

# 強レーザー場中の誘電体材料の非線形光学と 電子ダイナミクスの研究

Study of optical nonlinearity and electron dynamics  
of dielectric materials in strong laser field

植本光治  
神戸大学工学部

## 1. 研究目的

高強度レーザー光源の性能向上には、高い耐久性を持つ光学部品の開発が不可欠である。特に、高反射率のミラーは、ビーム集光やパルス圧縮などに用いられ、光吸収率の低い誘電体多層膜（高屈折率・低屈折率誘電体の周期的な積層構造）により高い反射率を実現している。極限的な高強度領域では、構造欠陥による局所的な電場集中や多光子吸収およびアブレーションによる損傷がデバイスの信頼性を著しく低下させる。これらの問題を克服し最適な構造設計を実現するためには、材料内部で起こる非線形光学現象を微視的に理解する必要がある。一般に、高強度レーザーを誘電体などの固体物質に照射すると、光・物質相互作用において非摂動的な非線形光学効果が顕著に現れる。強レーザーパルス下における誘電体の非線形光学現象、およびその背景にある電子ダイナミクスを詳細に解明することが材料設計の理論的基盤となる。そこで本研究では、高屈折率材料として広く利用される酸化チタン ( $\text{TiO}_2$ ) を対象とし、第一原理時間依存密度汎関数理論 (Time-dependent density functional theory: TDDFT) に基づく光科学計算コード「SALMON」を用いた大規模シミュレーションを行う。実際の誘電体多層膜ミラーにはアモルファスが使用されるが、第一原理計算において非周期系モデルの取り扱いが困難であることからルチル、アナターゼ、ブルッカイトといった主要な結晶相における強パルス励起時の非線形効果を詳細に解析することで、高強度レーザー耐性を向上させるための材料科学的な知見を得ることを目的とする。

## 2. 研究成果の内容

本研究では、汎用的な高反射ミラー材料である  $\text{TiO}_2$  薄膜を対象とし、高強度レーザー照射時におけ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用いた定量的な予測を行った。図 1(a)に示す主要な  $\text{TiO}_2$  結晶相を対象として、強電場下におけるバルク材料の誘起分極を算出した。図 1(b)のように、比較的低強度の励起においては、入射電場に対する線形応答（点線）が支配的であった。しかし、電場強度が増加するにつれて非線形成分が顕著に現れ、応答に位相遅れ、強電場による自由キャリア励起に伴う金属的な応答の出現を示唆しており、ミラーの反射率低下を招く要因となりうる。

また、主要な結晶構造における様々な偏光方位および周波数での誘電分極・エネルギー吸収量を算出したところ、図 2(b)の通り 2 光子による非線形吸収が観測された。特に高強度領域では吸収特性の結晶構造依存性が小さくなることから、高強度下のアモルファス材料をモデリングする際、バルク材料の特性を適用できる可能性を示すものである。さらに、TDDFT とマクスウェル方程式を結合させたマルチスケール計算手法により薄膜材料による光反射特性の理論計算を行い、強いパルス強度下における反射効率の低下を定性的に予測可能となった。

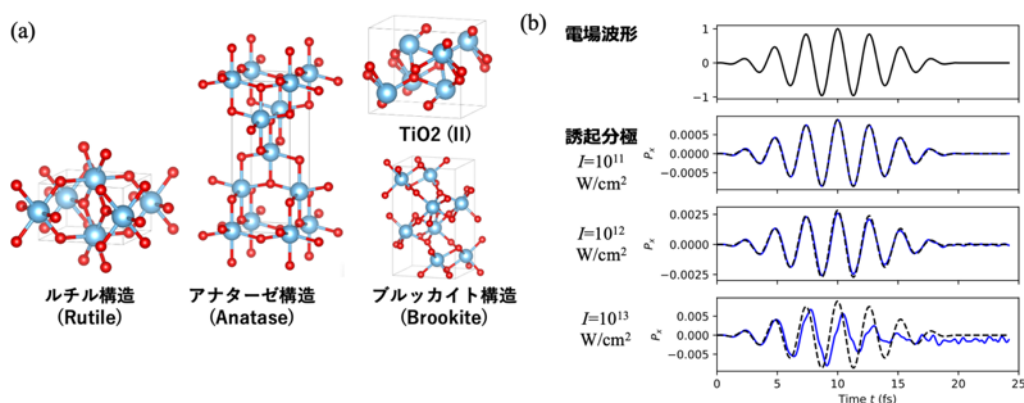


図 1 酸化チタンにおける主要な結晶相、(b) 高強度パルス下における電場波形と誘起分極の例

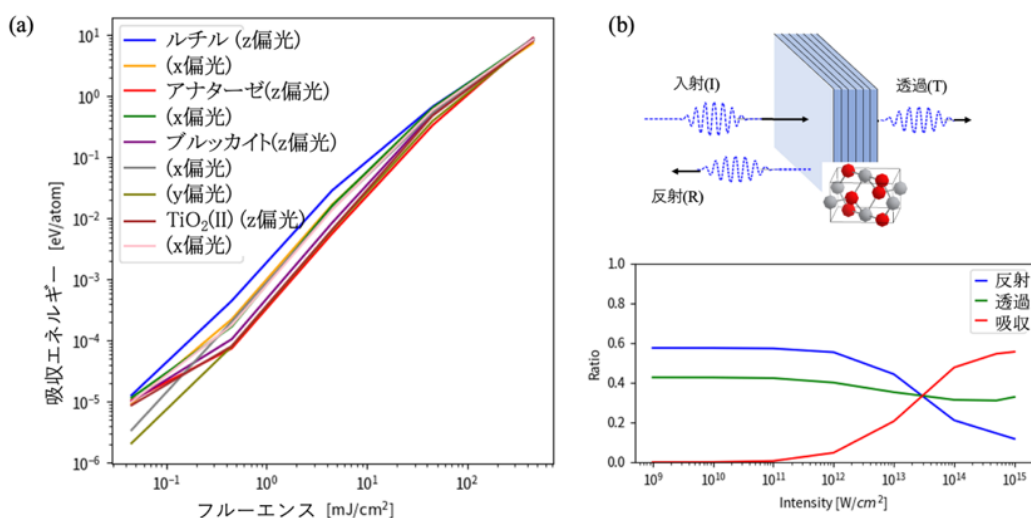


図 2 (a)各結晶構造における光吸収特性、(b) 100nm 薄膜による反射特性

### 3. 学際共同利用プログラムが果たした役割と意義

各固体結晶の広範囲なパラメータを対象とした計算のため Miyabi-G の計算資源は本課題の実施に不可欠であったと考えられる。

### 4. 今後の展望

実際のアモルファス材料へ近づけた計算を行うため、酸素欠陥などの不純物や小規模ながら構造の乱れを含んだスーパーセル取り扱いを検討し、影響評価を行う。

5. 成果発表

(1) 学術論文

(2) 学会発表

- ① 島岡幸生, 近藤裕佑, 柴田一範, 植本光治, 第一原理計算を用いた多層膜ミラー向け材料の光学応答予測, 応用物理学会関西支部 2025 年度第 1 回講演会, 2025 年 6 月 3 日
- ② 植本光治, 島岡幸生, 近藤裕佑, 柴田一範, 高強度レーザー向け誘電体多層膜ミラーの理論設計, 光・量子ビーム科学合同シンポジウム 2025(OPTO2025), 2025 年 6 月 25 日
- ③ 島岡幸生, 近藤裕佑, 柴田一範, 植本光治, 第一原理計算による TiO<sub>2</sub> 誘電体薄膜ミラーの高強度レーザー反射シミュレーション, 第 86 回応用物理学会秋季学術講演会, 2025 年 9 月 8 日
- ④ 島岡幸生, 近藤裕佑, 植本光治, 強電場下における TiO<sub>2</sub> 誘電体薄膜ミラーの反射特性光学シミュレーション, 強的秩序とその操作に関する第 21 回研究会-夏の学校-, 2025 年 9 月 10 日
- ⑤ 島岡幸生, 近藤裕佑, 柴田一範, 植本光治, 第一原理計算を用いた誘電体材料の高強度レーザー光伝搬シミュレーション, 第 36 回光物性研究会, 2025 年 12 月 12 日
- ⑥ 植本光治, 島岡幸生, 近藤裕佑, 柴田一範, 高強度レーザー向け反射材料による光吸収反射特性の第一原理解析, レーザー学会学術講演会 46 回年次大会, 2026 年 1 月 13 日

(3) その他

- ① 2025 年度 大阪大学レーザー科学研究所、共同研究 2025B2-049 「誘電体ミラー向け固体材料の第一原理電子ダイナミクスシミュレーション」への採択

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	○	12,600		
Miyabi-C	○	64,00		
※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				