

新たな光機能や光物性の発現・利活用を基軸とする
次世代フォトニクスの中盤技術
平成 28 年度採択研究代表者

2018 年度 実績報告書

矢花 一浩

筑波大学計算科学研究センター
教授

光・電子融合第一原理計算ソフトウェアの開発と応用

§ 1. 研究成果の概要

本研究課題は、先端の光科学研究に役立つ物質科学の第一原理計算法に基づくソフトウェアの開発を目標としている。数値計算による光と物質の相互作用の研究は、これまで物質の電磁気学に基づく光電磁場の記述と量子力学に基づく電子やイオンのミクロな運動の記述に分かれて発展してきた。しかし今日の先端の光科学では、両者の運動が強く結びつき分離して扱うことのできない現象に多くの興味を持たれている。そこで本研究では、光電磁場の運動を記述するマクスウェル方程式と電子の運動を記述する時間依存コーン・シャム方程式(第一原理計算法の基礎理論である時間依存密度汎関数理論の基礎方程式)、さらにイオンの運動を記述するニュートンの運動方程式を結びつけた新しいシミュレーション法を開発し、アト秒科学や近接場光励起などを含む多様な先端の光科学現象に応用するとともに、ソフトウェアとして整備することを目指している。

本研究で開発するソフトウェアは、SALMON(Scalable Ab-initio Light-Matter simulator for Optics and Nanoscience)と名付け、オープンソースソフトウェアとしてウェブページ <https://salmon-tddft.jp> において公開している。本年度、SALMON の基本事項や使い方をまとめたコード論文を発表した。また、SALMON の背景にある基礎理論や実際の使い方を学ぶことができる国際スクール・チュートリアルや、SALMON が主な対象とする物質中の電子の超高速ダイナミクスに対する計算科学の方法と応用を主題とする国際シンポジウムを開催するなどして、SALMON の国際的な認知を高めユーザを増やすための活動を活発に行った。

先端の光科学研究の様々な局面で SALMON が有用となるよう、新たな理論の構築と開発した計算コードの SALMON への実装を継続的に行っている。今年度の新たな進展として、様々な厚さの薄膜とパルス光の相互作用を記述する理論と計算法の構築がある。従来の物質の電磁気学では、バルク物質の性質を用いて薄膜と光の相互作用を記述していたが、例えばグラフェンのような単一原子が平面状に配列した極めて薄い薄膜の相互作用に対しては、バルク物質の情報を用いて記述することはできない。このため、どのような厚さの薄膜に対しても有効となる新たな手法として、単一の空間格子で光電磁場のマクスウェル方程式と電子運動を記述する時間依存コーン・シャム方程式を同時に解く理論と計算法を開発した。その方法を用いて調べると、厚さが数ナノメートルよりも小さい薄膜では、表面電子状態の影響による2次元的な性質が顕著となることが明らかになった。また数 nm より厚い薄膜においては、光の伝搬を考慮することが重要であることが示された。この方法は光の強度に関する制約がないことから、高強度なパルス光と様々な膜厚の薄膜との相互作用の記述に大変有効であると考えられる。

また本年度、光の電磁場と電子の運動に加え、イオンの運動も同時に取り扱うことのできる新しいシミュレーション法を開発した。これにより、パルス光が結晶の表面に入射して生じる、空間的に位相の揃ったコヒーレントフォノンの生成を、経験的なパラメータを用いることなく記述することが可能になった。さらにポンプ・プローブ分光を丸ごとシミュレーションすることも可能であり、ダイヤモンドに対する計算例では、結晶格子の振動を通じてプローブ光に伴い発生し増幅する瞬間誘導ラマン過程を記述できることが示された。この方法を用いることで、SALMON が結晶の格子振動を介した多様な非線形光学過程の記述に有効となることが期待される。

【代表的な原著論文】

- M. Noda, S.A. Sato, Y. Hirokawa, M. Uemoto, T. Takeuchi, S. Yamada, A. Yamada, Y. Shinohara, M. Yamaguchi, K. Iida, I. Floss, T. Otobe, Kyung-Min Lee, K. Ishimura, T. Boku, George F. Bertsch, K. Nobusada, K. Yabana, “ SALMON: Scalable Ab-initio Light–Matter simulator for Optics and Nanoscience ”, Computer Physics Communications. Volume 235, 356 , 2019
- S. Yamada, M. Noda, K. Nobusada, and K. Yabana, “Time-dependent density functional theory for interaction of ultrashort light pulse with thin materials”, Phys. Rev. B 98, 245147,2018
- T. Otobe, Y. Shinohara, S. A. Sato, K. Yabana, “Theory for Electron Excitation in Dielectrics under an Intense Linear and Circularly Polarized Laser Fields”, J. Phys. Soc. Jpn. 88, 024706, 2019

§ 2. 研究実施体制

(1) 筑波大グループ

- ① 研究代表者: 矢花 一浩 (筑波大学計算科学研究センター 教授)
- ② 研究項目
 - ・第一原理光科学ソフトウェア SALMON の開発
 - ・固体中の超高速電子ダイナミクスを伴う現象の解明
 - ・近接場光励起・プラズモニクス現象の解明

(2) 関西光科学研グループ

- ① 主たる共同研究者: 乙部 智仁
(量子科学技術研究開発機構関西光科学研究所 主幹研究員)
- ② 研究項目
 - ・第一原理光科学ソフトウェア SALMON の開発
 - ・スピンが関与する現象・ピコ秒領域の現象の解明