

# 大規模系電子ダイナミクスのための実時間第一原理計算手法の開発 Development of real-time first-principles computational method for electron dynamics in large-scale systems

山田俊介

量子科学技術研究開発機構

## 1. 研究目的

本研究の目的は大規模系における電子ダイナミクス計算のための第一原理計算手法の開発と応用である。本年度は、特に本課題で開発してきた第一原理計算コード SALMON の二次元ヘテロ構造への応用研究を行った。

異なる機能を持つ複数種の層状物質を重ねた二次元ヘテロ構造は、スピントロニクスおよびバレートロニクスデバイスを実現するための重要なプラットフォームである。近年、グラフェンのスピン輸送特性と TMDC（遷移金属ダイカルコゲナイド）薄膜の円偏光によるスピン・バレー偏極励起の特性を同時に利用するために、グラフェンと TMDC を積層したヘテロ構造が注目されている [Luo *et al.*, *Nano Lett.* **17**, 3877 (2017)]。本研究は、TMDC-グラフェンヘテロ構造に円偏光の光パルス照射した際の電子励起過程を第一原理計算し、TMDC 層からグラフェンへのスピン注入過程における微視的機構を解明することを目的とした。

## 2. 研究成果の内容

本年度は、SALMON を用いた実時間第一原理計算により、TMDC-グラフェンヘテロ構造におけるスピン注入の微視的機構を解明した [1]。この目的のために、 $WSe_2$ -グラフェンヘテロ二層膜に円偏光パルス光を照射した場合にお

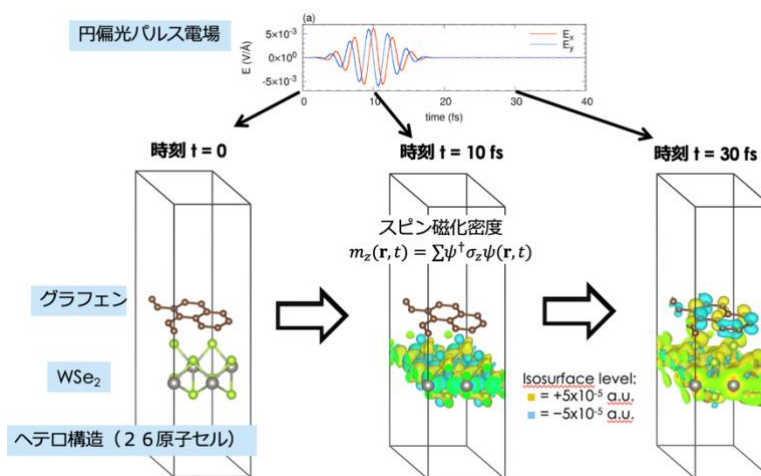


図 1:  $WSe_2$ -グラフェンヘテロ二層膜におけるスピン移動

ける電荷およびスピンの層間移動量に関する光強度依存性を解析した。

その結果、電子はグラフェンから TMDC へ、スピンは TMDC からグラフェンへとそれぞれ逆方向に移動することを発見した (図 1)。また、電子移動量は光強度について飽和する傾向を示した。これらの振る舞いと励起キャリア密度のエネルギー・空

間分布の解析から、  
 スピン移動の原因は  
 界面における励起キ  
 ャリアのフィルタリ  
 ングであることを特  
 定した。すなわち、  
 円偏光パルス光によ  
 り TMDC とグラフ

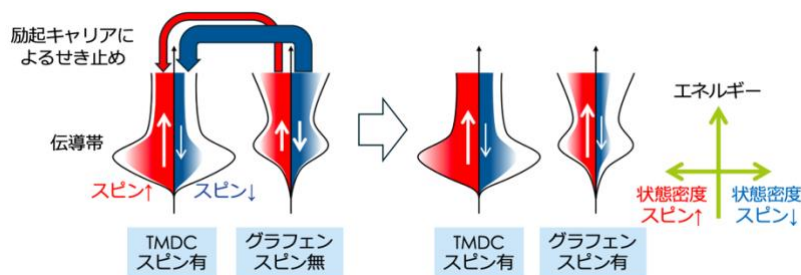


図 2: TMDC-グラフェンヘテロ構造における状態密度の模式図

エンが同時に励起されるが、状態密度は TMDC 側の方が大きいため、グラフェンの励起キャリアは TMDC へ移動しようとする傾向がある。しかし、占有状態によるパウリ遮蔽によって電子移動は抑制される。この際、TMDC でのスピン偏極した励起によって、グラフェンから TMDC への電子移動は片側のスピンチャンネルが強く抑制される。このため、グラフェンに逆側スピンの励起キャリアが多く残存し、結果としてグラフェンでもスピン偏極する。この機構により電子・スピン移動の光強度依存性をすべて説明できることがわかった (図 2)。

この成果により、本研究の目的であった TMDC-グラフェンヘテロ構造におけるスピン注入に関する微視的機構の解明を達成することができた。

### 3. 学際共同利用プログラムが果たした役割と意義

SALMON は MPI と OpenMP による並列化に加えて OpenACC による GPU 化がなされているため Miyabi-C および Miyabi-G 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など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

二次元ヘテロ構造におけるスピン注入の原理を解明できたため、この成果をさらに大規模系へと拡張する。二次元ヘテロ構造における電子ダイナミクスのツイスト角度依存性を解明するためには大規模系の計算手法が必要となる。

大規模系の基底状態計算を高速化するための分割統治法を SALMON に組み込むとともに、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。また、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] Shunsuke Yamada, Arqum Hashmi, and Tomohito Otobe, “Ultrafast spin

injection in graphene via dynamical carrier filtering at transition metal dichalcogenide interfaces”, Phys. Rev. Research **8**, 013300 (2026).

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	○	11200		
Miyabi-G	○	31500		
Miyabi-C	○	6400		
※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				