

磁性体薄膜や 2 次元物質における光・物質相互作用の第一原理計算

First-principles calculations for light-matter interaction in magnetic metal thin films and spintronic 2D materials

山田俊介

量子科学技術研究開発機構 関西光量子科学研究所

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、磁性体薄膜や 2 次元物質における光・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。また、これまで開発してきた第一原理計算手法の応用として、半導体薄膜における高次高調波発生に関する光伝搬効果の研究を行った。

2. 研究成果の内容

本研究では、磁性体薄膜や 2 次元物質への応用を目指して、スピン軌道相互作用を考慮したスラブ系のための実時間第一原理計算手法の開発を進めてきた。その応用として、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、振動数 ω と 2ω を持つ 2 つの直線偏光パルスを利用したヴァレー選択的励起の研究を行った[1]。2 つのパルスの強度及び CEP を変えて計算し、励起のヴァレー偏極が最大化する条件を探索した。単色光パルスの場合に比べて約 1.2 倍のヴァレー偏極を達成し、振動数 ω と 2ω のパルスの強度比 36、CEP 差 π の場合にヴァレー偏極が最大化されることを明らかにした。

また、SALMON の応用として、Si 薄膜における高次高調波発生の非線形光伝搬効果に関する第一原理計算を行った[2]。厚さ 5 nm から $3\mu\text{m}$ までの Si 薄膜における光伝搬をマルチスケール Maxwell-TDDFT 法を用いて計算し、反射波及び透過波に含まれる高次高調波の膜厚依存性を解析した。薄膜内部の電場に関するフーリエ解析を実施し、反射波・透過波中の各高調波が薄膜内のどの領域で生成されるかを明らかにした。反射波については薄膜の表側表面付近で全ての高調波が生成されるのに対し、透過波については光振動数 20 eV を境に高調波が異なる領域で生成されることがわかった。すなわち、透過波の高次高調波は、低振動数側では裏側表面付近で透過波中の基本波から生成され、高振動数側で

は表側表面付近で生成された高調波が裏面まで伝搬してきていることを確認した。また、これらの振る舞いは Si の減衰係数の性質によって説明できることを明らかにした。

3. 学際共同利用プログラムが果たした役割と意義

SALMON は A64FX 用にチューニングされているため Wisteria での計算効率が高く、学際共同利用のリソースを活用して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振動数、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] A. Hashmi, S. Yamada, K. Yabana, and T. Otobe, “Enhancement of valley selective excitation by a linearly polarized two-color laser pulse”, submitted to Phys. Rev. B.

[2] S. Yamada, T. Otobe, D. Freeman, A. Kheifets, and K. Yabana, “Propagation effects in high-harmonic generation from dielectric thin films”, Phys. Rev. B, 107, 35132 (2023).

(2) 学会発表

[3] 山田俊介、乙部智仁、「単層 TMD における円偏光動的 Franz-Keldysh 効果によるバレー分極制御の第一原理計算」、日本物理学会秋季大会、東工大、9 月 (2022).

[4] S. Yamada and T. Otobe, “Ab initio TDDFT study of high-harmonic generation from dielectric thin films”, YITP workshop DFT2022, Kyoto University, Dec. (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			
Wisteria/BDEC-01	○	212,500	
※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。			