeman, Shunsuke Yamada, Atsushi Yamada, Kazuhiro Yabana, and Anatoli Kheifets, “High order harmonic generation in semiconductors driven at near and mid-IR wavelengths”, submitted to Physical Review B.

(2) 学会発表

[1] Arqum Hashmi, Shunsuke Yamada, Atsushi Yamada, Kazuhiro Yabana, and Tomohito Otobe, “Ultrafast control of the valley and spin polarization in Transition-metal dichalcogenides”, 69th Japan Society of Applied Physics (2022).

(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	○	16,000	0
Oakforest-PACS	○	255,000	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。			