

新奇二次元物質・固体薄膜等における 光・物質相互作用の第一原理計算

First-principles calculations for light-matter interaction in novel 2D materials and solid thin films

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加し、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、新奇な 2 次元物質や固体薄膜における光・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、超短パルス光照射下の有限温度半導体薄膜における励起ダイナミクスの研究を行った。

2. 研究成果の内容

本研究では、新奇 2 次元物質や固体薄膜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 単層膜におけるバレー選択励起の超高速制御を実現するために、直線偏光の高強度光による動的 Franz-Keldysh 効果 (DFKE) を利用する方法を提案した [1, 6]。DFKE は、周期的電場によって生成されたフロッケ状態の位相により誘電体の伝導率が動的に変化する現象であり、ペタヘルツ領域光スイッチへの応用が期待されている。本計算では、ポンプ光として直線偏光の単色光を照射し、バンド構造の鏡映対称性を利用して、 \mathbf{K} と \mathbf{K}' の各バレーにおいて位相反転したフロッケ状態を誘起させた。プローブ光として右または左円偏光パルスを用いることで、 \mathbf{K} または \mathbf{K}' バレーにおける DFKE を選択的に観測した。振動数 Ω のポンプ光による伝導率テンソルの変化量は、対称性の要請から対角成分が 2Ω 、非対角成分が Ω の振動を持ち、左右円偏光成分が逆転した位相の Ω 振動を持つことを確認できた。また、当初の期待通り、ポンプ光

とプローブ光の和を励起光とみなした場合に励起電子数のバレー偏極が左右円偏光に関して位相反転した Ω 振動を持つことを確認した。さらに、TDDFT の計算結果を 2 バンドモデルにより再現し、バレー選択的 DFKE の位相反転がバンドの異方性に由来することを示した。本研究により、光の周期に対してサブサイクルでバレー偏極励起を反転させる超高速光スイッチングという方法を新たに提案することができた。

また、SALMON の応用として、超短パルス光照射下の有限温度半導体薄膜における励起ダイナミクスに関する第一原理計算を行った[7]。

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ピーク強度や光振動数、電子温度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] “Subcycle control of valley-selective excitation via dynamical Franz-Keldysh effect in WSe₂ monolayer”, S. Yamada, K. Yabana, and T. Otobe, Phys. Rev. B **108**, 035404, (2023).

[2] “Enhancement of valley selective excitation by a linearly polarized two-color laser pulse”, A. Hashmi, T. Otobe, S. Yamada, and K. Yabana, Phys. Rev. B **107**, 235403, (2023).

(2) 学会発表

[3] “Numerical experiments for exploring propagation effects in high-harmonic generation from dielectric thin films”, S. Yamada, T. Otobe, D. Freeman, A. Kheifets, and K. Yabana, The 2023 CLEO Conference, American Physical Society, 2023-05-10.

[4] “Ab initio calculations for valley-selective dynamical Franz-Keldysh effect in monolayer WSe₂”, S. Yamada, K. Yabana, and T. Otobe, The 2023 CLEO/Europe-EQEC conferences, 2023-06-28.

[5] “Nonlinear Propagation of Extreme Pulsed Light: Ab initio Computational

Study”, A.Yamada, S. Yamada, and K. Yabana, The 2023 CLEO/Europe-EQEC conferences, 2023-06-30.

[6] “WSe₂ 単層膜における動的 Franz-Keldysh 効果を用いたバレー偏極励起のサブフェムト秒制御に関する第一原理計算”, 山田俊介, 矢花一浩, 乙部智仁, 応用物理学会秋季学術講演会, 2023-09-19.

[7] “Si 表面におけるレーザー加工効率の電子温度依存性に関する第一原理計算”, 山田俊介, 乙部智仁, 応用物理学会春季学術講演会, 2024-03-23.

| 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 | ○ | 200,000 | |
| ※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。 | | | |