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基盤技術
2016 年度採択研究代表者

2019 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指している。計算コードは 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。

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、特に光科学とナノ科学の融合で発展するナノ光学を中心に、両者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が持たれている。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。

先端の多様な光科学研究において SALMON が有用となるよう、新たな理論の構築と光科学現象の解明に向けた応用、そして開発した計算コードを SALMON に実装する作業を継続的に行なっている。今年度の新たな進展として、光電磁場と電子に加えイオンの運動も同時に記述する多階層シミュレーションの開発がある。これにより、ラマン過程などフォノンの関わる非線形光学過程を第一原理計算から記述することが可能となった。図1に、分極模型で記述したイオンの運動と電磁場を結合したシミュレーションの例を示す。

また、金属ナノ粒子が平面状に配列したメタ表面の光応答に関する研究を行った。図2に、金属ナノ球をジェリウム模型で記述し、ナノ球の間隔を変化させた場合の光応答の計算結果を示す。ナノ球間の距離が 2Å以下となる領域で、量子論の効果が光応答に大きく影響することがわかる。

本年度は、SALMON のコード整備にも時間を費やし、特に原子数の大きな系で効率的に計算が可能となるよう改善を行った。2021 年度から本格的に稼働が始まる富岳を利用することで、より多様な現象を高い精度で計算が可能となることが期待できる。

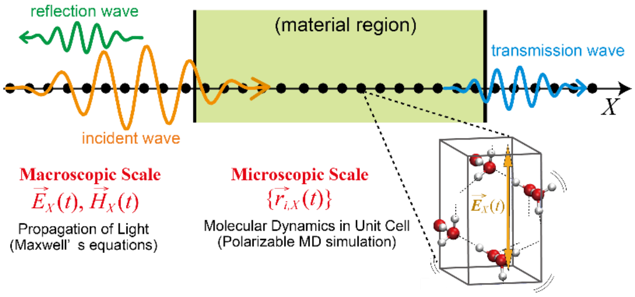

図１：光電磁場と微視的なイオンの運動を同時に記述するマルチスケールシミュレーション。

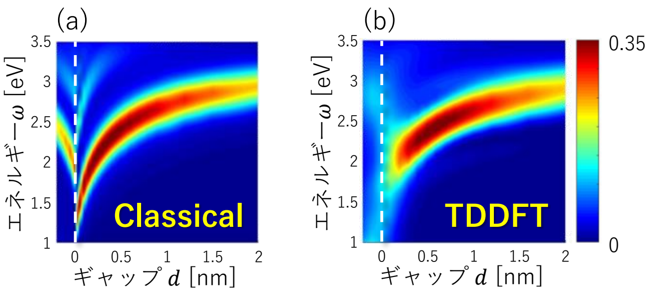

図２：金属ナノ球からなるメタ表面の光吸収率。横軸はナノ球間の距離、縦軸は光子エネルギー。

【代表的な原著論文】

1．Atsushi Yamada and Kazuhiro Yabana, “Multiscale time-dependent density functional theory for a unified description of ultrafast dynamics: Pulsed light, electron, and lattice motions in crystalline solids”, Phys. Rev. **B99**, 245103 (2019).

2．Takashi Takeuchi, Masashi Noda, and Kazuhiro Yabana, “Operation of Quantum Plasmonic Metasurfaces Using Electron Transport through Subnanometer Gaps”, ACS Photonics **6**, 2517 (2019).

3．Tomohito Otobe, “Macroscopic electron-hole distribution in silicon and cubic silicon carbide by the intense femtosecond laser pulse”, J. Appli. Phys. **126**, 203101 (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量子ビーム科学部門　上席研究員)

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