

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、高強度なパルス光が物質表面に斜めに入射して起こる非線形な光応答を調べ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のためのソフトウェア SALMON を発展させた。

2. 研究成果の内容

物質表面に斜めに入射する光の応答は、光科学における基本的な問題である。線形領域の光応答では、s 偏光と p 偏光による反射率の違い、特にブリュスター角での p 偏光に対する反射の消失が挙げられる。また、p 偏光が金属薄膜に入射する場合に、表面プラズモンポラリトンとの結合により反射率がある特定の入射角で消失する現象も、基礎と応用の両面で興味を持たれている。

上記の線形領域の斜方入射で起こる現象は解析的な取り扱いが可能であるが、高強度なパルス光が入射して起こる非線形光応答は、これまで十分に調べられていない。2次または3次の非線形性であれば、摂動的に取り入れた FDTD 計算などにより調べることも可能であるが、より高次の場合には量子力学と電磁気学を直接連結した理論と計算が必要とされる。

そのような斜方入射する高強度パルス光と物質の相互作用を記述することを目的として、本課題では斜方入射の問題を空間 1 次元 + 時間 1 次元の偏微分方程式を用いて記述する枠組みと計算法の開発を行なった。以前、ベクトルポテンシャルを用いて記述する方法を開発してきたが、界面における電場の不連続性のために精度よく解を得ることが困難であった。本研究では、ベクトルポテンシャルではなく電場と磁場に対する 1 + 1 次元の偏微分方程式を用いることで、その困難が克服されることを見出した。さらに、表面プラズモンポラリトンが現れる場合に金属と真空の界面でエバネッセント波が生じるため、通常差分法を用いた数値解法が不安定となることがわかった。この困難を克服するため、真空領域を、誘電体と金属の混合した仮想的な物質として記述することで、真空とは異なる分散関係を持つものの、安定に光伝搬を求める

ことができることを確認した。

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。本研究で、斜方入射に関する手法が整ったので、今後多くの現象の解明が可能となると期待できる。

4. 今後の展望

斜方入射に対する方法論が整ったので、来年度は特にクレッチマン配位を用いて、表面プラズモンポラリトンの非線形効果を明らかにしたいと考えている。特に、表面プラズモンは通常は金属と真空の界面で生じるが、誘電体と真空の界面の場合にも、高強度なパルス光により誘電体が瞬時に金属化することで表面プラズモンが発生すると考えられるので、その性質を明らかにしたいと考えている。

5. 成果発表

(1) 学術論文

Shunsuke Yamada, Kazuhiro Yabana, and Tomohito Otake, “Subcycle control of valley-selective excitations via the dynamical Franz-Keldysh effect in a WSe₂ monolayer”, *Phys. Rev. B*108, 035404 (2023).

Arqum Hashmi, Shunsuke Yamada, Kazuhiro Yabana, and Tomohito Otake, “Enhancement of valley-selective excitation by a linearly polarized two-color laser pulse”, *Phys. Rev. B*107, 235403 (2023).

(2) 学会発表

(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	○	3,300		
Pegasus				
Wisteria/BDEC-01	○	220,000		
※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				