

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。また金属薄膜と超短パルスの相互作用に関し、アト秒実験グループとの共同研究も進めている。これらの研究を通して、我々が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、国際的に高く認知されるコードとして発展させることを目指す。

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。昨年度に引き続き、方法論の開発をすすめるとともに、いくつかの典型的な物質（単純金属であるアルミニウム、半金属であるグラファイト、誘電体であるシリコンおよびクォーツ）を対象として、s、p 偏光の入射パルスに対して、入射角度および強度を変化させたときの反射率、吸収率、透過率の系統的な振る舞いを調べる計算を行なった。

また、電子ダイナミクスの超高速緩和のメカニズムを第一原理計算から探る研究を継続して進めている。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い、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。サイズの大きい k 点を持つ計算が可能となるよう、コードの拡張を行なった。

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。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

実験研究は、多くの場合斜方入射の設定で行われており、本研究により SALMON の有効性が増すと考えられる。また、電子フォノン相互作用に起因する位相緩和の解明は、これまで現象論的な理解にとどまっていた理解を第一原理レベルに引き上げるものであり、基礎と応用の両面で意義のある発展であると考えている。

5. 成果発表

(1) 学術論文

A. Hashmi, M.U. Farooq, M. Tani, K. Yabana, T. Otobe, K.L. Ishikawa,
 “Ultrafast optical control of multivalley states in two-dimensional SnS”, Phys.
 Rev. Materials 9, 104003 (2025).

(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*	一般利用による追加
Pegasus				
Miyabi-G	○	34650		
Miyabi-C	○	7040		
※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				