

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

2020年度 年次報告書
-----------------

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、様々な光科学研究に有用な、物質科学の第一原理計算法を用いて光と物質の相互作用を記述するソフトウェア SALMON を開発し、それを先端の光科学現象に応用し原子スケールから解明することを目指している。SALMON は、オープンソースソフトウェアとしてウェブに公開している。これまで主に絶縁体や半導体と高強度パルス光の非線形光応答や超高速ダイナミクスを調べてきたが、本年度は半金属であるグラファイトの薄膜(グラフェンの多層膜)や金属を対象とする研究を進展させた。グラファイトの非線形光応答で支配的となる可飽和吸収を定量的に明らかにするとともに、その効果により物質深部までパルス光が伝搬する様子を明らかにした。金属ナノ粒子を平面状の配列したプラズモニック・メタ表面に対し、非線形光応答を量子論に基づき調べる方法を確立した。ナノ粒子どうしが接触する直前の配置で、量子トンネル効果に伴い3次非線形応答が著しく増大することを明らかにした。また SALMON にスピン軌道力を導入し、非共線性を考慮した電子ダイナミクス計算を可能とした。これを用いて、遷移金属カルコゲナイド2次元物質やトポロジカル物質における非線形光応答への取り組みを開始した。多数の原子を含む大規模計算により、電子・フォノン相互作用を考慮した光応答計算と経験的確率方程式の導入への取り組みを進めている。ピコ秒の時間スケールにおける光応答では、分極模型を用いたマルチスケール計算法を開発し、テラヘルツ波の生成シミュレーションなどが可能となった。計算コードに関しては、富岳において高効率な計算が可能となるよう整備するとともに、GPU を用いた高効率な計算が可能となるよう OpenACC を用いた実装を進めている。ソフトウェアのユーザを増やす取り組みとして定期的にハンズオンチュートリアルを実施し、ウェブの整備や使用法を説明するビデオを作成した。

## § 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
  - ・スピンの関与する現象・ピコ秒領域の現象の解明

### 【代表的な原著論文情報】

- 1) M. Uemoto, S. Kurata, K. Kawaguchi, K. Yabana, “First-principles study of ultrafast and nonlinear optical properties of graphite thin film”, *Physical Review B* 103, 085433 (2021).
- 2) T. Takeuchi, K. Yabana, “Extremely large third-order nonlinear optical effects caused by electron transport in quantum plasmonic metasurfaces with subnanometer gaps”, *Scientific Reports* 10, 21270 (2020).
- 3) A. Yamada, K. Yabana, “Modulation of the probe signal in coherent phonon detection revisited: Analytical and first-principles computational analyses”, *Physical Review B* 101, 214313 (2020).
- 4) A. Yamada, “Multiscale simulation of terahertz radiation process in benzimidazole crystal by impulsive stimulated Raman scattering”, *Journal of Chemical Physics* 153, 244506 (2020).
- 5) M. Kozák, M. Martinek, T. Otake, F. Trojánek, P. Malý, “Observation of ultrafast impact ionization in diamond driven by mid-infrared femtosecond pulses”, *Journal of Applied Physics* 128, 015701 (2020).