

ナノ物質中の電子・原子スケールダイナミクスの第一原理計算

First-principles calculation of electronic and atomic scale dynamics in nanoscale materials

植本光治

神戸大学 大学院工学研究科

1. 研究目的

過去数十年間の技術革新により、発振可能なレーザーの最大強度は指数関数的なペースで年々向上を続けている。高強度レーザーを固体物質（誘電体）に照射すると、光・物質相互作用には非摂動論的な非線形光学効果の影響が顕著に現れる。本研究課題では、強レーザー場の誘電体の非線形光学現象を電子ダイナミクスから明らかにするため、第一原理の時間依存密度汎関数理論(Time-dependent density functional theory: TDDFT)をもちいた光科学分野向け計算コード SALMON による大規模計算を利用する。具体的には「(1) シリコンナノ周期構造による高調波発生」および「誘電体ミラー材料による光反射率の非線形変化」を取り扱った。

2. 研究成果の内容

(1) シリコンナノ周期構造による高調波発生のシミュレーション

ナノスケールの微粒子やそれらの周期的配列による人工構造の光学デバイスへの応用はナノフォトニクスとして盛んに研究される分野である。本研究課題ではこれまで、SALMON コードに現象論的な半導体ブロッホ方程式をもちいたマルチスケール計算コードの実装を行っており、半導体ナノ構造による非線形なフォトニックデバイスの第一原理シミュレーションを試みている。2024年度までに、数百ナノメートルスケールのシリコンナノ粒子・ナノ円柱周期系の光励起シミュレーションやグレーティング状構造を取り扱っており、各オーダーの高調波発生を効率を最適化するナノ構造の形状のパラメータの探索に成功している。

Si nanograting:

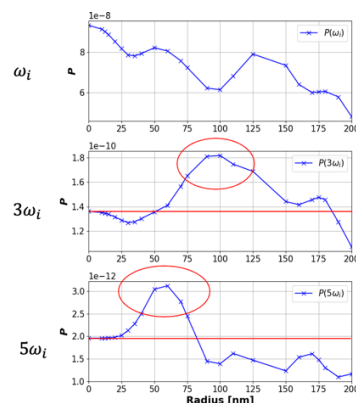
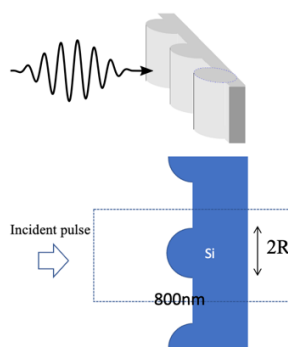


図1 Si ナノグレーティングによる3～5次高調波発生の第一原理予測と形状パラメータ(R)への依存性評価

(2) 誘電体ミラー材料による光反射率の非線形変化のシミュレーション

高強度レーザー光源にはビーム集光やパルス圧縮のための高品位のミラーが不可欠な要素である。誘電体多層膜ミラーはレーザー光学系では一般的なものだが、極端な高強度領域では強電場による多光子吸収などの非線形光学効果、アブレーションによる損傷が問題となる。本研究では、汎用な高反射ミラー材料として SiO_2 や TiO_2 の薄膜（および多層膜構造）などの高強度レーザーに対する反射特性を理解するため、第一原理シミュレーションを駆使した定量的予測を行っている。今年度は、Wisteria-O の計算資源を利用して、 TiO_2 バルク結晶のフェムト秒レーザーパルスによる電子励起シミュレーション、およびナノ薄膜による反射・透過率変化（図 2）のシミュレーションを行い、 10^{12} W/cm^2 以上の高強度領域において非線形効果により光反射率に変化が現れることを定量的に示すことに成功している。

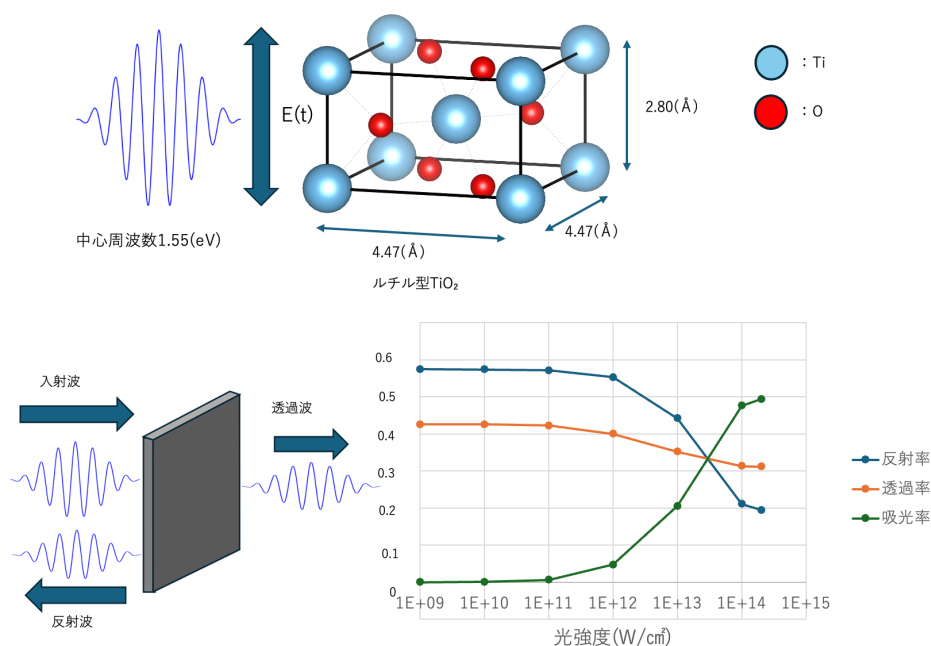


図 2 TiO_2 薄膜によるレーザーパルス反射の第一原理シミュレーション

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

半導体ナノ薄膜表面のグレーティング系の表面プラズモン励起やナノ導波路による非線形エネルギー損失といったターゲットへと適用するほか、多層膜材料などの複数の物質系からなる材料への適用を考える。

5. 成果発表

(1) 学術論文

- ① (査読なし) 松浦豪介, 山田俊介, 乙部智仁, 植本光治 「シリコンナノグレーティング構造における非線形光学応答の第一原理予測」 第 35 回光物性研究会論文集 35 205-208 2024 年 12 月

(2) 学会発表

- ① ○Mitsuharu Uemoto “*First-principles study of nonlinear optical response in nanostructured dielectric materials*” APS Global Physics Summit, Mar 20, 2025
- ② ○植本光治, 松浦豪介, 山田俊介, 乙部智仁 「第一原理電子ダイナミクス計算による強レーザーパルスの半導体ナノ材料の光学応答解析」 レーザー学会学術講演会第 45 回年次大会 2025 年 1 月 21 日
- ③ ○松浦豪介, 山田俊介, 乙部智仁, 植本光治 「シリコンナノグレーティング構造における非線形光学応答の第一原理予測」 第 35 回光物性研究会 2024 年 12 月 14 日
- ④ ○松浦豪介, 山田俊介, 乙部智仁, 植本光治 「第一原理計算によるシリコンナノ構造の非線形光学応答予測」 第 85 回応用物理学会秋季学術講演会 2024 年 9 月 19 日
- ⑤ ○Gosuke Matsuura, Shunsuke Yamada, Mitsuharu Uemoto, “*First-principles prediction of nonlinear optical response in silicon nanostructures*” 14th International Conference on Metamaterials, Photonic Crystals and Plasmonics (META2024) 2024 年 7 月 19 日
- ⑥ ○Gosuke Matsuura, Shunsuke Yamada, Mitsuharu Uemoto 「First-principles calculation of nonlinear optical response in silicon nanostructures」 第 9 回 光・量子ビーム科学合同シンポジウム (OPTO2024) 2024 年 6 月 6 日

(3) その他

- ① 松浦剛介ほか、ベストポスター賞受賞、光・量子ビーム科学合同シンポジウム 2024 (Gosuke Matsuura, Shunsuke Yamada, Mitsuharu Uemoto 「First-principles calculation of nonlinear optical response in silicon nanostructures」 OPTO2024, 2024 年 6 月 6 日)

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	○	2800		
Wisteria/BDEC-01	○	11200		
	※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			