

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、パルス光が照射した物質中の電子ダイナミクスを量子論に基づき計算することで、光と物質のナノスケールにおける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、特に非線形光応答に対して、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する研究を行った。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 を発展させた。

2. 研究成果の内容

昨年に引き続き、量子流体模型に基づく金属ナノ粒子の光応答に関する研究を進めた。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が、この共鳴振動数の 1/3 程度の外場を加えると、3 次の非線形応答が共鳴的に増大する。この非線形性の物理的な起源、特に量子論に起因する電子染み出しの効果を明らかにするため、量子流体模型において量子効果をもたらすワイゼッカー項の強度を変えて、線形及び非線形光応答の計算を行った。その結果、ワイゼッカー項の係数を 0.5 と取ることにより、基底状態における電子染み出し、線形光応答における表面プラズモンの振動数に加え、共鳴的な非線形光応答の強度まで、ジェリウム模型に基づく量子論である（時間依存）密度汎関数理論の結果をよく再現することが確認された。このことから金属ナノ粒子の光応答において、線形応答に加え 3 次の非線形応答に対しても、量子論に起因する電子染み出しの効果が重要であり、それを適切に記述すれば、量子流体模型を用いて非線形光応答を定量的に記述できることを明らかにした。この結果は、5(1)に示した論文として発表した。

3. 学際共同利用プログラムが果たした役割と意義

本課題で行う電子ダイナミクス計算は、3 次元空間格子における差分法を用いて、極めて大きい空間領域で量子力学に基づき電子軌道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、順調に研究を進めることが可能になった。

4. 今後の展望

本研究により、金属ナノ粒子の非線形光応答において、量子効果に起因する電子染み出しが重要な役割を果たすことが明らかになった。しかし本研究で用いたジェリウム模型は、バルク効果に起因する非線形性を無視しており、表面効果のみが取り入れられている。今後は、バルク効果と表面効果の両方を含む第一原理計算に基づく金属ナノ粒子の光応答計算を行い、金属ナノ粒子の非線形光応答に対する、より定量性のある理解を得たいと考えている。

5. 成果発表

(1) 学術論文

T. Takeuchi, K. Yabana, “Electron spill-out effect on third-order optical nonlinearity of metallic nanostructure”, Phys. Rev. A106, 063517 (2022).

(2) 学会発表

K. Yabana, “Propagation and energy transfer of intense and ultrashort laser pulse in solids: First-principles computational approach”, SPIE Photonics West, LAMON 28, Jan. 28-Feb. 2, 2023, San Francisco, USA.

K. Yabana, “TDDFT for extreme optics: nonlinearity and nonlocality”. 9th Workshop on TDDFT: Prospects and Applications, Benasque, Spain, Oct. 25-27, 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	○	4,455	
Wisteria/BDEC-01	○	233,750	233,750
※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。			