

# 強レーザー場中の誘電体材料の非線形光学と電子ダイナミクス計算 Optical nonlinearity and electron dynamics simulation of dielectric materials in strong laser field

植本光治

神戸大学 大学院工学研究科

## 1. 研究目的

近年のレーザー技術の進歩により、極めて高強度かつ短パルスのレーザーを作り出すことが可能となっている。このような強い光電場が物質と相互作用すると興味深い現象が引き起こされる。本課題では、第一原理計算手法にもとづく大規模計算を駆使し、ナノスケールの物質の光学特性、材料加工プロセス予測、さらに磁性、伝導特性などを予測する。また、協力関係にある国内の実験グループと連携し、実験の解析や理論予測の実験的実証を試みる。本年度は前年度につづき下記の応用研究のテーマについて計算資源を使用した。

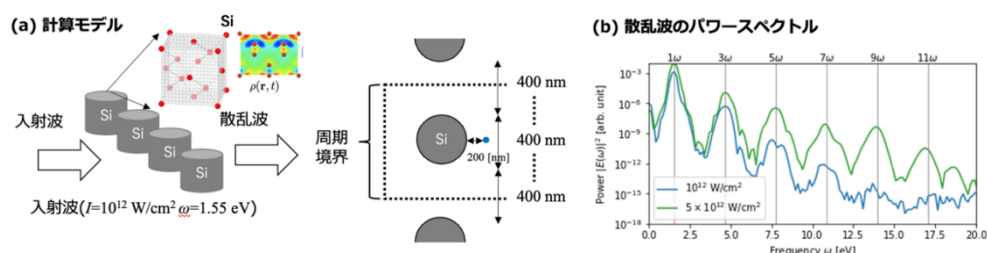
1. 半導体ナノ構造による非線形ナノフォトニクスシミュレーション
2. 金属・二次元物質界面の伝導特性予測
3. フェムト秒レーザーによる材料加工プロセスの解析
4. 強レーザー場によるマグネシウム光励起のシミュレーション

## 2. 研究成果の内容

### 1. 半導体ナノ構造による非線形ナノフォトニクスシミュレーション

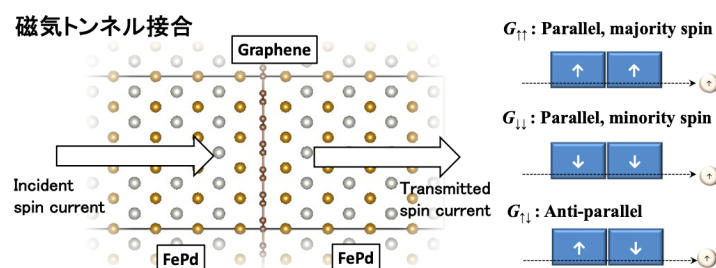
ナノスケールの人工構造（微粒子・メタ表面）の非線形な光学応答に多くの関心が寄せられており、全誘電体のナノ粒子やメタ表面による高次高調波発生が実験的に観測されるようになってきている。本研究では、このようなナノ構造物の非線形光学特性を第一原理計算から定量的に解析するため、時間領域有限差分法(FDTD)による電磁界計算と第一原理電子ダイナミクス計算手法を結合させたマルチスケール手法の開発やさまざまな対象への応用を行っている。本課題では、筑波大計算科学研究センターを中心に開発されているオープンソースの光科学シミュレータ「SALMON」コードの向けのコード実装・機能拡張を行い、シリコン(Si)ナノ粒子アレイや、ナノ周期構造をもつ表面の光励起シミュレーションに適用している。半径200~400ナノメートルのSiナノ粒子では、入射レーザーが粒子内焦点近傍に集光されると同時に、光閉じ込めにより高強度電磁場が発生し、非線形な第3次高調波（さらに第5~9次高調波以上の次高調波）をふくむ分極電流が誘起される様子を確認した。ナノ粒子から数百ナノメートル以内の近傍に形成される近接場の電磁場分布は、(ナノスケールの表面構造をもたない)均一かつ平坦な半導体ナノ薄膜における高調波強度を上回る傾向が確認され、また粒子サイズ縮小により光強度の増大が確認できるほか、古典的

な円柱による散乱解(Mie 散乱理論)から予測される共鳴条件において高調波強度が極大する振る舞いが確認される。



## 2. 金属・二次元物質界面の伝導特性予測

本課題では前年度申請課題に引き続きスピントロニクス用途に向けた二次元物質・強磁性合金界面の第一原理計算にもとづく構造予測・電子伝導特性の解析を試みる。申請者と同学の大学院生らは東北大学の実験グループとの共同研究により、鉄パラジウム合金(FePd)とグラフェンをもちいた磁気トンネル接合素子(MTJ)の理論計算をすすめている。これまで本研究では第一原理計算による FePd/Gr 界面構造および電子状態・磁気状態の解析を行ってきた。今回、我々は FePd と多層グラフェン(m-Gr)による MTJ 構造である「FePd/m-Gr/FePd」(下図)に注目し、スピン伝導特性の第一原理予測を行った。FePd/m-Gr/FePd の磁気抵抗(Magneto-resistance: MR)比は MR~100%~300%に達することが明らかとなった。本成果は 2024 年 1 月に Journal of Applied Physics 誌より出版(論文[1])された。



## 3. フェムト秒レーザーによる材料加工プロセスの解析

ダイヤモンド中の NV 中心などの格子欠陥は、近年、超高感度センサや量子情報処理におけるビットとして注目を集める対象である。最近、実験グループにより超短パルスレーザーにより優先配向した NV 中心の直接書き込み、すなわち照射レーザーの偏光に応じた NV 中心の配向率の偏りのコントロールに成功した。我々は SALMON による第一原理 TDDFT 計算をもちいた理論解析により実験と同等の直線偏光したレーザーパルスにおける多光子励起の理論計算を行い、**実験と第一原理シミュレーションを組み合わせた成果を論文化**[3]し Carbon Trends 誌にて出版(論文[2])されている。(参考:プレスリリース「レーザーでダイヤモンドに優先配向した欠陥を書き込み!」<https://www.kobe-u.ac.jp/ja/news/article/20231225-21749/>)

#### 4. 強レーザー場によるマグネシウム光励起のシミュレーション

現在、マグネシウムは主に熱還元法で製造されているが、これをレーザー光による局所加熱と光脱離反応によって代替できれば、高効率で CO<sub>2</sub> を排出しない還元手法が確立できる。そのため、本プロジェクトでは MgO の光吸収特性を SALMON コードの TDDFT 計算と Force 計算（および Ehrenfest-MD 計算）により計算し、高強度レーザー場下における MgO 分子の結合状態をしらべた。

#### 3. 学際共同利用プログラムが果たした役割と意義

上記、課題中の大規模なナノ構造物における第一原理電子ダイナミクス計算の実施には高並列な計算資源が必要であり、本共同利用プログラムは達成に不可欠であったと考える。

#### 4. 今後の展望

#### 5. 成果発表

##### (1) 学術論文

[1] Hayato Adachi, Ryusuke Endo, Hikari Shinya, Hiroshi Naganuma, Tomoya Ono, Mitsuharu Uemoto "First-principle study of spin transport property in L10-FePd(001)/graphene heterojunction" Journal of Applied Physics **135**, 43902 (2024); <https://doi.org/10.1063/5.0175047>

[2] Kohei Kinouchi, Yasuhiko Shimotsuma, Mitsuharu Uemoto, Masanori Fujiwara, Norikazu Mizuochi, Masahiro Shimizu, Kiyotaka Miura "Laser writing of preferentially orientated nitrogen-vacancy centers in diamond" Carbon Trends **13**, 100318 (2024); <https://doi.org/10.1016/j.cartre.2023.100318>

[3] Mitsuharu Uemoto, Masaki Nishiura, Tomoya Ono "Valley filters using graphene blister defects from first principles" Journal of Physics: Condensed Matter **36**, 95301 (2023); <https://doi.org/10.1088/1361-648x/ad0d26>

##### (2) 学会発表

[1] M. Uemoto, R. Endo, H. Shinya, H. Naganuma, T. Ono "First-principles study on structural and electronic properties of FePd/graphene hetero-interfaces" JAIST International symposium on Nano-Materials for Novel Devices (JAIST-NMND 2023), Kanazawa Chamber of Commerce and Industry Hall (2024)

[2] G. Matsuura, K. Kihara, S. Yamada, M. Uemoto "Simulation of harmonic generation in silicon nanocylinder" JAIST International symposium on Nano-

Materials for Novel Devices (JAIST-NMND 2023), Kanazawa Chamber of Commerce and Industry Hall (2024)

- [3] 木原康輝, 松浦豪介, 山田俊介, 植本光治 "第一原理計算による半導体ナノ構造の非線形光学効果のシミュレーション" 第34回光物性研究会, 大阪大学会館 (2023)
- [4] 遠藤 竜佑, 植本 光治, 新屋 ひかり, 永沼 博, 小野 倫也 "鉄・パラジウム合金の第一原理計算による表面構造予測" 強的秩序とその操作に関わる第17回夏の学校, リファレンスチャンネルシティ博多 (2023)
- [5] 植本 光治, 遠藤 竜介, 新屋 ひかり, 永沼 博, 小野 倫也 " $L1_0$ -FePd(001)/グラフェン磁気トンネル接合の第一原理伝導計算" 強的秩序とその操作に関わる第17回夏の学校, リファレンスチャンネルシティ博多 (2023)
- [6] 柴田 一範, 内田 成明, 植本 光治 "酸化マグネシウムのレーザー還元" 第84回応用物理学会秋季学術講演会, 熊本城ホールほか (2023)
- [7] 遠藤 竜佑, 植本 光治, 新屋 ひかり, 永沼 博, 小野 倫也 "強磁性金属/2次元物質のヘテロ界面の電子・磁気状態の第一原理計算" 第84回応用物理学会秋季学術講演会, 熊本城ホールほか (2023)
- [8] 植本 光治, 遠藤 竜介, 新屋 ひかり, 永沼 博, 小野 倫也 " $FePd$ /グラフェン/ $FePd$  の接合のスピン伝導特性の第一原理計算" 第84回応用物理学会秋季学術講演会, 熊本城ホールほか (2023)
- [9] 松浦 豪介, 木原 康輝, 植本 光治 "シリコンナノ構造による高調波発生シミュレーション" 第84回応用物理学会秋季学術講演会, 熊本城ホールほか (2023)
- [10] Mitsuharu Uemoto, Kazuhiro Yabana "*First-principles electromagnetics simulation for nonlinear nanophotonics: method and applications*" the 9th International Conference on Antennas and Electromagnetic Systems (AES2023), Torremolinos, Spain (2023) 招待講演
- [11] 植本 光治, 木原 康輝, 松浦 豪介, 山田 俊介 "シリコンナノ構造による高調波発生シミュレーション II" 第71回応用物理学会春季学術講演会, 東京都市大学 (2024)
- [12] 植本 光治 "第一原理電子ダイナミクス計算の非線形ナノフォトニクスシミュレーション" レーザー学会学術講演会第44回年次大会, 日本科学未来館 (2024) 招待講演

(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	移行*	追加配分
Cygnus				
Pegasus	○	4,000		
Wisteria/BDEC-01	○	130,000		
※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。 *バジェット移行を行った場合、「+2000」「-1000」のように記入				