

令和 6 年 6 月 5 日現在

機関番号：14501

研究種目：若手研究

研究期間：2020～2023

課題番号：20K15194

研究課題名（和文）半導体メタ表面における光物質相互作用の第一原理予測

研究課題名（英文）First-principles study of light-matter interactions on semiconducting metasurfaces

研究代表者

植本 光治 (Uemoto, Mitsuharu)

神戸大学・工学研究科・助教

研究者番号：90748500

交付決定額（研究期間全体）：（直接経費） 2,600,000円

研究成果の概要（和文）：ナノスケールの薄膜や粒子、さらにこれらが周期配列された構造物の強レーザーパルス下において生じる摂動論的・非摂動論的な非線形光学効果を第一原理的な電子ダイナミクス計算により予測するための手法開発を本研究課題では実施した。時間依存密度汎関数理論による電子ダイナミクス計算と1～3次元の時間領域有限差分法による電磁界解析を結合させたマルチスケール計算手法にもとづくシミュレータ実装し、高速化・大規模化のため半導体ブロッホ方程式を電子系にもちいる手法開発を行った。さらに上記手法の応用として、半導体（シリコン）ナノ構造や2次元物質ナノ薄膜による高調波発生や可飽和吸収などの非線形効果を解析した。

研究成果の学術的意義や社会的意義

ナノフォトニクス分野においてデバイス設計や特性予測に電磁界シミュレーションの存在は必要不可欠である。本研究で発展させた計算手法はナノ物質における従来直接的な取り扱いが困難であった非摂動論的非線形光学効果（高次高調波発生や可飽和吸収など）を考慮した電磁界シミュレーションを可能にする。さらに、開発されたツールをオープンソースの光科学シミュレータの一部として実装しWebで公開することで社会還元も行っている。

研究成果の概要（英文）：In this research, I developed computational methods to predict perturbative and non-perturbative nonlinear optical effects induced by strong laser pulses in nanoscale thin films, nanoparticles, and their periodically arranged structures using first-principles electron dynamics calculations. I implemented a simulator based on a multiscale computational method that combines time-dependent density functional theory (TDDFT) for electron dynamics calculations with one- to three-dimensional time-domain finite-difference electromagnetic field analysis. Additionally, I developed an extension of the multiscale method employing semiconductor Bloch equations (SBEs) for electron systems to improve speed and scalability. Besides, I demonstrated the simulation of nonlinear responses from all-dielectric nanostructure and 2 dimensional materials.

研究分野：フォトニクス

キーワード：ナノフォトニクス 非線形光学 第一原理計算 電子ダイナミクス 半導体ナノ粒子 炭素材料 フェムト秒レーザー

科研費による研究は、研究者の自覚と責任において実施するものです。そのため、研究の実施や研究成果の公表等については、国の要請等に基づくものではなく、その研究成果に関する見解や責任は、研究者個人に帰属します。

## 1. 研究開始当初の背景

近年のレーザー技術発展により極めて高強度かつ短パルスのレーザーを作り出すことが可能となっている。特に、高次高調波発生(High Harmonic Generation: HHG)を利用した数十アト秒オーダーの超短パルス生成技術は、最新の光科学分野において特筆すべき進展を遂げており、「アト秒科学」と呼ばれる超高速光学の新たなトピックとして注目されている。同時に、ナノスケールの微粒子やそれらの周期的配列による人工構造の光学デバイスへの応用もナノフォトニクスとして盛んに研究される分野である。最近では誘電体(半導体)構造の共鳴効果を利用した全誘電体ナノ構造(All-dielectric nanostructure)が関心を集めている。従来の金属材料で問題となっていた抵抗損失を軽減できるほか、ナノ構造により材料の非線形性をバルクより増強し高変換効率を実現する非線形ナノフォトニクスへの応用、さらにはその発展形としてナノ構造と固体 HHG を組み合わせた「アト秒ナノフォトニクス(Attosecond nanophotonics)」の実現の可能性[G. Vampa *et al.* Nat. Photonics, **11** 210-212 (2017)]も期待されている。ナノ構造の光学応答解析には、通常は FDTD 法などの電磁界解析手法が用いられる。一方、強レーザー場下の非摂動論的非線形光学応答は電子系の量子力学的なダイナミクスが色濃く反映されており、このようなマイクロな物理を取り入れることが精密なシミュレーションに必要な不可欠である。申請者はこれまで、筑波大との共同研究により時間依存密度汎関数法(Time-dependent density functional theory: TDDFT)による第一原理電子ダイナミクス計算をもちいた高強度レーザーパルス下の固体の光学応答計算の手法開発を進めており、TDDFT と FDTD を結合させた、巨視的な物質中の光伝搬解析の手法「Maxwell+TDDFT マルチスケール法」の実装を行っている。上記の計算手法は、非摂動論的な非線形効果をもちいるナノフォトニクスにおけるデバイスデザインなど応用が期待されるものである。

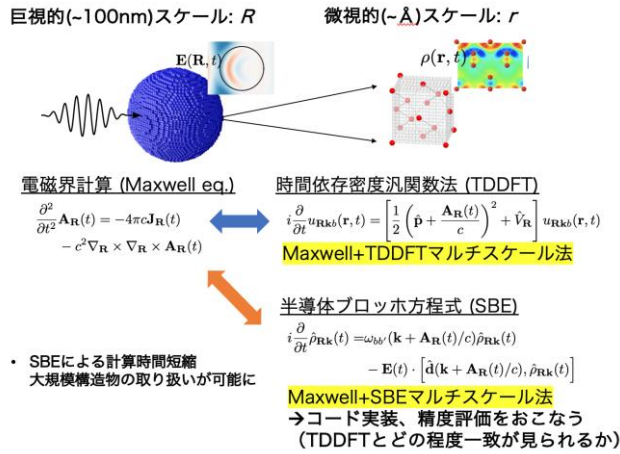
## 2. 研究の目的

本研究課題では、高強度レーザーパルスとナノスケール物質間の光物質相互作用を、第一原理電子ダイナミクス計算と電磁界計算の結合解法によるシミュレーションから解析する手法の開発を目標とする(図 1)。このため、申請者と協力関係にある筑波大学計算科学研究センター・量研(QST)関西光量子科学研究所において開発のすすめられている光科学向け第一原理計算ソフトウェア SALMON(Scalable Ab-initio Light-Matter interaction for Optics and Nanoscience)の「Maxwell+TDDFT マルチスケール計算」コード拡張を行い、ナノ構造の光学応答の解析・予測に適用する。上記のプログラムによる大規模シミュレーションを駆使した解析により、非線形分極、キャリア励起、光近接場増強の存在が、ナノ構造の光学応答にあたる影響を定量的に評価し、これをもとに高次高調波発生など非線形光学効果を高効率で実現するためのナノ構造の設計指導原理を明らかにする。本研究では、具体的なターゲットとして半導体(シリコン)ナノ薄膜、円柱形ナノ粒子周期系、ナノ粒子と薄膜によるグレーティング構造をターゲットとして採用し、さらに、大規模かつ現実的なスケールのナノ粒子や薄膜・表面構造への適用のため半導体ブロッホ方程式(Semiconductor Bloch Equation: SBE)をもちいたマルチスケール計算手法の実装を行う。

## 3. 研究の方法

ナノ構造の光学応答の第一原理的シミュレーションは、前述したマルチスケール計算のフレームワークにより可能である。最近、申請者含む開発グループは計算コードパッケージ SALMON をオープンソースプログラムとして公開(<https://salmon-tddft.jp>)しており、現象論的な半導体ブロッホ方程式(Semiconductor Bloch Equation: SBE)をマルチスケール計算に使用可能なようにコードの拡張を行っている(Maxwell+SBE)。入射光強度が極端に高くない場合は TDDFT と同等の結果をより高速で計算可能になることから[図 2]、従来のマルチスケール計算で困難だった大規模構造物のシミュレーションも可能となる。本研究課題では、対象とする数百 nm~数十  $\mu\text{m}$  スケール三次元ナノ粒子を計算対象とできるように、スーパーコンピュータなど並列環境向けに「Maxwell+TDDFT」、「Maxwell+SBE」のコード整備をすすめた。さらに、誘電体(シリコン)メタ表面におけるナノ構造誘起で HHG 増強が発生するメカニズム予測を行う。典型的な構造を出発点とし、形状の変化に関する共鳴スペクトルの依存性を系統的に調べ上げる。例として、金属ナノ構造においては、粒子サイズ、ギャップ幅(ダイマー粒子間の距離)、エッジ角度(ナノ構造に鋭角が存在する場合)、端面曲率などのパラメータが近接場の光電場増強に影響することが知られている。シリコン等半導体のナノ構造において、特に、非線形分極や、励起キャリアによる金属化が現れる、高強度レーザー場下において同様の振る舞いが出現するか明らかにする。

付け加えて、同手法を半導体薄膜による反射・屈折現象に現れる入射角度依存の非線形光学現象、2次元物質薄膜による非線形な光吸収率変化など、さまざまな対象への応用も試みる。



電磁気学(巨視的)と量子力学(微視的)の結合手法による  
ナノ粒子・メタ表面の非線形光学応答計算

図1 電磁界シミュレーションと電子ダイナミクス計算の結合手法に関する概念図

#### 4. 研究成果

##### 半導体ナノ構造の光学応答計算とシミュレータ開発

SALMON コードの向けに Maxwell+TDDFT マルチスケールシミュレーションの実装・機能拡張を行った。大規模な三次元構造物において TDDFT の適用は現状では計算量的に困難なことから、より高速な「半導体ブロッホ方程式(SBE)」をもちいたマルチスケール法ソルバーを開発し実装を行なった。本コードは SALMON の基底状態計算と連携して動作可能であり、シリコンバルク結晶をもちいたデモンストレーションでは SALMON の TDDFT 計算と概ね同等の光応答が再現できることが明らかになった。

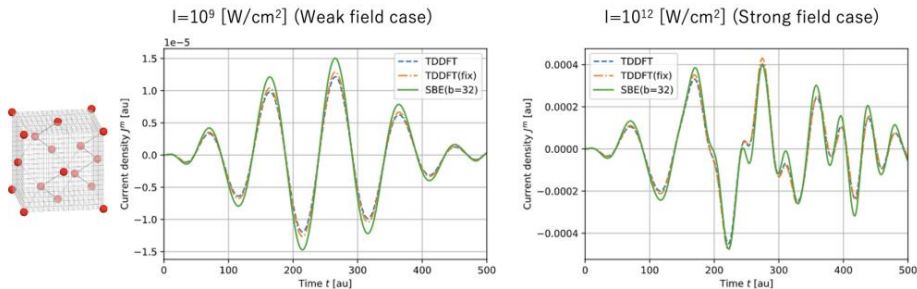
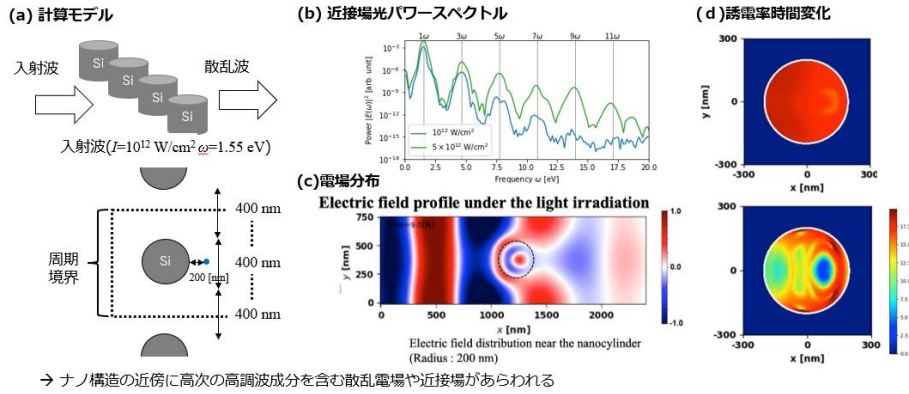


図2 TDDFT と SBE によるバルク半導体(シリコン)結晶の光学応答の計算結果比較  
(左)低強度パルスによる線形応答、(右)高強度パルスによる非線形応答

本課題により開発したプログラムコードは「SALMON v. 2.1.0」世代のコードに実装し、オープンソースで WEB 公開を行っている。上記機能をシリコンナノ円柱の周期構造系[図 3(a)]に対し適用し、(1)光近接場における高調波スペクトルの予測[図 3(b)]、(2)高調波強度のナノ粒子のサイズおよび配列距離依存性(3)高調波発生の粒子内の空間分布を調査した。一例として、半径  $R=200 \sim 400$  ナノメートルのナノ粒子では、入射レーザーが粒子内焦点近傍に集光[図 3(c)]されると同時に、光閉じ込めにより高強度電磁場が発生し、非線形な第 3 次高調波(さらに第 5 ~ 9 次高調波以上の次高調波)をふくむ極電流が誘起される様子がみられた。ナノ粒子から数百ナノメートル以内の近傍に形成される光近接場の電磁場分布は、(ナノスケールの表面構造をもたない)均一かつ平坦な半導体ナノ薄膜における高調波強度を上回る。また粒子サイズ縮小により光閉じ込めが強められた結果として高調波強度の増大が確認できるほか、古典的な円柱による散乱解(Mie 散乱理論)から予測される共鳴条件 ( $R \sim 20\text{nm}$ ) において高調波が極大となる振る舞いが確認される。さらに、強いレーザー場下においては半導体材料中で多光子過程をもちいた自由キャリア励起により導電性が生じ、誘電関数にドルーデモデル的な応答が加わる[図 3(d)]ことで、電磁場の空間分布が古典電磁界シミュレーションによる振る舞いから大きく外れることが確認された。このような非線形ナノフォトニクスデバイスデザインにおける本手法の有効性が確認された。本成果について査読なし論文(プロシーディング)が 2 件[1]-[2]あるほか、2024年5月現在、査読付き雑誌へ投稿準備段階にある。



→ ナノ構造の近傍に高次の高調波成分を含む散乱電場や近接場があらわれる  
 図3 円柱型シリコンナノ粒子の光励起による高調波発生例: (a) 計算モデル (b) 近接場のパワースペクトル (c) 電場分布 (d) 誘電率の時間変化、初期状態(上)と50fs経過後(下)

### 半導体薄膜へ斜方入射した光パルスの非線形伝搬の理論計算モデル

本研究では半導体ナノ薄膜へのレーザーパルス斜め入射時にあらわれる非線形光学効果の計算手法構築を行っている。このような条件の取り扱いにはナノ物質における屈折現象の予測、(実験でもちいられる)ブリュースター入射の再現、Kretschmann配置を利用した表面プラズモンポラリトン励起などの取り扱いに不可欠である。2021年度まで、斜方伝搬するパルスの波動方程式を一次元方程式に変換するフォーマリズムを構築し、シリコンナノ薄膜によるブリュースター反射の非線形効果のデモンストレーション[図4(a)-(e)]を行っており。2022年には同成果に関する論文を Optics Express 誌へ投稿[3]した。

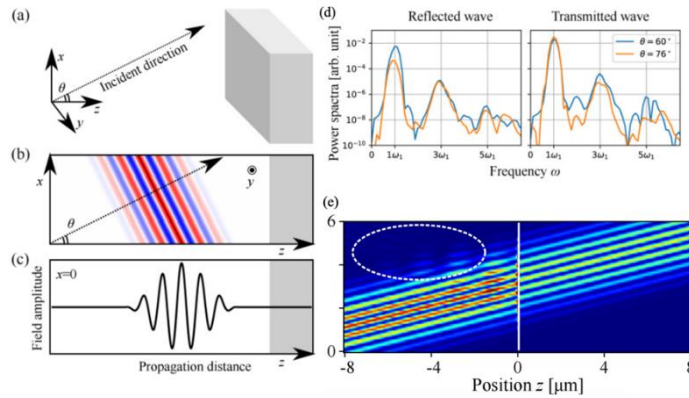


図4 シリコン薄膜における斜め入射したレーザーパルスの振る舞い  
 (a) 計算対象モデルの概念図 (b)-(c) 真空領域における入射電場の分布(カラーマップと断面の振幅)  
 (d) 60°入射時および76°(ブリュースター角)における反射波と透過波のパワースペクトル (e) ブリュースター角入射時の電磁場の空間分布(白丸領域に非線形効果による反射波が現れる)文献[3]より引用

### 二次元物質薄膜による非線形な光吸収効果の第一原理予測

グラファイト[図5(a)]やグラフェンなど炭素の二次元物質は、特異な電子状態により巨大な非線形性が吸収率に現れる(可飽和応答)[図5(b)]。本研究では、炭素のナノ薄膜中の強いレーザー光との相互作用による光伝播への影響を、Maxwell+TDDFT マルチスケール計算法により調査した。特徴的な超高速の可飽和吸収が10フェムト秒以下の時間スケールかつ広い電場強度領域で出現することを確認した。これにより薄膜中で生じる光伝搬は、線形応答モデルの場合に比べ遥かに深く侵入することが明らかになった[図5(c)]。ナノ薄膜における可飽和吸収の第一原理的な理論予測は初の試みである。同成果は2021年に Physical Review B 誌[5]に掲載された。さらに、同手法がほかの二次元物質(遷移金属カルコゲナイド化合物など)にも適用できると考えており、本研究ではTiS<sub>2</sub>の短パルス高強度レーザー場下における電子系ダイナミクスを第一原理計算によりシミュレーションした[図6]。バルク結晶に対する計算では、10<sup>-2</sup>~10<sup>-1</sup> V/Å程度で光吸収による誘起電流に飽和が現れ始めることが明らかとなった。さらに、薄膜近似[S. Yamada *et al.* Phys. Rev. B **98**, 245147 (2018)]にもとづく光透過シミュレーションをおこない、原子数層程度のTiS<sub>2</sub>薄膜による光透過率の強度依存性を調べた。これを現象論的モデルと比較することにより飽和強度を定量的に計算することに成功した。飽和強度(または飽和フルエンス)はパルス長さに強く依存しており、パルス長さが伸びるほど飽和に必要なエネルギー量は減少する。これらの知見は、二次元物質ベースの可飽和吸収体の探索や、二次元物質レーザー加工の理論予測への応用が期待できる。

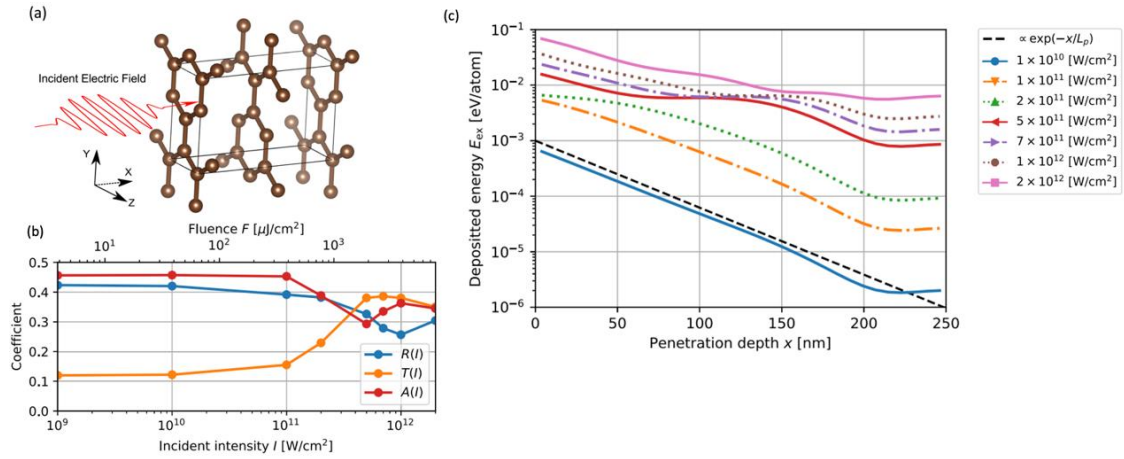


図5 炭素(グラファイト)における非線形な吸収率変化の強度依存性  
 (a) グラファイトのモデル (b) 薄膜(50nm)による反射率R・透過率T・吸収率Aの強度依存性  
 (c) グラファイト膜(250nm)による侵入深さの強度依存性(文献[4]より引用)

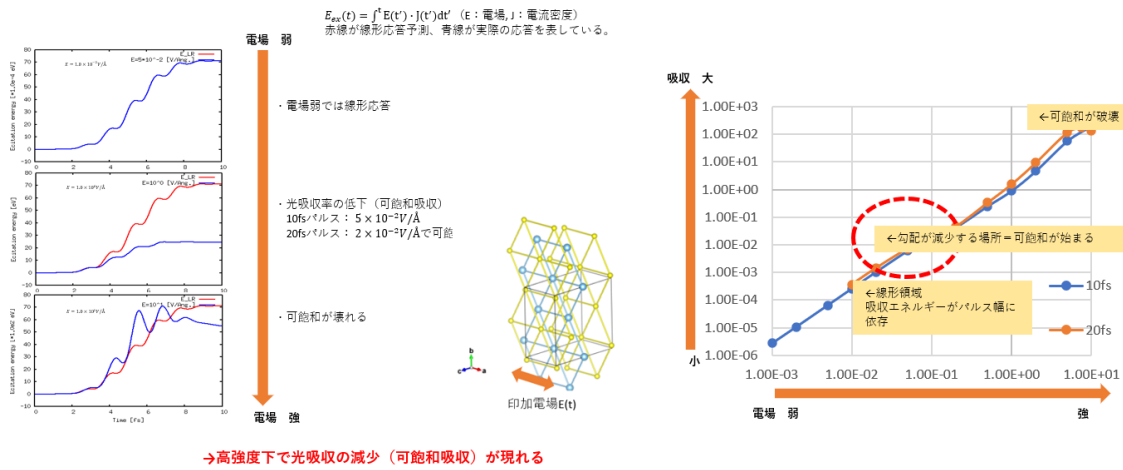


図6 バルク TiS<sub>2</sub>におけるパルス電場印加下のエネルギー吸収量の入射強度依存性

参考文献

[1] 木原康輝, 松浦豪介, 山田俊介, 植本光治「第一原理計算による半導体ナノ構造の非線形光学効果のシミュレーション」第34回光物性研究会論文集 235-238 (2023)

[2] 木原康輝, 植本光治「第一原理計算による III-V 族化合物半導体の非線形光学効果のシミュレーション」第33回光物性研究会論文集 135-138 (2022)

[3] Mitsuharu Uemoto, Kazuhiro Yabana「First-principles method for nonlinear light propagation at oblique incidence」Optics Express **30**, 13 23664-23664 (2022)

[4] Mitsuharu Uemoto, Shintaro Kurata, Norihito Kawaguchi, Kazuhiro Yabana「First-principles study of ultrafast and nonlinear optical properties of graphite thin films」Physical Review B **103**, 8 (2021)

[5] 村上圭伊, 植本光治「遷移金属カルコゲナイド系二次元物質の可飽和吸収特性の第一原理予測」第32回光物性研究会論文集 75-78 (2021)

## 5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計5件（うち査読付論文 2件/うち国際共著 0件/うちオープンアクセス 1件）

1. 著者名 Uemoto Mitsuharu, Yabana Kazuhiro	4. 巻 30
2. 論文標題 First-principles method for nonlinear light propagation at oblique incidence	5. 発行年 2022年
3. 雑誌名 Optics Express	6. 最初と最後の頁 23664 ~ 23664
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1364/OE.460096	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスとしている (また、その予定である)	国際共著 -
1. 著者名 村上圭伊, 植本光治	4. 巻 32
2. 論文標題 遷移金属カルコゲナイド系二次元物質の可飽和吸収特性の第一原理予測	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 第32回光物性研究会論文集	6. 最初と最後の頁 75-78
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) なし	査読の有無 無
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -
1. 著者名 Uemoto Mitsuharu, Kurata Shintaro, Kawaguchi Norihito, Yabana Kazuhiro	4. 巻 103
2. 論文標題 First-principles study of ultrafast and nonlinear optical properties of graphite thin films	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 Physical Review B	6. 最初と最後の頁 85433
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1103/PhysRevB.103.085433	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -
1. 著者名 木原康輝, 植本光治	4. 巻 33
2. 論文標題 第一原理計算によるIII-V族化合物半導体の非線形光学効果のシミュレーション	5. 発行年 2022年
3. 雑誌名 第33回光物性研究会論文集	6. 最初と最後の頁 135-138
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) なし	査読の有無 無
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 木原康輝, 松浦豪介, 山田俊介, 植本光治	4. 巻 34
2. 論文標題 第一原理計算による半導体ナノ構造の非線形光学効果のシミュレーション	5. 発行年 2023年
3. 雑誌名 第34回光物性研究会論文集	6. 最初と最後の頁 235-238
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) なし	査読の有無 無
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

〔学会発表〕 計12件 (うち招待講演 2件 / うち国際学会 2件)

1. 発表者名 植本光治, 木原康輝
2. 発表標題 非線形ナノフォトニクスのための第一原理シミュレーション
3. 学会等名 第70回応用物理学会春季学術講演会
4. 発表年 2023年

1. 発表者名 木原康輝, 植本光治
2. 発表標題 第一原理計算によるIII-V族化合物半導体の非線形光学効果のシミュレーション
3. 学会等名 第33回光物性研究会
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 村上圭伊, 植本光治
2. 発表標題 遷移金属カルコゲナイド系物質の可飽和吸収特性の第一原理予測
3. 学会等名 日本物理学会2021年秋季大会
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 村上圭伊, 植本光治
2. 発表標題 遷移金属カルコゲナイド系二次元物質の可飽和吸収特性の第一原理予測
3. 学会等名 第32回光物性研究会
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 植本光治
2. 発表標題 第一原理電子ダイナミクス計算にもとづく半導体ナノ構造の非線形光学応答の理論予測
3. 学会等名 日本物理学会第77回年次大会
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 植本光治
2. 発表標題 メタ表面にむけたマルチスケール法の応用について
3. 学会等名 オンライン研究会：TDDFTと関連する光科学の話題
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 松浦 豪介, 木原 康輝, 植本 光治
2. 発表標題 シリコンナノ構造による高調波発生シミュレーション
3. 学会等名 第84回応用物理学会秋季学術講演会
4. 発表年 2023年



1. 発表者名 木原康輝, 松浦豪介, 山田俊介, 植本光治
2. 発表標題 第一原理計算による半導体ナノ構造の非線形光学効果のシミュレーション
3. 学会等名 第34回光物性研究会
4. 発表年 2023年

1. 発表者名 植本光治
2. 発表標題 第一原理電子ダイナミクス計算の非線形ナノフォトニクスシミュレーション
3. 学会等名 レーザー学会学術講演会第44回年次大会 (招待講演)
4. 発表年 2024年

1. 発表者名 G. Matsuura, K. Kihara, S. Yamada, M. Uemoto
2. 発表標題 Simulation of harmonic generation in silicon nanocylinder
3. 学会等名 JAIST International symposium on Nano-Materials for Novel Devices (JAIST-NMND 2023 (国際学会))
4. 発表年 2024年

1. 発表者名 植本 光治, 木原 康輝, 松浦 豪介, 山田 俊介
2. 発表標題 シリコンナノ構造による高調波発生シミュレーション II
3. 学会等名 第71回応用物理学会春季学術講演会
4. 発表年 2024年

1. 発表者名 Mitsuharu Uemoto, Kazuhiro Yabana
2. 発表標題 First-principles electromagnetics simulation for nonlinear nanophotonics: method and applications
3. 学会等名 the 9th International Conference on Antennas and Electromagnetic Systems (AES2023) (招待講演) (国際学会)
4. 発表年 2023年

〔図書〕 計0件

〔産業財産権〕

〔その他〕

-

6. 研究組織

氏名 (ローマ字氏名) (研究者番号)	所属研究機関・部局・職 (機関番号)	備考

7. 科研費を使用して開催した国際研究集会

〔国際研究集会〕 計0件

8. 本研究に関連して実施した国際共同研究の実施状況

共同研究相手国	相手方研究機関