

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、高強度超短パルス光が物質に照射して起こる電子ダイナミクスを量子論に基づき計算し、ナノメートルの空間スケール、アト秒からフェムト秒の時間スケールで起こる光と物質の相互作用を明らかにすることを目的としている。本年度は昨年度に引き続き、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研究、および電子とイオンの散乱により生じる非平衡過程である位相緩和を第一原理計算により記述する研究を行った。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。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、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、昨年度に引き続き行なった。

また、金属にパルス光が入射して起こる緩和過程を第一原理計算に基づき理解することを目的として、熱的な乱雑さをもつイオン配置を仮定したスーパーセルを用いた電子ダイナミクス計算を行った。スーパーセル計算に含まれる緩和効果を理解するため、バンドアンフォルディングと呼ばれる枠組みを密度行列に拡張する試みを定式化し、スーパーセル計算に含まれる熱的揺らぎの効果をプリミティブセルのバンド構造に基づき分析する手法を開発している。これまでに、アルミニウムを例として比較的小さい k 点を持つ計算に対する分析を行うことに成功した。

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。特に斜め入射の場合には巨視的な光伝搬を記述するためマルチスケール計算が必要とされ、位相緩和ではサイズの大きいスーパーセルを用いた電子ダイナミクス計算が必要とされることから、スパコンの利用は必須である。

4. 今後の展望

本研究で斜方入射に関する手法はほぼ完成しており、今後表面プラズモンポラリトンに対する非線形効果の解明などに関する研究を進めたいと考えている。特に、金属に加え、半導体が極めて短時間に金属化することで起こることが期待される非線形プラズモニクスの発現に興味を持たれる。また位相緩和過程に関しては、今後 k 点に関して収束した分析を行い定量性のある結論を得たいと考えている。

5. 成果発表

(1) 学術論文

Atsushi Yamada, Kazuhiro Yabana, “Interaction of intense ultrashort laser pulses with solid targets: A systematic analysis using first-principles calculations”, Physical Review B109, 245130 (2024).

(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	○	140		
Pegasus	○	175		
Wisteria/BDEC-01	○	160000		40000
	※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			