

ナノ薄膜における非線形励起過程と レーザ加工のための第一原理計算

First-principles calculations for nonlinear excitation and laser ablation of nano-scale 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、これまで開発してきた第一原理計算手法の応用として、フェムト秒超短パルス光を用いた薄膜の非熱的レーザ加工に関する研究を行う。

フェムト秒超短パルス光による非熱的レーザ加工の定量的シミュレーションを実現するためには、レーザ加工初期過程における電子系の非線形光吸収を詳細に解明する必要がある。本研究は、従来行われてきた絶対零度の結晶単位胞における非線形光吸収の実時間第一原理計算を、より現実の加工過程に近い条件に拡張することを目的とする。具体的には、複数パルスにより予熱された状態を想定した有限電子温度のシリコン (Si) 結晶および薄膜表面における非線形光吸収の研究を行った。

2. 研究成果の内容

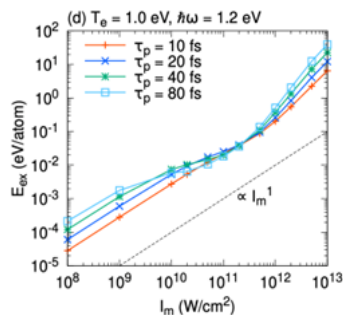


図 1: 電子温度 1 eV の Si バルクにおける励起エネルギーの光強度 (I_m) 依存性。 τ_p はパルス幅。

近赤外フェムト秒パルス光による Si 表面のレーザ加工初期過程について、電子系のエネルギー吸収の電子温度依存性を第一原理計算により解析した [1]。その結果、有限温度の Si バルクでは、ある光強度において吸収エネルギーが飽和すること、すなわち過飽和吸収が起きることがわかった (図 1)。占有率変化の解析から、過飽和吸収は伝導帯および価電子帯内部における一光子吸収がパウリ・ブロッッキングによって飽和することで発生することを確認した。また、より高強度の場合はギャップを超えた多光子吸収により、過飽和吸収は消失することがわかった。この過飽和吸収は、従来のレーザ加工シミュレーション等で用いられてき

た温度モデル等では取り入れることの出来ない量子効果であり、これまでは無視されてきた新現象と考えられる。

また、表面電子状態を考慮するために Si のスラブ系について富岳を用いた大規模計算を行い、過飽和吸収の条件下では表面付近の吸収がバルク領域に比べて増強されることを発見した。これについては、人工的な外場ポテンシャルを用いた計算との比較によって、表面におけるポテンシャル変化によりパウリ・ブロッッキングが抑制され、吸収が飽和しなくなったことが原因であることを確認した。図 2 は光パルス照射下の有限温度 Si スラブ（厚さ 5.43 nm）における各時刻でのエネルギー密度のスナップショットである。黒点線と赤実線は、それぞれ TDDFT と Kohn-Sham ポテンシャルを固定した計算（frozen Hamiltonian 法）による各点での光吸収の累積値であり、青線は電子の励起エネルギー密度である。TDDFT と frozen はほとんど差がなく、TDDFT の平均場ダイナミクスはこの場合重要ではない事がわかる。光吸収密度（赤線）は、スラブの中心では可飽和吸収により強く抑制され、表面付近では相対的に増強している。電子系に吸収された後のエネルギー密度（青線）は、スラブ内部で不均衡を解消するように伝搬していることがわかる。このような電子エネルギー密度のバリステックな伝導の解析はこれまでに計算例がなく、レーザー加工過程における超高速のエネルギー輸送現象の効果を解明するために今後重要となる可能性がある。

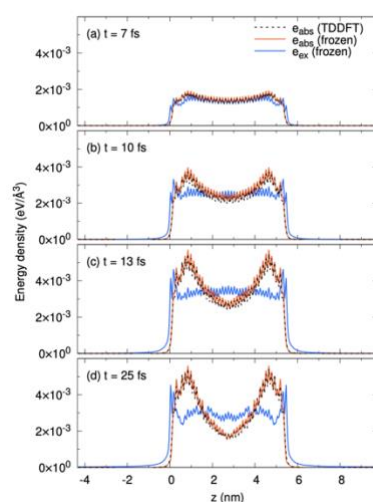


図 2 厚さ 5.43 nm の Si スラブ内部におけるエネルギー密度のスナップショット。

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] S. Yamada and T. Otobe, “saturable absorption in highly excited laser-irradiated silicon and its suppression at the surface”, Phys. Rev. B **111**, 075105 (2025).

(2) 学会発表

[2] S. Yamada and T. Otobe, “Ab initio calculations for electron temperature dependence of laser-processing efficiency on Si surface”, The 25th International Symposium On Laser Precision Microfabrication, San Sebastián, Spain (2024).

[3] 山田俊介、乙部智仁, “レーザー照射下の有限電子温度 Si における過飽和吸収と表面吸収増強の第一原理計算”, 日本物理学会第 79 回年次大会, 札幌 (2024).

(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				
Wisteria/BDEC-01	○	160,000		24,000
※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				