

科学研究費助成事業（科学研究費補助金）研究成果報告書

平成 25 年 5 月 30 日現在

機関番号：14301

研究種目：基盤研究（C）

研究期間：2010～2012

課題番号：22550011

研究課題名（和文） 量子力学的ストレステンソル密度による量子遷移の理論的研究

研究課題名（英文） Theoretical study of quantum transition by stress tensor density

研究代表者

立花 明知（TACHIBANA AKITOMO）

京都大学・大学院工学研究科・教授

研究者番号：40135463

研究成果の概要（和文）：

量子電磁力学に基づく量子遷移過程の計算コードを開発し、キラリティーと誘電率の周波数分散へと応用し新しい知見を得た。前者については、モデル分子を用いて、キララル構造とアキララル構造において円偏光に対する応答の違いをスピントルク密度などの量を用いて示した。電子と原子核を場の理論的に扱い局所誘電率の周波数分散の計算コードを開発し、原子の局所誘電率の周波数分散を示した。開発された計算コードの一部は研究グループのウェブサイトで公開した。

研究成果の概要（英文）：

We have developed a new computational code for quantum transition based on QED (Quantum Electrodynamics). We have applied it for studies of chirality and frequency dispersion of dielectric constant, and obtained new insights. As for the chirality study, using model molecules, we have studied how chiral and achiral structures react on circularly polarized photon, through the quantities like the spin torque density, and have shown the clear difference between them. For the study of dielectric constant, its local frequency dependence of simple atoms is shown. We distribute our program code in our web site.

交付決定額

(金額単位：円)

	直接経費	間接経費	合計
2010年度	1,500,000	450,000	1,950,000
2011年度	1,100,000	330,000	1,430,000
2012年度	1,100,000	330,000	1,430,000
総計	3,700,000	1,110,000	4,810,000

研究分野：化学

科研費の分科・細目：基礎科学・物理化学

キーワード：量子電磁力学・電子ストレステンソル・スピントルク・ツェータ力・キラリティー・誘電率周波数分散・局所誘電率・局所電気伝導率

1. 研究開始当初の背景

QED (Quantum Electrodynamics; 量子電磁力学) 理論に基づいて電子の局所的なストレステンソル密度を定義しそれを用いて化学結合・反応性の本質を明らかにする試みは、研究代表者によって初めて行われ、その有用性・汎用性が実証されてきた。その主たる成果を以下に列挙する：共有結合を表現するス

ピンドル構造の発見、エネルギー密度を用いた力学的な原理に基づく結合次数概念の確立、領域化学ポテンシャルによる化学反応座標の予言。

ストレステンソル密度は、場の理論において運動量密度演算子の運動方程式に現れる量である。研究代表者は同時にスピン角運動量密度演算子の運動方程式において、その時

間変化が2つの力、ストレステンソルが与えるトルク(スピントルク)ともう一つ未知の力(ツェータ力)で駆動されることを示した。さらに興味深い点は、ツェータ力は空間反転に対して特徴的にふるまう(符号を変える)カイラルカレントという量で表されることである。研究代表者の研究グループではこれらの量を計算する相対論的電子状態計算コードを開発し、基礎的な性質を調べてきた。

このような研究成果をふまえて、ストレステンソルの更なる応用の舞台として、またスピントルクやツェータ力の可能性を探る試金石として有用だと思われるのは量子遷移に関する現象である。その理由は以下の通りである：古典力学におけるストレステンソルは電磁気学のマクスウェル理論や重力のアインシュタイン理論に登場し、物質粒子に働く力を生み出している。量子力学におけるストレステンソル密度はシュレーディンガーの波動力学に登場し、物質粒子に働く力密度を生み出している。この量子力学的力密度が荷電粒子に作用し、古典力学的なローレンツ力密度と完全にバランスすれば量子力学的定常状態が生み出される。従って、このバランスの乱れは量子遷移を生み出すからである。

本研究では、研究対象そのものとしても意義深いものとして、キラリ光化学と誘電体薄膜物性を取り上げるがそれぞれ最近の話題を簡単に紹介したい。

キラリ光化学は、広い意味ではキラリティーが関連した光反応を扱うもので、旋光性や円二色性といった古くからある話題も含むが、最近注目されているのは、円偏光によるキラリティーの発現である。これは円偏光した紫外線による医薬品の(絶対)不斉合成や光記録といった工業的な応用の可能性だけではなく、自然科学の大きな謎の一つである自然界のホモキラリティーを説明する手段としても注目され、多くの実験が行われている。誘電体薄膜は相補型金属酸化半導体の重要な部位の一つである。現在最も広く使用されているシリコン酸化膜は近い将来に限界に達すると予見されており、新材料の誘電体薄膜、すなわち、リーク電流を抑制できる誘電体膜が必要である。次世代材料として考えられているハフニウムやランタノイドの酸化膜について当研究室でも研究している。これらの材料では高い誘電率によりリーク電

流が抑制されるだけでなく、広いバンドギャップを持つことでも次世代誘電膜としての期待が大きい。これらの誘電体薄膜ではシリコン基板との界面構造や不純物の制御が課題として知られており、理論・実験の両面から盛んに研究が行われている。

2. 研究の目的

本研究は、研究代表者によって定式化された電子のストレステンソル密度・スピントルク密度・ツェータ力密度を用いて量子遷移に関する現象の理論的研究を推進するものである。量子電磁力学に基づいた量子遷移過程の計算コードを開発し、具体的な応用として、主に次の2つのものを対象とすることを目的とした。キラリティーと、誘電率の周波数分散である。これらを上挙げた量を用いて局所的に解析することにより、キラリティーが発現するメカニズムや、マクロな量として測定されている誘電特性の根源的なメカニズムを明らかにするのが目的である。

3. 研究の方法

昨年度までに研究開発が完了している電磁場・電流存在下での電子状態(励起状態を含む)を QED に立脚して非摂動的に求める相対論的・非相対論的計算コードのプログラムパッケージを量子遷移対応に拡充発展させ、これを用いてキラリ光反応系と誘電体薄膜系におけるストレステンソル・スピントルク・ツェータ力といった局所物理量を計算し、キラリティー発現のメカニズムや誘電率の周波数分散を解析する。電子状態計算アルゴリズムの検討やコードの実装は主に2名の研究分担者がそれぞれ異なる電子場の取り扱い方(4成分版と2成分版)でもって分担して行う。

4. 研究成果

(1) 4成分版

QEDynamics (4成分版) は、Rigged QED 理論に基づいて原子・分子系の時間発展をシミュレートするために Fortran90 で書かれたプログラムであり、電子場を4成分で取り扱う手法に基づいたものである(図1)。このようなコードは今までに例がなく、今後これを基にプログラムを発展させていくことで新しい物理現象を発見していくことを目標としている。

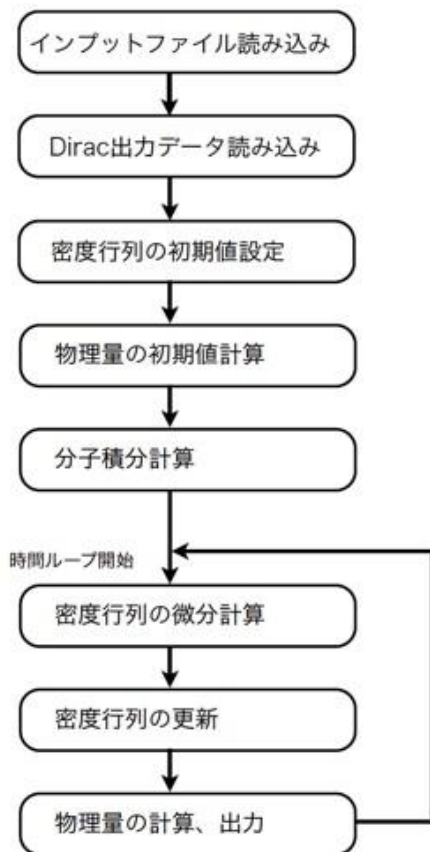


図 1 QEDynamics(4 成分版)の概要。

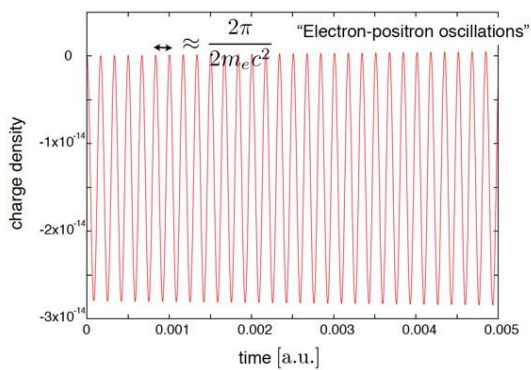


図 2 水素原子の電荷密度の時間変化に見られる「電子陽電子振動」

また、すでに新しい現象を発見しており、それが「電子-陽電子振動」である (図 2)。この振動は、電荷密度が電子質量の二倍に対応する周期で振動する現象で、われわれのシミュレーションで初めて見いだされたものである。これは電子と陽電子の対生成対消滅に起因する電荷密度の揺らぎであり、QED ならではの効果である。今後、このような効果の観測・応用の可能性を含めて研究を進めていきたいと考えている。

(2) 2 成分版

2 成分版のプログラムは、Primary Rigged QED 理論に基づいて、電子・原子核・光子からなる量子系の時間発展を計算するプログラムコードである。電子場をスピンの 2 成分で取り扱い非相対論的な現象を効率的に計算できる。ただし、ラグランジアンを展開項を無限に取り入れることにより極限として電子についてのローレンツ対称性を回復するよう定義されている。

場の理論に基づいた時間発展計算を行うにあたり、時間発展は演算子が担っているため、演算子の時間発展を計算する必要がある。演算子は、Furry 表示で用いられるように、束縛系の量子力学的波束解を空間分布として展開する。演算子の時間発展には初期時刻での演算子の組で展開し、その係数を数値計算で計算とする。このときに相互作用により指数関数的に演算子の展開の次数が上がり数値計算の大きな障害となるので、交換相互作用などの量子的効果を十分に取り入れられる範囲で次数の展開を止め、それ以上の高次の効果は期待値で置き換えることにより計算する近似を採用する。

このような手法を採用して数値計算コードを開発しているが、2 成分計算コードが目的とする第一の解析対象は局所的な誘電応答の周波数分散である。原子核の量子的時間発展を電子同様に場の理論的に取り扱えるようにすることは、原子核の誘電応答が電子よりも重要である高誘電率材料の解析において非常に重要である。そのため原子核を取り入れた Rigged QED を指導原理として採用している。本研究では、水素・ヘリウム原子内での誘電応答の局所的周波数分散の初期的結果を示した。軌道間のエネルギー差に由来する周波数や外部電磁場に由来する周波数への応答が正しく表現できていることを確認した。

また、Coupled perturbed Hartree-Fock 法に基づいて計算した波束を用いて、分子デバイスやナノワイヤー内部の局所的な電気伝導特性を取り扱う計算プログラムツールの開発を行った。電流を与える電子を量子状態として表現する計算コードの開発を行い、系の内部における局所電気伝導率についての研究を行った。

5. 主な発表論文等

(研究代表者、研究分担者及び連携研究者には下線)

[雑誌論文] (計 22 件)

- (1) Yuji Ikeda, Masato Senami, and Akitomo Tachibana, "A Non-Hermitian Coupled Perturbed Hartree-Fock Method for

- Complex Potentials and Calculations of Electronic Structures with Electric Currents”, Transactions of the Materials Research Society of Japan, 査読有, 掲載決定
- (2) Masato Senami, Toshihide Miyazato, Soujiro Takada, Yuji Ikeda, Akitomo Tachibana, “Time Evolution of Heisenberg Operators of Nuclei and Electrons of QED System Based on Field Theory”, Journal of Physics: Conference Series, 査読有, 掲載決定
 - (3) Yuji Ikeda, Masato Senami, and Akitomo Tachibana, “Coupled perturbed Hartree-Fock method for non-Hermitian Hamiltonians”, Journal of Physics: Conference Series, 掲載決定
 - (4) Kazuhide Ichikawa, Masahiro Fukuda and Akitomo Tachibana, “Study of Simulation Method of Time Evolution in Rigged QED”, International Journal of Quantum Chemistry, 113, 190-202 (2013), 査読有, DOI: 10.1002/qua.24087
 - (5) Akitomo Tachibana, “General relativistic symmetry of electron spin torque”, Journal of Mathematical Chemistry, 50, 669-688, (2012), 査読有, DOI: 10.1007/s10910-011-9943-z
 - (6) Kazuhide Ichikawa, Yuji Ikeda, Ryo Terashima and Akitomo Tachibana, “Aluminum Hydride Clusters as Hydrogen Storage Materials and their Electronic Stress Tensor Analysis”, Proceedings for THERMEC’ 2011 Materials Science Forum Vols. 706-709 (2012) 1539-1544, 査読有, doi:10.4028/www.scientific.net/MSF.706-709.1539
 - (7) Masato Senami, Yasushi Tsuchida, Akinori Fukushima, Yuji Ikeda, Akitomo Tachibana, “Local Dielectric Property of Cubic, Tetragonal, and Monoclinic Hafnium Oxides”, Japanese Journal of Applied Physics 51, 031101(11), (2012), 査読有, DOI:10.1143/JJAP.51.031101
 - (8) Takaaki Hara, Masato Senami, Akitomo Tachibana, “Electron spin torque in atoms”, Physics Letters A, 376, 1434-1441, (2012), 査読有, DOI:10.1016/j.physleta.2012.03.028
 - (9) Yuji Ikeda, Masato Senami, and Akitomo Tachibana, “Local electric conductive property of Si nanowire models”, AIP Advances 2, 042168 (16), (2012), 査読有, doi: 10.1063/1.4769887
 - (10) Kazuhide Ichikawa, Hiroo Nozaki, Naoya Komazawa and Akitomo Tachibana, “Theoretical Study of Lithium Clusters by Electronic Stress Tensor”, AIP Advances 2, 042195 (16), (2012), 査読有, DOI: 10.1063/1.4774037
 - (11) Kazuhide Ichikawa, Ayumu Wagatsuma, Pawel Szarek, Chenggang Zhou, Hansong Cheng, Akitomo Tachibana, “Electronic stress tensor analysis of hydrogenated palladium clusters”, Theoretical Chemistry Accounts, 130:531-542 (2011), 査読有, DOI: 10.1007/s00214-011-1044-3
 - (12) Masato Senami, Yuji Ikeda, Akinori Fukushima, Akitomo Tachibana, “Theoretical study of adsorption of lithium atom on carbon nanotube”, AIP Advances, 1, 042106(12), (2011), 査読有, doi:10.1063/1.3651182
 - (13) Yuji Ikeda, Norifumi Ohmori, Noriaki Maida, Masato Senami, Akitomo Tachibana, “Theoretical study of gallium nitride crystal growth reaction mechanism”, Japanese Journal of Applied Physics, 50, 125601(7), (2011), 査読有, DOI:10.1143/JJAP.50.125601
 - (14) Kazuhide Ichikawa, Ayumu Wagatsuma, Yusaku I. Kurokawa, Shigeyoshi Sakaki, Akitomo Tachibana, “Inverted-sandwich-type and open-lantern-type dinuclear transition metal complexes: theoretical study of chemical bonds by electronic stress tensor”, Theoretical Chemistry Accounts, 130:237-250 (2011), 査読有, DOI: 10.1007/s00214-011-0966-0
 - (15) Akinori Fukushima, Akira Sawairi, Kentaro Doi, Masato Senami, Liang Chen, Hansong Cheng, and Akitomo Tachibana, “Role of an Aluminum atom on Graphene for Hydrogen Adsorption”, Journal of Physical Society of Japan, 80, 074705 (9), (2011), 査読有, DOI:10.1143/JPSJ.80.074705
 - (16) Masato Senami, Yuji Ikeda, Takaaki Hara, Akitomo Tachibana, “Nanosize Electronics Material Analysis by Local Quantities Based on the Rigged QED”, Key Engineering Materials, Vol. 470, pp. 66-71, (2011), 査読有, doi:10.4028/www.scientific.net/KEM.470.66
 - (17) Kazuhide Ichikawa, Yuji Ikeda, Ayumu Wagatsuma, Kouhei Watanabe, Pawel Szarek and Akitomo Tachibana “Theoretical study of hydrogenated tetrahedral aluminum clusters” International Journal of Quantum Chemistry, 1

- 11, 3548-3555 (2011), 査読有, DOI: 10.1002/qua.22848
- (18) D. J. Henry, P. Szarek, K. Hirai, K. Ichikawa, A. Tachibana and I. Yarovskiy, “Reactivity and Regioselectivity of Aluminum Nanoclusters: Insights from Regional Density Functional Theory”, *Journal of Physical Chemistry C*, 115(5), 1714-1723 (2011), 査読有, DOI: 10.1021/jp109804y
- (19) Masato Senami, Yuji Ikeda, and Akitomo Tachibana, “Local Transport Property of GaN Cluster as a Model of Nanowire”, *Japanese Journal of Applied Physics*, 50, 010103(7), (2011), 査読有, DOI: 10.1143/JJAP.50.010103
- (20) Masato Senami and Akitomo Tachibana, “Quantum chemical approaches to the electronic structures of nano-electronics materials”, 2010 10th IEEE International Conference on Solid-State and Integrated Circuit Technology Proceedings, pp. 1765 - 1768, 査読無, DOI:10.1109/ICSICT.2010.5667357
- (21) Akinori Fukushima, Shinya Sugino, Yasushi Tsuchida, Masato Senami, Akitomo Tachibana, “Local Dielectric Property of Hafnium and Lanthanum Atoms in HfLaO_x”, *Japanese Journal of Applied Physics* 49, 121504(11), (2010), 査読有, DOI:10.1143/JJAP.49.121504
- (22) Masato Senami, Yuji Ikeda, Akinori Fukushima, and Akitomo Tachibana, “Calculation of the electronic state in electronic current for nanowire models”, *Japanese Journal of Applied Physics*, 49, 115002(5), (2010), 査読有, DOI:10.1143/JJAP.49.115002

[学会発表] (計 82 件)

- (1) A. Tachibana, “Chirality and stress tensor of electron”, *Modeling and Design of Molecular Materials 2012 (M DMM2012)*, 2012/9/12, Wrocław, Poland (Plenary lecture, Invited, Oral)
- (2) Kazuhide Ichikawa, Y. Ikeda, R. Terashima, Akitomo Tachibana, “Aluminum Hydride Clusters as Hydrogen Storage Materials and their Electronic Stress Tensor Analysis”, *THERMEC' 2011*, 2011/8/2, Quebec City Convention Center, Canada (Invited, Oral)
- (3) 市川和秀, 立花明知, 新谷俊通, 「Quantum chemical calculation for CVD pro-

- cess of GeSbTe], *PCOS(相変化記録研究会)2010*, 2010/11/25, 熱海ニューフジヤホテル, (口頭、招待講演)
- (4) M. Senami, A. Tachibana, “Quantum chemical approaches to the electronic structures of nano-electronics materials”, *International Conference on Solid-State and Integrated Circuit Technology*, 2010/11/3, InterContinental Hotel, China, (Invited, Oral)
- (5) 立花明知, 「CVD プロセスの分子論的解明に向けて量子化学の果たす役割」, *化学工学会第42回秋季大会*, 2010/9/8, 同志社大学 (口頭、展望講演)
- (6) A. Tachibana, “Energy density concept: a stress tensor approach”, *Modeling and Design of Molecular Materials 2010*, 2010/7/5, Wrocław, Poland (Plenary lecture, Invited, Oral)
- (7) M. Senami and A. Tachibana, “Quantum chemical approaches to the electronic structures of nano electronics materials”, 2010/5/20, *The International Symposium on Advanced Nanomaterials and Nanosystems 2010*, Clock Tower, Kyoto University (Invited, Oral)

[図書] (計 1 件)

- (1) Akitomo Tachibana, “Electronic Stresses with Spin Vorticity”, *Concepts and Methods in Modern Theoretical Chemistry: Electronic Structure and Reactivity (Atoms, Molecules, and Clusters)*; Eds. by S. K. Ghosh, P. K. Chattaraj; CRC Press, 2013; pp.235-251

[その他]

ホームページ等

QEDynamics

<http://www.tachibana.kues.kyoto-u.ac.jp/qed/index.html>

6. 研究組織

(1) 研究代表者

立花 明知 (TACHIBANA AKITOMO)
京都大学・大学院工学研究科・教授
研究者番号: 40135463

(2) 研究分担者

瀬波 大士 (SENAMI MASATO)
京都大学・大学院工学研究科・助教
研究者番号: 40431770
市川 和秀 (ICHIKAWA KAZUHIDE)
京都大学・大学院工学研究科・助教
研究者番号: 50401287

(3) 連携研究者

なし