

平成 30 年 5 月 30 日現在

機関番号：32665

研究種目：基盤研究(C) (一般)

研究期間：2015～2017

課題番号：15K05396

研究課題名(和文)人工原子における光閉じ込めと光・電子の協奏ダイナミクス

研究課題名(英文) Confinement of photons and cooperative light-electron dynamics in artificial atoms

研究代表者

佐甲 徳栄 (SAKO, Tokuei)

日本大学・理工学部・准教授

研究者番号：60361565

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 3,800,000円

研究成果の概要(和文)：巨大な振動子強度を持ちそれゆえ光と強く結合することができる人工原子系対象として、次世代光ナノデバイスへの応用を念頭に、光・人工原子結合系の時間発展計算コードの開発およびシミュレーションの実行を行った。電磁場および電子系の時間発展を記述するマクスウェル方程式およびシュレディンガー方程式を、それぞれ時間領域差分法およびシンプレクティック積分法に基づいて積分する安定かつ高精度な計算プログラムを開発し、それを用いて光と相互作用する人工原子の電子ダイナミクスの詳細を明らかにした。

研究成果の概要(英文)：We have developed a computational system for simulating dynamics of light-coupled artificial atoms for future applications to nano-optical devices. Maxwell's equations and the time-dependent Schroedinger equation that are responsible respectively for the propagation of the electromagnetic field and of the electrons have been solved relying on the finite difference time domain method and on the symplectic integrator method, respectively. The developed computational system has been applied to investigate the dynamics of electrons in artificial atoms subjected to incident laser pulses.

研究分野：物理化学・量子物理学・理論化学・ナノ科学

キーワード：人工原子 光物質相互作用 マクスウェル方程式 電子波束 シンプレクティック積分法 過渡電流

## 1. 研究開始当初の背景

近年半導体微細可能技術の進展により、少数の電子をナノスケールのポテンシャル井戸に閉じ込めた量子ドットあるいは「人工原子」と呼ばれる新奇な有限電子系の作成が可能となっている。人工原子は通常のアトム・分子と比較して、非常に大きな振動子強度を持つため、光と強く相互作用することができる。このため、人工原子は次世代の光ナノ量子デバイスの開発において本質的な役割を演じると予想されている。

また一方、理論的側面においては、光と物質との相互作用を記述する従来のモデルでは、シュレディンガー方程式をはじめとする物質の時間発展を記述する方程式に、電磁場との相互作用を表す時間依存ポテンシャルを取り入れた簡便的な扱いが行われてきた。このような従来のモデルにおいては、入射光によって励起された電子系が自身の周囲に作る局所的な電磁場の効果が無視されている。

そこで本研究では、以下に示すように、光と物質の相互作用の新しい理論モデルと計算方法を確立すること、および、非常に大きな電子相関を持つ人工原子の光誘起電子ダイナミクスの詳細を明らかにすることに着目した。

## 2. 研究の目的

本研究では、この人工原子と光との強い相互作用に着目し、(i) 光-人工原子結合系の理論モデルおよび計算プログラムを開発すること、(ii) 光によって誘起される人工原子の特異な時間依存電子ダイナミクスを解明すること、および、(iii) 人工原子に転写された光の情報を電流として外部に取り出す理論モデルおよび数値シミュレーションの実行を行うことを目的として研究を行った。

## 3. 研究の方法

【理論モデル】外部電磁場と相互作用する人工原子の時間依存シュレディンガー方程式は原子単位系の下に次式で表される：

$$i \frac{\partial}{\partial t} \Psi = \left[ \sum_{i=1}^N \frac{1}{2} [\hat{\mathbf{p}}_i + \mathbf{A}(t)]^2 + \sum_{i=1}^N V(\mathbf{r}_i) + \sum_{i>j} \frac{1}{|\mathbf{r}_i - \mathbf{r}_j|} \right] \Psi. \quad (1)$$

$\Psi$  は電子の波動関数、 $V$  は電子の有効閉じ込めポテンシャルであり、 $\mathbf{A}$  は電磁場のベクトルポテンシャルを表す。電子系の時間発展は式(1)で記述され、一方電磁場  $\mathbf{E}$  および  $\mathbf{H}$  の時間発展は、分極電流密度  $\mathbf{J}$  存在下での次のマクスウェル方程式で記述される：

$$\nabla \times \mathbf{E} = -\mu_0 \frac{\partial}{\partial t} \mathbf{H}. \quad (2)$$

$$\nabla \times \mathbf{H} = \varepsilon_0 \frac{\partial}{\partial t} \mathbf{E} + \mathbf{J}. \quad (3)$$

$\mathbf{E}$  と  $\mathbf{H}$  はベクトルポテンシャルと次式によって関係する：

$$\mathbf{E} = -\frac{\partial}{\partial t} \mathbf{A}, \quad (4)$$

$$\mathbf{H} = \frac{1}{\mu_0} \nabla \times \mathbf{A}. \quad (5)$$

シュレディンガー方程式(1)とこれらマクスウェル方程式は、次の電流密度  $\mathbf{J}$  を介して結合する：

$$\mathbf{J} = -\int \Psi^* \frac{1}{i} \left( \sum_{i=1}^N \nabla_i \right) \Psi d\mathbf{r}. \quad (5)$$

すなわち、レーザー電場が人工原子に到来すると、人工原子内部の電子は基底状態と励起状態の重ね合わせ状態となり、電子密度分布の時間変化を引き起こす。この電子密度の時間変化は式(5)により電流密度  $\mathbf{J}$  を生み出し、それはさらに式(3)により電磁場を再定義する。再定義された電磁場は、式(4)を經由して式(1)に戻って再び人工原子に作用し、更なる変化を生み出す。マクスウェル-シュレディンガー方程式の混合数値解析によってこのような電磁場と電子系の協奏的な時間発展を記述することが可能となる。

【計算方法】電子系の時間発展を記述する時間依存シュレディンガー方程式(1)については、波動関数の確率密度の保存性が高く数値的に安定なシンプレクティック積分法に基づく時間積分コードを開発し、時間依存電子波束を求めた。また、式(2)および(3)で表されるマクスウェル方程式については、時間領域差分法(FDTD法)に基づく計算システムを開発し、大規模シミュレーションによって、各時間・空間における電磁場を求めた。

## 4. 研究成果

本研究の主な成果は次の(1)～(3)にまとめられる。

(1) 光-物質強結合系の理論モデル構築および計算方法の確立

電磁波の伝播を記述するマクスウェル方程式と、電子系の時間発展を記述する時間依存シュレディンガー方程式を分極電流密度を介して連立することによって、光と物質との相互作用を記述する従来の理論モデルにおいて無視されてきた「入射光によって励起された電子系が自身の周囲に作る局所的な電磁場(近接場)の効果」を取り入れた計算方法を開発した。また、開放系への応用を行うために、着目する物理系の境界での電磁波の反射を防止する完全整合層(PML)の導入を行った。これによって、PML層に入射した散乱波が完全に吸収されるようになり、開放系でのシミュレーションを行うことが可能となった。これらの開発によって、電子系の励起によって生成する近接場と、その電子系への再作用を自己無撞着な形で取り入れた光と人工原子の協奏的な時間発展を計算する実用的方法を確立した。

(2) 人工原子における光誘起過渡電流

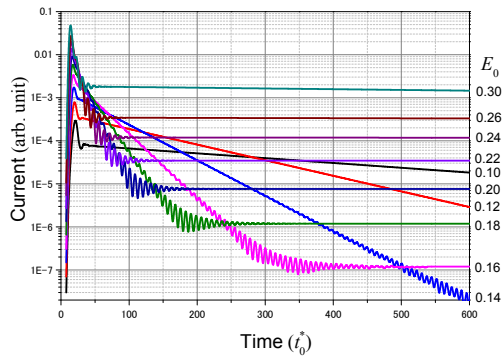


図 1. 過渡電流の時間変化.  $E_0$  はバイアス電圧を表す. 過渡電流は時間発展の途中で特異な振動構造を持ち, その後極小値を経てほぼ一定値に収束する傾向を示す.

超短パルスレーザー光の照射により人工原子に誘起される過渡電流の検討を行った. 本研究で開発した新しい数値計算方法を用いて時間依存シュレディンガー方程式を直接時間積分し, 電子波束の確率密度の変化から過渡電流を求める理論手法を確立した. 電極に接続した人工原子系を考察し, 光励起過渡電流の光パルス幅および周波数依存性を調べた. その結果, 超短時間における過渡電流は, 多くの研究報告で示されている定常状態解析による電流-電圧特性とは異なる振る舞いを示すことが見出された.

その一例として, 図 1 にバイアス電圧印加後の過渡電流の時間変化を示す. 電圧印加直後および十分時間が経過した後は, 過渡電流は印加電圧が大きいほど大きくなり, 通常予想される  $I-V$  特性を持つことが示されている. 一方, その中間の時刻においては, 過渡電流は振動しながらそれぞれの電圧値に応じて異なる時刻に極小値を取り, 十分時間が経過した後一定値に収束する傾向を示している. この振動現象の起源を明らかにするために, 複素座標法を用いて, バイアス電圧を印加した閉じ込めポテンシャルにおける準束縛状態の寿命の解析を行った. その結果, 基底状態は非常に長い寿命を持ち, バイアス電圧の影響を受けないのに対し, 励起状態の寿命は電圧の大きな依存性を持つことが示された. このため, 中間的な時間領域における過渡電流の振動現象は, 速い励起状態からのトンネリングと遅い基底状態からのトンネル電流の寄与が同程度となり, 互いに競合することにより起こる干渉の結果であることが示された.

また図 2 に過渡電流生成量の光パルスの中心周波数およびパルス幅依存性を示す. この図が示すように, 電流は特定の周波数で極大となる明確な共鳴スペクトル構造を示す一方, 光パルスのパルス幅が短くなるに連れて, スペクトルに細かいフリンジ構造が現れることが見出された. 電子波束の時空間発展の詳細を調べた結果, このフリンジ構造は, 人工原子内部での電子波束の振動運動と, 光電場によるポテンシャル障壁の昇降のタイミ

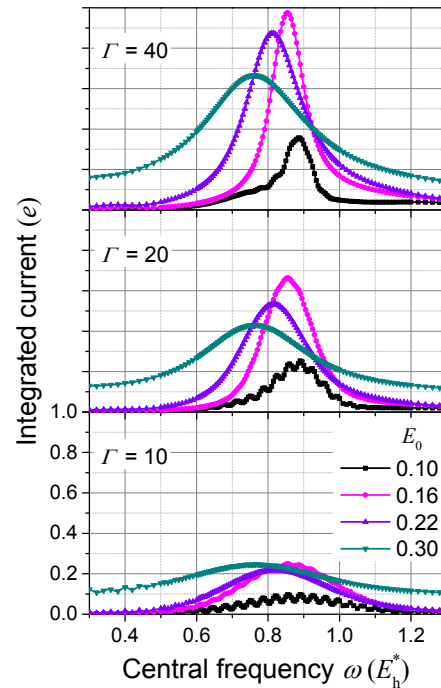


図 2. 過渡電流生成量の入射光パルス中心周波数依存性.  $E_0$  はバイアス電圧,  $\Gamma$  は光パルスのパルス幅を表す. パルス幅の減少に伴い, 周波数スペクトルは特異なフリンジ構造を示すようになる.

ングのずれに起因することが明らかとなった.

### (3) ナノトランジスター構造と結合した人工原子の光誘起ダイナミクス

電子を注入するソース領域および, 電子を取り出すドレイン領域と人工原子系を接続し, ソース-ドレイン間電流を計算することによって, 人工原子の波動関数の情報を外部に抽出するモデル系の構築および計算コードの開発を行った. すなわち, 光との相互作用によって特異な電子状態を形成した人工原子内電子は, ソース領域から流入する電子と相互作用し, その一部は, 人工原子の電子状態の情報を保持した「量子力学的電流」としてドレイン領域に流入し測定される. 開発した計算コードを用いて過渡電流の計算を行ったところ, 電流はソース-ドレイン間電位差よりも, 人工原子のエネルギー準位構造に鋭敏に依存して極大を形成することが示された.

また, 過渡電流は光電場の強度のみならず位相にも強い依存性を示すことから, 本システムを光の位相計測に用いる可能性が見出された. さらにまた, 過渡電流の生成は, ソース領域から流入する電子と人工原子系のスピン状態にも依存することが示された. この結果は, 本理論モデルが光スピンドバイスへの応用を持つ可能性を示唆している.

## 5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 (計 4 件)

- ① T. Sako, H. Ishida, "Field induced transient current in one-dimensional nanostructure", *Physica E* **101**, pp.256-264 (2018).  
(査読あり)  
DOI: 10.1016/j.physe.2018.04.011
- ② S. Tsuru, T. Sako, T. Fujikawa, A. Yagishita, "Theory of time-resolved x-ray photoelectron diffraction from transient conformational molecules", *Phys. Rev. A* **95**, 043404(9 pages) (2017).  
(査読あり)  
DOI: 10.1103/PhysRevA.95.043404
- ③ T. Takeuchi, S. Ohnuki, T. Sako, "A simple formula to predict the influence of the near-field in the optical control of confined electron systems", *J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys.* **50**, 045002(13 pages) (2017).  
(査読あり)  
DOI: 10.1088/1361-6455/aa55f4
- ④ T. Takeuchi, S. Ohnuki, T. Sako, "Maxwell-Schrödinger hybrid simulation for optically controlling quantum states: A two-level system manipulated by a light pulse pair", *URSI-JRSM Special Issue* **356**, pp.13-19 (2015).  
(査読あり)  
URL:  
[http://www.ursi.org/files/RSBissues/RSB\\_356\\_2016\\_03.pdf](http://www.ursi.org/files/RSBissues/RSB_356_2016_03.pdf)

〔学会発表〕 (計 11 件)

- ① T. Sako, "The coupled Maxwell-Schrödinger approach to photonics applications", EMN Meeting on Photonics 2017, (招待講演) (国際学会) 2017 年.
- ② T. Sako, "Radiation reaction in the coupled Maxwell-Schrödinger simulation", EMN Summer Meeting 2017, (招待講演) (国際学会) 2017 年.
- ③ T. Sako, "Near-field effect in optically controlling simple quantum systems", Computational Chemistry Symposium in ICCMSE2017, (招待講演) (国際学会) 2017 年.
- ④ T. Sako, "Near-field effect in nanostructured materials in the coupled Maxwell-Schrödinger approach", EMN EAST Meeting 2017 (招待講演) (国際学会) 2017 年.
- ⑤ T. Sako, "Maxwell-Schrödinger approach to light-nanomatter interaction", 2016 EMN Meeting on Quantum Matter (招待講演) (国際学会) 2016 年.
- ⑥ T. Sako, "Spin- and electron-configuration-dependence of transient electric current in

*nanostructured materials fabricated with multi-terminals*", BIT's 6th Annual World Congress of Nano Science & Technology (招待講演) (国際学会) 2016 年.

- ⑦ T. Sako, "Time dependent transient current dynamics in one-dimensional nanostructures fabricated with multi-terminals", EMN Croatia Meeting 2016 (招待講演) (国際学会) 2016 年.
- ⑧ T. Sako, "Theoretical framework for light-matter interaction in finite quantum systems", Computational Chemistry Symposium in ICCMSE2016 (招待講演) (国際学会) 2016 年.
- ⑨ T. Sako, "Time-dependent electron wave packet dynamics for transient current in nanostructured materials induced by ultrashort laser pulses", BIT's 2nd Annual World Congress of Smart Materials (招待講演) (国際学会) 2016 年.
- ⑩ T. Sako, "Spin dependent electron wave packet dynamics in nanowire induced by ultrashort laser pulses", 2015 EMN Open Access Week Meeting (招待講演) (国際学会) 2015 年.
- ⑪ T. Sako, "Electron correlation and dynamics in laser induced transient current in quasi-one-dimensional nanostructure", EMN Phuket Meeting (招待講演) (国際学会) 2015 年.

〔その他〕

ホームページ等

URL: <http://www.phys.ge.cst.nihon-u.ac.jp/~sako/>

6. 研究組織

(1) 研究代表者

佐甲 徳栄 (SAKO, Tokuei)

日本大学・理工学部・准教授

研究者番号: 6 0 3 6 1 5 6 5