

戦略的創造研究推進事業 CREST
研究領域「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」
研究課題「光・電子融合第一原理計算ソフトウェア
の開発と応用」

研究終了報告書

研究期間 2016年 10月～2022年 3月

研究代表者：矢花 一浩
(国立大学法人筑波大学
計算科学研究センター 教授)

§ 1 研究実施の概要

(1) 実施概要

本研究は、光電磁場と物質が強く結合した光・電子融合系に対して、物質科学の第一原理計算に基づき光と物質の相互作用を原子スケールから記述する計算プログラムを開発し、先端の光科学技術の発展に役立ち国際標準と認知されるソフトウェアとして発展させることを目標とした。本課題ではまず、固体と光の相互作用を記述するソフトウェア ARTED を開発していた筑波大グループと、分子やナノ構造体と光の相互作用を記述するソフトウェア GCEED を開発していた分子研グループが協力し、両者を統合したソフトウェア SALMON (Scalable Ab initio Light-Matter simulator for Optics and Nanoscience) の開発を進めた。2017年6月にテストバージョンを、2017年11月に公式バージョンを公開した。このとき公開した SALMON v.1 は、内部で筑波大コードと分子研コードが併存する状態であったが、その後完全に融合した計算コードの開発を進め、2020年7月に SALMON v.2 として公開した。これにより、SALMON を長期的に発展させる礎を築くことができた。公開後、SALMON のダウンロード数は2022年3月時点で8800回を数え、その半数以上は海外からのダウンロードである。ユーザ間の連絡を図るためのメーリングリストの登録者数も約100名に達し、SALMON 開発者以外の海外のユーザの利用による論文も出版されるなど、SALMON は先端のナノ光学や超高速現象の解明に役立つソフトウェアとして、国際的に高く認知されるに至っている。

SALMON を有用なソフトウェアとして発展させるため、今日なお急速な発展を遂げている多様な計算プラットフォームに適応し、高効率な計算を可能とすることが重要である。今日のスーパーコンピュータの特徴として、多数のコアからなるCPU、超並列計算、そしてGPUに代表される加速機構が挙げられる。筑波大学計算科学研究センターの特色である計算科学と計算機科学の連携を活かして SALMON のチューニングを進め、メニーコアCPUを持つ超並列計算機 Oakforest-PACS、そして2021年度より稼働を開始した「富岳」への高度なチューニングを行った。「富岳」では試験運用時に全システムの1/6を用いた計算を実施し、世界で初めて10,000原子を超える物質に対し光・電子・イオンの運動を同時に記述するシミュレーションを実行した。またGPUを搭載する計算機に対しても、OpenACCを用いた対応を進めた。

SALMON は、光電場が誘起する物質中の電子・イオンの運動に対して、第一原理計算法である時間依存密度汎関数理論に基づき、実時間・実空間で記述することが基盤となる。それと同時に光の伝搬の記述が可能であり、これが他のソフトウェアにはない特徴となっている。本課題開始当初は、巨視的電磁気学に基づく1次元の光伝搬と微視的な電子の運動を同時に記述することが可能であった。本課題の期間に、筑波大学と分子科学研究所の研究者が協力して、光電磁場と電子・イオンの運動を同時に微視的に記述する枠組みを開発した。これにより単原子層物質やナノ構造体など、多様な形状とサイズを持つ物質群に対し、非線形・非局所な光応答を記述することが可能となった。それに続きイオンの運動を同時に記述する手法を取り入れ、光伝搬と電子・イオン運動を同時に記述する枠組みが完成した。さらに関西光科学研究所の研究者を中心に SALMON へのスピン・軌道相互作用の実装を進め、スピンや磁化の超高速ダイナミクスをも扱うことが可能となった。これらの枠組みを用いて、薄膜からの高次高調波の発生、アト秒パルスを用いた遷移吸収分光、コヒーレントフォノンの発生と測定過程、遷移金属ダイカルコゲナイド原子層の非線形光応答、非熱レーザー加工の初期過程などに関し、多様な研究が発展した。

また SALMON には、巨視的マクスウェル方程式を時空間で解く従来の電磁場解析法も実装されており、超並列計算機を用いた大規模な計算が可能である。構成関係式としてドルーデ・ローレンツ模型に加え、量子流体模型に基づく記述の実装を行った。これにより、プラズモニック・メタ表面の線形・非線形光応答における非局所応答や量子トンネル現象を明らかにした。さらに電磁場解析の枠組みに電子ダイナミクスの現象論である2温度模型を組み入れて、第一原理計算では記述が困難なピコ秒の時間領域で起こる現象の記述も可能としている。

(2) 顕著な成果

＜優れた基礎研究としての成果＞

1. 物質科学の第一原理計算法に基づき原子スケールから光と物質の相互作用を記述する理論と計算手法の開発

概要：従来の光と物質の相互作用の記述は、与えられた光の電磁場に対する物質の応答を調べるか、または光応答が既知の物質における光の伝搬を記述するかのいずれかであった。本研究は、光電磁場の伝搬と電子とイオンの運動を対等に扱い、それら全てのダイナミクスを同時に記述する理論と計算法を確立した。これにより、高強度超短パルス光と物質の相互作用における著しく非線形な光応答や、ナノ構造体における非局所な光応答に対し、第一原理計算に基づく信頼できる解析が可能になった。

2. 原子層物質に特徴的な非線形光応答の解明

概要：グラフェンや遷移金属ダイカルコゲナイドなどの原子層物質では、その電子構造を反映した特徴のある光応答に高い興味を持たれている。我々はシリコン薄膜、グラフェン多層膜、WSe₂ 単層膜を対象に、第一原理計算の方法を用いて非線形光応答を調べた。シリコン薄膜では高次高調波が 5-15nm の厚さで最も効率的に発生することを示し、グラフェン多層膜では支配的な非線形光応答である可飽和吸収が起こる強度を定量的に示した。WSe₂ 単層膜では、高強度の直線偏光パルスによる非線形励起が非対称なバレーキャリア分布を引き起こすことを明らかにした。

3. 超短パルスレーザーと物質の相互作用における原子運動効果の解明

概要：誘電体結晶におけるコヒーレントフォノンの生成と検出のためのポンプ・プローブ分光に対し精緻な第一原理シミュレーションを行い、プローブのスペクトル分解した信号が瞬間ラマン波の増幅過程により理解できることを示した。また結晶の光応答において、熱運動に伴う乱雑なイオン配置がもたらす位相緩和の効果を定量的に調べる方法を確認し、高次高調波発生における位相緩和効果を明らかにした。

＜科学技術イノベーションに大きく寄与する成果＞

1. オープンソースソフトウェア SALMON の開発と公開

概要：光と物質の相互作用を原子スケールから記述するオープンソースソフトウェア SALMON を開発し公開した。このソフトウェアは、パルス光とナノスケールの物質の相互作用で起こる光の伝搬と電子・イオンの運動を第一原理計算に基づき同時に記述することができる、世界でも例を見ないものである。スーパーコンピュータを用いて先端の光科学の実験を精緻に記述し、そこで起きている現象をナノメートル、アト秒の時空間スケールで解明する有力な手段を提供する。

2. 多様なアーキテクチャを持つスーパーコンピュータに有効なプログラムの開発

概要：オープンソースソフトウェア SALMON は、多様なアーキテクチャを持つスーパーコンピュータを高い効率で利用できるよう最適化が行われており、優れた計算パフォーマンスを示す。スーパーコンピュータを用いることで、様々な先端の光科学実験を精緻に模擬することができる。特に「富岳」を用いると、過去に例のない 10,000 原子を超える物質における光・電子・イオンの第一原理シミュレーションが可能である。

3. 非線形光ナノデバイスの設計に役立つ光量子科学シミュレータの開発

概要：SALMON は、優れた非線形光応答特性を持つナノデバイスの設計に用いることができる。例えば薄膜やナノ構造体において、薄膜の厚さやナノ構造体の形状、パルスの波形や偏光、物質の種類などを変化させた高次高調波発生の計算により、高効率な高次高調波発生デバイスの設計が可能である。金属ナノ粒子が平面状に配置したプラズモニック・メタ表面に関し、ナノ粒子のサイズや粒子間距離などを変化させた計算により、期待される反射・吸収特

性を持つナノ構造体を調べることができる。

< 代表的な論文 >

Masashi Noda, Shunsuke A. Sato, Yuta Hirokawa, Mitsuharu Uemoto, Takashi Takeuchi, Shunsuke Yamada, Atsushi Yamada, Yasushi Shinohara, Maiku Yamaguchi, Kenji Iida, Isabella Floss, Tomohito Otobe, Kyung-Min Lee, Kazuya Ishimura, Taisuke Boku, George F. Bertsch, Katsuyuki Nobusada, Kazuhiro Yabana, “SALMON: Scalable Ab-initio Light-Matter simulator for Optics and Nanoscience”, *Computer Physics Communications* **235**, 356-365 (2019).

概要：物質科学の第一原理計算法に基づき先端の光科学現象を原子スケールから計算することができるオープンソースソフトウェア SALMON のコード論文であり、ソフトウェアの利用方法と典型的な計算例を示している。*Computer Physics Communications* 誌は物理学に関するソフトウェアを発表する標準的な雑誌であり、プログラムも登録されている。本論文は発表後 3 年で 50 回以上 (Web of Science) 引用されており、SALMON が当該分野で高く認知されていることを示している。

2. Shunsuke Yamada, Masashi Noda, Katsuyuki Nobusada, Kazuhiro Yabana, “Time-dependent density functional theory for interaction of ultrashort light pulse with thin materials”, *Physical Review B* **98**, 245147 (2018).

概要：光電磁場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・シャム方程式を、同じ空間解像度で同時に解く新しい理論と計算法を完成させた論文である。これにより、単原子層物質などの原子スケールのナノ構造体や、物質の表面電子状態が関わる、高強度超短パルス光と物質の非線形・非局所な相互作用に対し、第一原理計算による記述が可能となった。

3. Arqum Hashmi, Shunsuke Yamada, Atsushi Yamada, Kazuhiro Yabana, Tomohito Otobe, “Valley polarization control in WSe₂ monolayer by a single-cycle laser pulse”, *Physical Review B* **105**, 115403 (2022)..

概要：SALMON にスピン軌道相互作用を実装し、遷移金属ダイカルコゲナイド(TMDC)物質である WSe₂ の単原子層が示す著しく非線形な光応答を解明した論文である。TMDC はバレー自由度を持ち、これまで円偏光を用いたバレー自由度の操作が可能であることが知られていた。これに対し本論文は、第一原理計算に基づき光電磁場と電子の運動を同時に解くことにより、直線偏光の高強度パルス光に対する非線形光応答を用いてバレー自由度を操作することが可能であることを示した。

§2 研究実施体制

(1) 研究チームの体制について

① 筑波大グループ

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)

研究項目

- ・第一原理光科学ソフトウェア SALMON の開発
- ・SALMON を用いた固体中の超高速電子ダイナミクスを伴う現象の解明
- ・SALMON を用いた近接場光・プラズモニクス現象の解明

② 分子研グループ

主たる共同研究者: 信定 克幸(分子科学研究所 准教授)(平成 30 年 1 月 15 日まで)

飯田 健二(分子科学研究所 助教)(平成 30 年 1 月 16 日から 3 月 31 日まで)

- ・第一原理光科学ソフトウェア SALMON の開発
- ・近接場光による新奇な光励起ダイナミクスの解明

③ 関西光科学研グループ

主たる共同研究者: 乙部 智仁(量子科学技術研究開発機構量子ビーム科学部門 主幹研究員)(平成 30 年 10 月から令和 3 年 3 月 31 日まで)

- ・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

(2) 国内外の研究者や産業界等との連携によるネットワーク形成の状況について

- ・ SALMON の開発者として、現在 CREST に参画しているメンバーに加え、アカデミックな所属では飯田健二准教授(北大触媒研)、篠原康博士(NTT 物性科学基礎研究所)、植本光治助教(神戸大学工学系研究科)がいる。民間企業では、廣川祐太博士(プロメテックソフトウェア(株))、野田正史博士(アカデメイア(株))、岩田潤一博士(Quemix(株))がおり、業務として委託し開発に参画している。海外では、Isabella Floss 博士(ウィーン工科大学)、David Freeman 氏(オーストラリア国立大大学院生)が携わっている。
- ・ Q-LEAP の次世代レーザー課題。矢花、乙部は Flagship プロジェクト「先端レーザーイノベーション拠点」において、それぞれアト秒科学、ものづくり CPS 化に関し分担しており、それらの発展に SALMON を活用している。
- ・ EU の人事交流制度である Horizon2020 Marie Skłodowska-Curie action の枠組みで ATLANTIC プロジェクトに参画している。
- ・ SALMON を利用した共同研究・学術指導を、IHI(株)、住友金属鉱山(株)と実施してきた。