研究成果報告書 科学研究費助成事業



研究成果の概要(和文):放射反作用の効果を取り入れた信頼性の高い光物質相互作用の計算方法を確立するために,マックスウェル方程式とシュレディンガー方程式を連立させるための鍵となる分極電流密度の詳細な解析を行った.電子密度の連続の式から導かれる実空間での分極電流密度は縦波・横波成分の両方を複雑な形で含むため,クーロン自己相互作用に対応する縦波成分を除去する必要がある.具体例として,擬1次元ナノ空間に拘束された電子にレーザー場が照射された系に着目し,逆空間での波数ベクトルとの直交条件を課すことによって,分極電流密度の縦波・横波の分離に成功した.その結果,系の次元性に応じて縦・横成分比が大きく変化することが見出された.

研究成果の学術的意義や社会的意義 光物質相互作用を扱う従来の理論モデルでは「電子系の励起による入射電磁場の変形」は小さいと仮定して無視 し、そのため電磁場は電子系の励起とは無関係に a prioriに決まった変化をする時間依存ポテンシャルとして 扱われてきた.近年,近接場を利用した顕微分光に代表されるように,物質の光励起によって局所的に生成する 強力な電磁場が物性に与える影響に大きな注目が集まっている.このため「電子系による電磁場への反作用」を 取り入れた本理論モデルの構築および計算方法の開発は,今後更なる実験の進展によって重要性が増すと考えら れる.

研究成果の概要(英文):The polarization current density that is the key quantity to couple Maxwell's equations and the time-dependent Schroedinger equation was analyzed to establish a reliable computational method for light-matter interaction that takes into account the radiation reaction. The polarization current density in the real space derived from the equation of continuity for the electron density involves both longitudinal and transverse components, and it is necessary to eliminate the longitudinal component corresponding to the Coulomb self-interaction. As an illustrative example, we focused on a system of an electron confined in a quasi-one-dimensional nanostructure and subjected to a pulsed laser field and separated the longitudinal and transverse components by the orthogonality condition with the wavenumber vector in the reciprocal space. The results show an appreciable change in the ratio between the transverse and longitudinal components for different strength of the lateral confinement.

研究分野:量子科学

キーワード:光物質相互作用 放射反作用 波束 縦波・横波 レーザー場 マックスウェル方程式 シュレディンガー方程式 分極電流密度 電子

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

近年レーザー技術の進展により,超高速で進行する化学反応の実時間追跡や,特定の反応生成物の収量を最大化する光量子制御,あるいは光誘起磁化反転等,光を用いて原子・分子を自在に操ることが可能となりつつある.このような光による物質操作においては,実測のデータを解析し,さらに新規物理化学現象を開拓する挑戦的な実験を考案するための「光-物質相互作用の理論モデル」に基づく理論予測が重要である.

従来多くの理論モデルにおいては、光と物質との相互作用は、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 ルを取り入れることによって扱われてきた.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.一般に、入射 光の交番電場によって電子系が周期的な加速度運動をすると分極電流が生成し、アンペール-マックスウェル方程式に従って、電子系の周囲に新たな電磁場が形成される.この新たな電磁場 は入射光と干渉し、入射光を変形させる可能性がある.一方これまで、この「電子系の励起によ る入射電磁場の変形」は小さいと仮定して無視し、そのため電磁場は電子系の励起とは無関係に aprioriに決まった変化をする時間依存ポテンシャルとして扱われてきた.近年、近接場を利用 した顕微分光に代表されるように、物質の光励起によって局所的に生成する強力な電磁場が物 性に与える影響に大きな注目が集まっていることを受けて、この「電子系による電磁場への反作 用」を取り入れた実用的な計算方法を開発することが強く望まれている.

2. 研究の目的

光と物質との相互作用を記述する従来の多くの理論モデルにおいては、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と電磁場の時間発展を記述するマックスウェル方程 式はそれぞれ独立な方程式として扱われており、このため、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.本研究では、研究代表者らが最近開 発を行ったマックスウェル - シュレディンガー連立解法[1]に着目し、入射レーザーパルス光に よって励起された電子波束が生成する「分極電流密度」の詳細な解析を行い、入射光と電子系が 互いに影響を及ぼし合う協奏的な時間発展を可能にする理論モデルおよび実用的な計算方法の 開発を行うことを目的とした.

3.研究の方法

光照射条件下における N 個の荷電粒子(各粒子の質量を m_k ,電荷を q_k (k = 1, 2, ..., N) とする)の時間依存シュレディンガー方程式は放射ゲージの下に次式で表される:

$$i\hbar\frac{\partial\Psi}{\partial t} = \left[\sum_{k=1}^{N}\frac{\hbar^2}{2m_k}\left\{\hat{\boldsymbol{p}}_k - q_k\boldsymbol{A}(\boldsymbol{r}_k, t)\right\}^2 + \sum_{k>l}^{N}\frac{1}{4\pi\epsilon_0}\frac{q_kq_l}{|\boldsymbol{r}_k - \boldsymbol{r}_l|}\right]\Psi.$$
(1)

A(r,t)は入射光のベクトルポテンシャルを表し、荷電粒子に対して時間依存ポテンシャルを与える.また、電磁場の時間発展を記述するマックスウェル方程式は次の4個の連立方程式で表される:

$$\nabla \cdot \boldsymbol{E}(\boldsymbol{r},t) = \frac{\rho(\boldsymbol{r},t)}{\epsilon_0}, \qquad (2)$$
$$\nabla \cdot \boldsymbol{H}(\boldsymbol{r},t) = 0, \qquad (3)$$

$$\nabla \times \boldsymbol{E}(\boldsymbol{r},t) = -\mu_0 \frac{\partial \boldsymbol{H}(\boldsymbol{r},t)}{\partial t},\tag{4}$$

$$\nabla \times \boldsymbol{H}(\boldsymbol{r},t) = \boldsymbol{J}(\boldsymbol{r},t) + \epsilon_0 \frac{\partial \boldsymbol{E}(\boldsymbol{r},t)}{\partial t}.$$
(5)

マックスウェル - シュレディンガー連立解法においては,式(5)右辺第1項の分極電流密度J(r,t)を時間依存波束 $\Psi(r_1, \dots, r_N, t)$ を用いて次のように計算する:

$$\boldsymbol{J}(\boldsymbol{r},t) = N \int_{\boldsymbol{r} \equiv \boldsymbol{r}_1, D} \left[\sum_{k=1}^{N} \left\{ \frac{\hbar q_k}{2im_k} (\Psi^* \nabla_k \Psi - \Psi \nabla_k \Psi^*) - \frac{q_k^2}{m_k} |\Psi|^2 \boldsymbol{A} \right\} \right] d^3 \boldsymbol{r}_2 \cdots d^3 \boldsymbol{r}_N.$$
(6)

すなわち,入射レーザー光によって荷電粒子は励起され,その状態を記述する時間依存波動関数 は式(1)に従って時間発展する.時間依存波動関数 $\Psi(\mathbf{r}_1, \cdots, \mathbf{r}_N, t)$ は式(6)によって分極電流を生 成し,分極電流密度 $J(\mathbf{r}, t)$ は式(5)のアンペール - マックスウェル方程式の右辺に入り,入射レー ザーの光電場 $E(\mathbf{r}, t)$ を修正する.修正された光電場はマックスウェル方程式により電磁場を更新 し,再び荷電粒子に作用を及ぼす.

一方,この「入射光によって励起した荷電粒子が周囲の電磁場を修正し,修正された電磁場が 再び荷電粒子と相互作用する」という状況は,所謂「自己相互作用」であり,取り扱いに注意を 要する.実際,式(1)~(6)によって記述されるマックスウェル - シュレディンガー連立方程式に おいては,分極電流密度によって更新された電場*E*(*r*,*t*)は,光子成分に対応する「横波成分」と クーロン自己相互作用に対応する「縦波成分」の両方を持つ.荷電粒子間のクーロン相互作用は, 時間依存シュレディンガー方程式の枠内で既に適切に取り扱われているため,「外部電場」とし て荷電粒子に作用する電場*E*(*r*,*t*)からは縦波成分を除去する必要がある.本研究では,このマッ クスウェル - シュレディンガー連立解法が本質的に内包する自己相互作用を適切に扱い自己無 撞着な理論モデルを構築するために,電磁場の更新を行う分極電流密度*J*(*r*,*t*)から縦波成分を除 去することによって,光子成分である横波のみをアンペール・マックスウェル方程式に返す計算 方法および高効率な計算コードの開発を行った.

4. 研究成果

(1) 分極電流密度の横波成分の抽出

一般に,電場・磁場・ベクトルポテンシャル等を含めた任意のベクトル場v(r,t)は,発散および回転の条件式を与えることによって決定される:

$$\nabla \cdot \boldsymbol{v}(\boldsymbol{r},t) = a(\boldsymbol{r},t),\tag{7}$$

 $\nabla \times \boldsymbol{v}(\boldsymbol{r},t) = \boldsymbol{b}(\boldsymbol{r},t). \tag{8}$

発散条件はベクトル場の縦波成分v∥を規定し、回転条件は横波成分v⊥を定める.よって式(2)~(5)のマックスウェル方程式において、縦波・横波成分を明示すると、

$$\nabla \cdot \boldsymbol{E}_{\parallel}(\boldsymbol{r},t) = \frac{\rho(\boldsymbol{r},t)}{\epsilon_0}, \tag{9}$$
$$\nabla \cdot \boldsymbol{H}_{\parallel}(\boldsymbol{r},t) = 0. \tag{10}$$

$$\nabla \times \boldsymbol{E}_{\perp}(\boldsymbol{r},t) = -\mu_0 \frac{\partial \boldsymbol{H}_{\perp}(\boldsymbol{r},t)}{\partial t}, \qquad (11)$$

$$\nabla \times \boldsymbol{H}_{\perp}(\boldsymbol{r},t) = \boldsymbol{J}(\boldsymbol{r},t) + \epsilon_0 \frac{\partial \boldsymbol{E}(\boldsymbol{r},t)}{\partial t}, \qquad (12)$$

となる.最後の式(12)の右辺の分極電流密度 $J(\mathbf{r},t)$ と電場 $E(\mathbf{r},t)$ は、一般に縦波成分・横波成分 と共に内包する.これを形式的に分割し ($J = J_{\parallel} + J_{\perp}$ 、 $E = E_{\parallel} + E_{\perp}$)、式(12)に代入すると、 アンペール - マックスウェル方程式(12)は次の二つの式に分離される:

$$0 = \mathbf{J}_{\parallel}(\mathbf{r}, t) + \epsilon_0 \frac{\partial \mathbf{E}_{\parallel}(\mathbf{r}, t)}{\partial t},$$

$$\nabla \times \mathbf{H}_{\perp}(\mathbf{r}, t) = \mathbf{J}_{\perp}(\mathbf{r}, t) + \epsilon_0 \frac{\partial \mathbf{E}_{\perp}(\mathbf{r}, t)}{\partial t}.$$
(13)
(14)

式(13)は両辺の発散をとり、式(2)のガウスの法則を用いると電荷保存の式を与える:

$$0 = \nabla \cdot \boldsymbol{J}_{\parallel}(\boldsymbol{r}, t) + \frac{\partial \rho(\boldsymbol{r}, t)}{\partial t}.$$
(15)

式(14)は分極電流密度の横波成分が電場の光子成分である横波のみを更新するアンペール - マ ックスウェル方程式であり、荷電粒子からの局所的な放射を物理的に正しく入射レーザー場に フィードバックすることができる.

一方,式(6)の分極電流密度は縦波成分と横波成分を複雑な形で内包しているため,実空間に おいて両者を分離することは容易ではない.縦波・横波を規定する方程式である式(7)および(8) が,実空間において微分演算子を用いて定義されていることが,この「実空間での分離」を難し くしている要因である.式(7)および(8)は逆空間である波数 k 空間においては,次のように「局 所的」となる:

$$\begin{split} & \boldsymbol{k} \cdot \tilde{\boldsymbol{v}}_{\parallel}(\boldsymbol{k},t) = \tilde{a}(\boldsymbol{k},t), \\ & \boldsymbol{k} \times \tilde{\boldsymbol{v}}_{\perp}(\boldsymbol{k},t) = \tilde{\boldsymbol{b}}(\boldsymbol{k},t). \end{split}$$

式(16)および(17)は、ベクトル場の縦波成分は波数 ベクトルkに並行であり、横波成分は垂直であるこ と示している.よって、式(6)で得られた分極電流 密度 $J(\mathbf{r},t)$ をフーリエ変換によって波数空間の分布 に $\tilde{J}(\mathbf{k},t)$ 変換する.そして波数空間の各座標点にお いて、波数ベクトルkとの幾何学的な直交条件を課 すことによって、縦波成分 $\tilde{J}_{\parallel}(\mathbf{k},t)$ と横波成分 $\tilde{J}_{\perp}(\mathbf{k},t)$ を分離することができる.この波数空間における分 極電流密度の縦波・横波成分への分割を模式的に表 したものを図1に示す.図1より縦波成分は、

$$\tilde{\boldsymbol{J}}_{\parallel} = (\boldsymbol{k} \cdot \tilde{\boldsymbol{J}}) \frac{\boldsymbol{k}}{|\boldsymbol{k}|^2}, \qquad (18)$$



図 1. 波数空間における分極電流密度の縦 波・横波成分への分割.

と計算される.よって横波成分は,

 $\vec{J}_{\perp}(\boldsymbol{k},t) = \vec{J}(\boldsymbol{k},t) - \vec{J}_{\parallel}(\boldsymbol{k},t), \quad (19)$

と求められる.式(19)によって波数空間の各座標点 において求められた $\tilde{J}_{\perp}(\mathbf{k},t)$ を逆フーリエ変換で実 空間に戻すことによって、マックスウェル - シュレ ディンガー連立解法において必要となる分極電流 密度の横波成分 $J_{\perp}(\mathbf{r},t)$ を得ることができる.

(2) ナノ構造における放射反作用と次元性

近年ナノ加工技術の進展により,半導体表面に比較的自由にナノメートルスケールのポテンシャル 井戸を作り込むことが可能となっている.このナノ 構造は電子波動関数の広がり・形状を任意に指定す ることができ,更に通常の原子・分子と比較して非 常に大きな振動子強度を持つため[2,3],放射反作 用の効果を調べる最適な系である.本研究では電子



図 2. 本研究で具体例として解析した擬 1 次元 ナノ構造と入射レーザー場の空間配置.

雲の広がりを自在に変えることができる最も簡単なナノ構造として、図2に概略を示す擬1次元ナノ構造に着目した.ナノ構造中の電子は縦方向(y方向)と横方向(x方向)が共に調和振動子ポテンシャルによって拘束されおり、電子波動関数の広がり具合は、閉じ込め強度 ω_x および ω_y を用いて、 $\sim 1/\sqrt{\omega_x}$ および $\sim 1/\sqrt{\omega_y}$ と表される.すなわち、閉じ込め強度が大きい場合には系の電子雲は圧縮され、その方向のサイズは小さくなる.入射レーザー光は系の長軸y方向に偏光しており、この振動する光電場によって電子波束はy方向に振動する.電子波動関数はx方向とy方向の自由度が分離した形、

$$\Psi(\mathbf{r},t) = \chi(x)\psi(y,t)$$

(20)

(22)

(23)

を仮定した.x方向の波動関数 $\chi(x)$ は時間変化しない調和振動子の基底状態であり、このため $\chi(x)$ は、x方向の電子雲の広がりのみを規定する.一方、光電場によって揺すられるy方向の波動関数 $\psi(y,t)$ は時間に依存し、次の時間依存シュレディンガー方程式(原子単位系)を解くことによって求められる:

$$i\frac{\partial\psi(y,t)}{\partial t} = \left[-\frac{1}{2}\frac{\partial^2}{\partial y^2} + \frac{1}{2}\omega_y^2 y^2 + E(t)y\right]\psi(y,t).$$
(21)

y 方向の波動関数 $\psi(y,t)$ は、きわめて安定かつ、実空間と逆空間との間で高速フーリエ変換を繰り返しながら時間積分を実行する「シンプレクティック積分法」を用いて時間発展の計算を行った。本研究では、前節で示したように、各時間 t 毎に分極電流密度 $J(\mathbf{r},t)$ を計算し、逆空間で縦波・横波成分の分離を行う必要があるため、フーリエ変換を用いた波動関数の時間発展法とは計算効率の観点からも極めて相性が良い.式(20)の波動関数に対応する分極電流密度は次のように表される:

$$J_x = 0,$$

$$J_y = \frac{i}{2} \left(\psi^* \frac{\partial}{\partial y} \psi - \psi \frac{\partial}{\partial y} \psi^* \right).$$

x方向の閉じ込めの強さ ω_x を変化させて分極電流密度の縦波・横波の成分比を計算した結果を図3に示す.分極電流密度は、電子励起の程度に応じて時間的に大きく変化するため、レーザーパルスが最大となる時刻における横波成分と全成分の比分 J_\perp/J をプロットしている.図3が示すように、分極電流密度の横波成分は閉じ込め強度 ω_x に大きく依存し、 ω_x が大きい場合は、横波

成分は分極電流密度の9割に迫り,逆に ω_x が小さい 場合は,横波成分の寄与は2割未満となる. ω_x が大 きい場合は電子波動関数のx方向の分布は小さく なり,系は一次的となる.一方、 ω_x が小さい場合に は電子波動関数はx方向に広がり,系は二次元的と なる.分極電流密度の横波成分は式(14)によって入 射光へのフィードバックの大きさと直結するため, 図3の結果は,一次元的な電子系ではこのフィード バックの効果が大きく,系の次元性が上がり二次元 的になると,このフィードバック効果は小さくなる ことを示している.

系の次元性あるいは電子分布の広がりと分極電 流密度の横波成分の割合の変化の由来は,図4に模 式的に示す波数空間における分極電流密度の分割



図 3. x 方向の閉じ込めの強さ ω_x に対する分 極電流密度の横波成分 (J_{trans}) の全成分 (J_{total}) に対する割合.



図 4. 波数空間の各格子点における分極電流密度(*J*total)の縦波成分(*J*tong)と横波成分(*J*trans)への分割の概念図. 図の左側は x 方向の閉じ込めが小さい場合(系が 2 次元的), 右側は x 方向の閉じ込めが大きい場合(系が 1 次元的)に対応する.

によって理解することができる. ω_x が大きい場合には電子雲はx方向に強く束縛されるため,波数空間での分極電流密度の分布は広くなる. その結果,平均的に $|k_x|$ が大きい領域の寄与が大きくなる. $|k_x|$ が大きい領域においては,図4の右側に示すように,波数ベクトルが k_x 軸側に傾くため,分極電流密度を分割すると横波成分の寄与 J_{trans} が大きくなる. 一方, ω_x が小さい場合には,電子雲のx方向の束縛が弱いため,波数空間での分極電流密度の分布は狭くなり,平均的に $|k_x|$ が小さい領域の寄与が大きくなる. その結果,図4の左側に示すように,今度は波数ベクトルは k_y 軸側に傾く. そのため分極電流密度は縦波成分 J_{long} が支配的になり,電子系からの放射に対応する横波成分 J_{trans} は小さくなる. 本研究で得られた「励起電子からの入射電磁場へのフィードバックは系の次元性が低い方が大きくなる」という結果は,通常の三次元的な系ではこの効果が明確に観測されていないという従来の実験事実とコンシステントであると同時に,ナノワイヤー等の擬1次元系を対象とした場合には,この効果が顕著に表れることを示唆している.

- [1] T. Takeuchi, S. Ohnuki, T. Sako, Phys. Rev. A, 91 (2015) 033401(13 pages).
- [2] T. Honda, T. Sako, J. Phys. B, **53** (2020) 175102(13 pages).
- [3] K. Asano, T. Sako, H. Ishida, J. Phys.: Condens. Matt., **32** (2020) 435302(13 pages).

5.主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計3件(うち査読付論文 3件/うち国際共著 0件/うちオープンアクセス 0件)

1.著者名	4.巻
K. Asano, T. Sako, H. Ishida	32
2.論文標題	5 . 発行年
Spin-dependent transient current in transistor-like nanostructures	2020年
3. 雑誌名	6.最初と最後の頁
Journal of Physics: Condensed Matter	435302(1~13)
掲載論文のDOI(デジタルオプジェクト識別子)	査読の有無
10.1088/1361-648X/aba292	有
オープンアクセス	国際共著
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	-

1.著者名	4.巻
T. Honda, T. Sako	⁵³
2 . 論文標題	5 . 発行年
Distribution of oscillator strengths and correlated electron dynamics in artificial atoms	2020年
3.雑誌名	6.最初と最後の頁
Journal of Physics B: Atomic Molecular and Optical Physics	175102(1~13)
掲載論文のDOI(デジタルオプジェクト識別子)	査読の有無
10.1088/1361-6455/ab9c35	有
オープンアクセス	国際共著
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	

1.著者名	4.巻
T. Takeuchi, T. Sako, K. Nobusada	98
2.論文標題	5 . 発行年
Light-dressed states under intense optical near fields	2018年
3.雑誌名	6.最初と最後の頁
Physical Review A	053440(1~9)
掲載論文のD01(デジタルオブジェクト識別子)	査読の有無
10.1103/PhysRevA.98.053440	有
オープンアクセス	国際共著
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	-

〔学会発表〕 計7件(うち招待講演 6件/うち国際学会 7件)

1 . 発表者名 T. Sako

2 . 発表標題

Spin-dependent tunneling current in simple transistor-like nanostructures

3 . 学会等名

Quantum Science Symposium in ICCMSE2020(招待講演)(国際学会)

4.発表年

2020年

1.発表者名

T. Sako

2.発表標題

Elimination of the longitudinal component in the coupled Maxwell-Schroedinger hybrid approach

3 . 学会等名

The 5th Computational Chemistry Symposium in ICCMSE 2019(招待講演)(国際学会)

4.発表年

2019年

1. 発表者名 T. Sako

2.発表標題

Light-nanomatter interaction: basic theory and computational approach

3 . 学会等名

EMN Rome Meeting 2019(招待講演)(国際学会)

4.発表年 2019年

1.発表者名

T. Sako

2 . 発表標題

Computational approach to propagation of coupled light - electron system

3.学会等名

Conference on Computational Physics 2019(招待講演)(国際学会)

4.発表年 2019年

1.発表者名

T. Sako

2.発表標題

Computational Chemistry Approach to Light-Matter Interaction: A Maxwell-Schroedinger Hybrid Scheme

3 . 学会等名

International Congress on Pure and Applied Chemistry (ICPAC) Yangon 2019(招待講演)(国際学会)

4.発表年 2019年

1.発表者名

T. Sako

2 . 発表標題

Electron correlation and spin dependence in time-dependent transport in nanostructures

3 . 学会等名

The 9th International Workshop on ADVANCED MATERIALS SCIENCE AND NANOTECHNOLOGY(国際学会)

4 . 発表年

2018年

1. 発表者名

T. Sako

2 . 発表標題

Computational approach to light-nanomatter interaction

3 . 学会等名

2019 International Conference on Small Science(招待講演)(国際学会)

4.発表年

2019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
---------	---------