

科学研究費助成事業 研究成果報告書

平成 26 年 6 月 6 日現在

機関番号：32665

研究種目：基盤研究(C)

研究期間：2011～2013

課題番号：23550025

研究課題名(和文)人工原子における多体波動関数と電子集団の動力学

研究課題名(英文) Many-body wave function and collective dynamics of electrons 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) 4,000,000円、(間接経費) 1,200,000円

研究成果の概要(和文)：少数の電子をナノスケールの人工的な低次元ポテンシャル井戸に閉じ込めた人工原子は、量子力学原理に基づいて動作する次世代ナノデバイスの基本素子としての大きな役割が期待されており、その量子構造の解明は最も本質的な研究テーマである。本研究では、人工原子および自然原子における電子スピン配列を決定する「フントの規則」および電子の集団運動を規定する「角度相関」に着目し、その起源の解明に取り組んだ。そして、スピンの反平行な一重項状態の波動関数において共役フェルミ孔と呼ばれる空孔が存在することを見出し、この共役フェルミ孔の存在によってフント則の起源および角度相関の由来が説明できることを明らかにした。

研究成果の概要(英文)：Artificial atoms or quantum dots, novel quantum systems confining a small number of electrons in a low-dimensional artificially-designed nanoscale potential well, play an essential role in the development of next generation devices operating under the principle of quantum mechanics, utilized in, such as, quantum computation and quantum telecommunication. Since the electronic properties of artificial atoms are known to depend strongly on their size and/or number of electrons, understanding their complicated electronic structure is one of the most fundamental and essential issues. In this direction the present study has focused on the origin of so-called Hund's rule and on the appearance of angular correlation in artificial atoms. An inherent hole in the spin-parallel singlet wave function has been identified and is called conjugate Fermi hole. It has been shown that the origin of Hund's rule and angular correlation can be rationalized on the basis of this conjugate-Fermi-hole concept.

研究分野：基礎化学

科研費の分科・細目：物理化学

キーワード：人工原子 量子ドット フントの規則 フェルミ孔 共役フェルミ孔 波動関数 配置間相互作用 電子相関

1. 研究開始当初の背景

近年、半導体微細加工技術の進展により、ナノスケールの人工的な低次元ポテンシャル井戸に少数の電子を閉じ込めることが可能となった。このような量子系は「人工原子」あるいは半導体量子ドットと呼ばれ、新奇な物性を示す電子系として近年大きな注目を集めている。人工原子はその巨大な振動子強度によって光と非常に強く結合することができるため、単一光子検出器や量子暗号通信中継器等の次世代光量子デバイス素子として期待されている一方、電子相関が非常に大きく、相関エネルギーが全エネルギーの10%以上にも達するため、従来のハートリー・フォック法等に基づく独立電子モデルではその本質を捉えることが難しいことが知られている。このため人工原子は、実用的な興味のみならず、「複雑に絡み合った電子状態を独立電子モデルを超えて如何に記述するか」という本質的な問題を物理化学に提起する。本研究では、この人工原子の巨大な振動子強度の背後にある電子の集団運動と電子相関の関係を明らかにするための研究に取り組んだ。

2. 研究の目的

電子が複雑に絡み合い、相関エネルギーが全エネルギーの一割以上にも達するような強相関電子系においては、従来用いられてきた独立電子モデルに基づく「1電子軌道」という概念は意味を失う。本研究では、このように電子相関が極めて大きく、従来の方法ではその本質を捉えることが難しい人工原子について、「波動関数から内部空間における確率密度を抽出する」という新しい方法を用いることによって、その複雑な電子状態を解明し、電子の集団運動の本質を明らかにするための研究を行った。具体的には以下に示すように、人工原子におけるフント則が成り立つ起源および、人工原子における角度相関発生メカニズムの解明に取り組み、それらを「共役フェルミ孔」という新しい概念を用いて明らかにした。

3. 研究の方法

人工原子を調和ポテンシャル中に拘束された多電子系としてモデル化し、参照系として同数の電子を持つ自然原子に着目し、両者のエネルギースペクトルおよび波動関数を完全配置間相互作用(CI)法によって求めた。得られた高精度波動関数から、重心の回転を分離した「内部空間」における確率密度分布を抽出し、その節構造を調べた。

4. 研究成果

(1) フント則の起源

前期量子論の時代に原子分光学の分野で経験的に導かれたフントの規則は、同じ軌道配置を有し、異なるスピンを持つ状態間のエネルギー順序を予言する三つの規則であり、特にスピンに関する第一規則については、原子のみならず、分子、さらには人工原子についても成り立つことが知られている。一方、この規則が成り立つメカニズムについては、一電子演算子と二電子演算子の相対的な重要性に関する、数十年に及ぶ長い議論の歴史にも関わらず、未だ統一した理解が得られていない。このため本研究では、He 様原子系および対応する2電子人工原子を対象として、このフントの第一規則が成り立つ起源の解明に取り組んだ。

人工原子あるいは量子ドットは、少数の電子をナノスケールの低次元ポテンシャル井戸に閉じ込めた有限多電子系であり、多くの場合近似的に2次元調和ポテンシャル中に束縛された複数電子としてモデル化される。本研究では、この人工原子とHe 様原子の詳細な比較を行うために、2次元調和ポテンシャルおよび2次元クーロンポテンシャルに束縛された2電子系の固有エネルギーおよび波動関数を完全CI法によって計算した。得られたCI波動関数から、二電子の相関を完全に

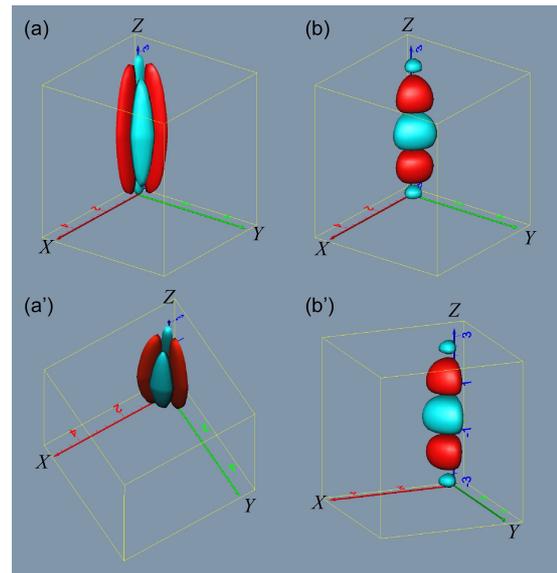


図 1. 2 電子の内部空間における共役フェルミ孔 (赤) と通常のフェルミ孔 (ブルー). (a) および (b) はそれぞれ (1s)(2s) および (1s)(2p) の電子配置の場合を表す. x, y , および z 座標はそれぞれ、電子の動径座標 s_1, s_2 , および 2 電子の相対角に対応する. (a') および (b') は (a) および (b) を別の視座から見た図を表す.

記述する「内部波動関数」を抽出しその構造を調べた。その結果、閉じ込めが強い極限において、スピンの平行な三重項状態のみならず、スピンの反平行な一重項状態においても、波動関数の確率密度が零となる「共役フェルミ孔」と呼ばれる空孔が存在することが初めて見出された(図1)。そして、この共役フェルミ孔の存在によって、一重項状態の波動関数は三重項状態よりも空間的に広がり、そのため、より高いエネルギー値を持つこと、すなわちフントの第一規則が成り立つことを明らかにした(*J. Phys. B* 2012)。この論文は英国物理学会が選出する IOP セレクトに選ばれ、また欧州物理協会が発行する *Europhysics News* で紹介された。またこの成果により、日本物理学会からの依頼を受けてフント則の起源について解説記事を執筆し、2013年の学会誌に掲載された(*日本物理学会誌* 2013)。

(2) 共役フェルミ孔の存在と角度相関

He 原子は電子相関を解明するための最も基本的な系として、古くから多くの理論および実験研究がなされている。特に、He 様原子の一電子励起状態における角度相関については、フントの第一規則が成り立つメカニズムの解明と関係して、1970~80年代に集中的に研究されており、特に Thakkar らは角度相関係数の計算により、(1s)(2p) 電子配置においては核電荷 Z_n の増加とともに、二電子角度の異方性が増大することを示している。また、本研究によって、He 様原子に対応する二電子人工原子の(1s)(2p)状態について確率密度分布の二電子角度依存性を調べたところ、He 様原子の場合と同様に、閉じ込めポテンシャルの強度 ω の増加とともに、二電子角度依存性が増大することが見出された。一方、よく知られているように、核電荷 Z_n および閉じ込めの強度 ω の増大に従い、電子間反発ポテンシャルの寄与は実効的に小さくなるため、波動関数はハートリー・フォック法に基づく独立電子モデルに近づいていく。すなわち、これらの結果は、「波動関数の独立電子モデルからのずれ」という意味においての電子相関は、 Z_n および ω の増大とともに零に収束していくにも関わらず、(1s)(2p) 状態の確率密度分布は強い二電子角度依存性を持つことを示唆している。本研究では、この He 様原子および人工原子における一見矛盾した角度相関の振舞いの原因を明らかにすることを目的として、二電子の内部空間における波動関数の節構造の詳細を調べ、さらに「独立電子模

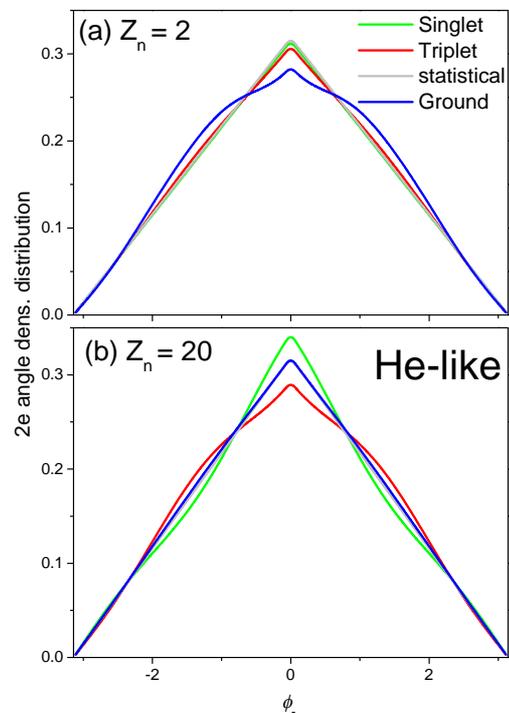


図2. He 様原子における確率密度分布の2電子角度依存性：(a) $Z_n = 2$, (b) $Z_n = 20$. 図中の青、緑、赤線はそれぞれ、基底 $(1s)^2 \ ^1S$ 状態、一重項 $(1s)(2p) \ ^1P$ 状態、三重項 $(1s)(2p) \ ^3P$ 状態を表す。また、薄い灰色の三角形の分布は、二電子の空間分布が角度相関を持たない統計的な場合を表す。

型」が意味する電子の振る舞いの本質を探った。

内部空間における確率密度を動径座標で積分した二電子角度密度分布を、基底 $(1s)^2$ 状態および、 $(1s)(2p)$ 電子配置の一重項 $\ ^1P$ 状態および三重項 $\ ^3P$ 状態についてそれぞれ計算した結果を図2に示す。図2の(a)および(b)は、He 様原子の $Z_n = 2$ および 20 の結果に対応する。図中の薄い灰色の三角形分布は、二電子の確率密度分布が統計的な場合を表し、この分布からのずれが確率密度の異方性、すなわち二電子の角度相関の存在を表す。図2赤および緑で表される $(1s)(2p)$ 電子配置の場合には、基底状態の結果とは反対に、一重項・三重項状態ともに、 $Z_n = 2$ の場合には密度分布は統計分布とほぼ重なり、 $Z_n = 20$ の場合には大きな異方性を示す。さらに、 $Z_n = 20$ の場合に見られる異方性は、一重項・三重項状態間で大きく異なり、一重項は二電子が核の同じ側に平行に並ぶ配置($\phi = 0, \pm\pi$)に密度分布のピークを持ち、一方、三重項の場合には、二電子が互いに反対側に来る配置($\phi = \pm\pi/2$)にピークを持つ結果を示している。人工原子の場合においても同様に、 ω が大きい場合において、一重項は二つの電子

が同じ側に平行に並ぶ配置にピークを持ち、三重項の場合には二電子が反並行に並ぶ配置にピークを持つ結果が得られた。

Z_n および ω が大きく、それ故電子間反発の効果が非常に小さい場合における、この(1s)(2p)電子配置の奇妙な振舞いを理解するために、 $Z_n =$ の極限における一重項・三重項状態の確率密度の差で定義されるフェルミ孔と共役フェルミ孔の構造を調べた。その結果、(1s)(2p)電子配置のフェルミ孔と共役フェルミ孔は、それぞれ $\phi_- = 0, \pm\pi$ および $\phi_- = \pm\pi/2$ を中心として ϕ_- 軸に沿って交互に並び、それぞれ、三重項状態および一重項状態の確率密度分布の節点と対応すること、あるいは逆に言えば、それぞれ一重項と三重項状態の確率密度分布のピークと対応することが示された。すなわち、 Z_n および ω が大きい場合に現れる大きな角度相関は、(1s)(2p)電子配置が生来持っているフェルミ孔および共役フェルミ孔が現れたものであることがはじめて明らかとなった。

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8件)

T. Takeuchi, S. Ohnuki, T. Sako, Comparison Between Maxwell-Schroedinger and Maxwell-Newton Hybrid Simulations for Multiwell Electrostatic Potential, *IEEE Journal of Quantum Electronics*, 査読有, vol.50, 2014, pp.334 - 339,

DOI:10.1109/JQE.2014.2310196

T. Sako, P.-A. Hervieux, Energy-Level Structure of a Confined Electron-Positron Pair in Nanostructure, *International Journal of Physical, Nuclear Science and Engineering*, 査読有, vol.8, 2014, pp.453 - 456,

<http://waset.org/Publication/energy-level-structure-of-a-confined-electron-positron-pair-in-nanostructure/9997459>

S. Ohnuki, T. Takeuchi, T. Sako, Y. Ashizawa, K. Nakagawa, M. Tanaka, Coupled Analysis of Maxwell-Schroedinger Equations by Using the Length Gauge: Harmonic Model of a Nanoplate Subjected to a 2D Electromagnetic Field, *International Journal of Numerical Modelling: Electronic Networks, Devices and Fields*, 査読有, vol.26, 2013, pp.533 - 544,

DOI:10.1002/jnm.1896

佐甲徳栄, ヘリウム様原子におけるフントの第一規則の起源, *日本物理学会誌*, 査読有, vol.68, 2013, pp.358 - 365,

<http://ci.nii.ac.jp/naid/110009615524>

J. Paldus, T. Sako, X. Li, G.H.F. Diercksen, Symmetry-breaking in the independent particle model: nature of the singular behavior of Hartree-Fock potentials, *Journal of Mathematical Chemistry*, 査読有, vol.51, 2013, pp.427 - 450,

DOI:10.1007/s10910-012-0093-8

T. Sako, J. Paldus, A. Ichimura, G.H.F. Diercksen, Origin of the first Hund rule and the structure of Fermi holes in two-dimensional He-like atoms and two-electron quantum dots, *Journal of Physics B*, 査読有, vol.45, 2012, article no.235001(13pages),

DOI:10.1088/0953-4075/45/23/235001

T. Sako, J. Paldus, A. Ichimura, G.H.F. Diercksen, Conjugate Fermi hole and the first Hund rule, *Europhysics News*, 査読無, vol.44, 2012, 16-17,

http://www.europhysicsnews.org/index.php?option=com_content&view=category&layout=blog&id=112&Itemid=314&lang=en_GB.utf8%2C+en_GB.UTF

T. Sako, J. Adachi, A. Yagishita, M. Yabashi, T. Tanaka, M. Nagasono, T. Ishikawa, Suppression of ionization probability due to Rabi oscillations in the resonance two-photon ionization of He by EUV free-electron lasers, *Physical Review A*, 査読有, vol.84, 2011, article no.053419(8 pages),

DOI:10.1103/PhysRevA.84.053419

[学会発表](計4件)

T. Sako, Angular correlation in two-electron artificial atoms, EMN Spring Meeting 2014 (招待講演), 2014年02月27日~2014年03月02日, Las Vegas, USA

T. Sako, Origin of the First Hund Rule in Artificial Atoms, Energy Materials and Nanotechnology Meeting 2013(招待講演), 2013年10月21日~2013年10月27日, Chengdu, China

佐甲徳栄, He様原子におけるフントの多重項則の起源と共役フェルミ孔, 原子衝突学会改称記念式典(招待講演), 2012年07月12日, 東京

T. Sako, Non-perturbative two-photon resonance ionization of Ar⁺ by strong EUV-FEL lights: Suppression of ionization by Rabi oscillation, International Symposium on (e, 2e), Double Photo-ionization & Related Topics (招待講演), 2011年8月4日, Dublin, Ireland

[図書](計0件)

[産業財産権]

出願状況(計0件)

取得状況 (計 0 件)

〔その他〕

ホームページ等

<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