

平成 22 年 5 月 19 日現在

研究種目：若手研究 (B)

研究期間：2008～2009

課題番号：20750018

研究課題名 (和文) 人工原子におけるレーザー制御超高速スピントロニクス

研究課題名 (英文) Laser-Controlled Ultrafast Spintronics in Artificial Atoms

研究代表者

佐甲 徳栄 (SAKO TOKUEI)

日本大学・理工学部・講師

研究者番号：60361565

研究成果の概要 (和文)：

光を用いた磁性原子スピンの高速な反転制御を目的として、磁性原子内包型人工原子の電子状態を計算する量子化学計算コードの開発を行った。そして、開発したプログラムを用いて光励起スペクトルの計算を行い、人工原子内における磁性原子の数および空間配置を制御することによって、光によって磁性原子のスピン状態を制御できる可能性を見出した。また、量子状態制御において鍵となる人工原子の電子構造を調べ、人工原子においてフントの規則が成立する起源を明らかにした。

研究成果の概要 (英文)：

A quantum chemical code for calculating electronic states of artificial atoms involving magnetic impurities has been developed for the purpose of designing an ultrafast scheme of controlling atomic spins by laser lights. Numerical simulations of optical spectra for the studied systems have shown a possibility of controlling spin states of the magnetic impurities by properly choosing their number and spatial configuration. Analysis of the electronic structure of artificial atoms has clarified the origin of Hund's multiplicity rule that operates in artificial atoms as well as in usual atoms.

交付決定額

(金額単位：円)

	直接経費	間接経費	合計
2008年度	2,000,000	600,000	2,600,000
2009年度	1,300,000	390,000	1,690,000
年度			
年度			
年度			
総計	3,300,000	990,000	4,290,000

研究分野：物理化学

科研費の分科・細目：基礎化学

キーワード：人工原子, 電子状態, スピン, レーザー, フントの規則

## 1. 研究開始当初の背景

微細化を続ける磁性材料の加工精度は、既

に数ナノメートルのオーダーに達し、「原子・分子サイズのメモリ素子」の作成が現実

のものとなりつつある。この究極のメモリ素子を学術的な興味を超えて実用化へと導くためには、極限的な集積度の更なる向上のみならず、ナノスケールの構造体の磁気モーメント、すなわち、ナノ構造体のスピン自由度を高速かつ自在に制御する方法の確立が不可欠である。一方、ナノ構造体の電子状態は、系の大きさの有限性により、系の次元性・サイズ・形状によって複雑に変化をすることが知られている。このため、そのスピン状態の電磁応答を理論的に正確に予測するためには、励起状態を含む電子状態について電子相関を高精度に取り入れた繊細な取り扱いをすることが要求される。このため、外部電磁場を用いてナノ構造体のスピンを制御する理論研究は、未だ手付かずの状態であった。

## 2. 研究の目的

研究代表者は近年、ナノスケールの低次元ポテンシャル井戸に複数の電子が拘束された「人工原子」と呼ばれる量子系の電子構造を明らかにするための理論研究に取り組み、多参照配置間相互作用 (CI) 法に基づく高精度の電子状態計算を通して、閉じ込めポテンシャルの強度とエネルギー準位構造との関係、および、人工原子内部における電子の集団運動を明らかにしている。そして、人工原子においては、一般化された Kohn の定理の帰結によって、電子の重心励起モードのみに振動子強度が集中すること、すなわち電子の集団運動がレーザー電場と非常に強い結合を持つことを示している。そしてこの理解の下に、人工原子内の電子とレーザー場との強力な結合を用いて、人工原子内にドープされた不純物原子のスピンを駆動し、極めて短い時間で効率よくスピンを反転制御する、という着想に至った。

本研究ではこの着想に基づき、(i)任意の磁気不純物原子を内包した人工原子の電子状態を計算するユニバーサルな方法を確立し、計算コードの開発を行うこと、(ii)開発したコードを用いて大規模電子状態計算を行い、人工原子内における磁気不純物原子の種類、数および空間配置とエネルギー準位構造との関係を明らかにすること、そして、(iii)得られたエネルギー準位構造および遷移モーメント行列の情報を用いて、超短パルスレーザー照射下における磁気不純物原子の磁気モーメントの振る舞いを明らかにすることの3点を目的とした研究を行った。

## 3. 研究の方法

スピン  $\vec{M}_\alpha$  を持つ磁気不純物原子  $\alpha$  ( $\alpha = 1, \dots, L$ ) を内包する  $N$  電子人工原子のハミルトニアンは次の形をとる:

$$\hat{H} = \sum_{i=1}^N \frac{\hat{p}_i^2}{2} + \sum_{i=1}^N \frac{1}{2} (\omega_x^2 x_i^2 + \omega_y^2 y_i^2 + \omega_z^2 z_i^2)$$

$$+ \sum_{i>j}^N \frac{1}{|\mathbf{r}_i - \mathbf{r}_j|} - \sum_{i=1}^N \sum_{\alpha=1}^L J_\alpha \vec{M}_\alpha \cdot \vec{s}_i \delta(\mathbf{r}_i - \mathbf{R}_\alpha). \quad (1)$$

右辺第2項は人工原子の調和型の閉じ込めポテンシャルを表し、末項は不純物原子スピンと電子スピンの交換相互作用項を表す。ハミルトニアン(1)は孤立原子の電子ハミルトニアンにおいて、核-電子間引力ポテンシャルを3次元調和ポテンシャルに置き換え、不純物原子スピン-電子スピン間の交換相互作用項を加えたものからなる。このため、その固有状態はスタンダードな量子化学計算システムに対して、調和ポテンシャルおよびスピン間の相互作用項を導入することによって、分子軌道理論のユニバーサルな枠組みを用いて解くことができる。

## 【計算システム】

ハミルトニアン(1)で表される多電子問題を解くためには、ハートリー・フォック法および多参照配置間相互作用 (CI) 法に基づく量子化学計算システムに対して、(i)3次元調和ポテンシャルの1電子分子積分を導入すること、および、(ii)原子スピン-電子スピン間相互作用に伴う、CI 行列のスピン結合様式の変更を行うことが必要である。(i)については、研究代表者はこれまでの研究において、調和ポテンシャルを含む様々な1電子分子積分を計算するコードを既に開発しており、このコードの組み込みを行う。一方、大規模計算を行う量子化学計算システムにおいては、CI 行列要素は通常全電子スピンの固有関数を配置関数として構築されるため、(ii)を行うためには、極めて複雑な多参照CI行列の対角化アルゴリズムを全面的に書き換えることが必要になる。本研究では、このスピン結合様式の変更に伴う膨大な開発作業を回避するために、ハミルトニアン(1)の人工原子部分のみに対してまずCI計算を実行し、得られた多電子波動関数を用いて式(1)末項のスピン結合項の行列要素を計算する。そして、全ハミルトニアンに対して再度対角化を行うという「二段階対角化法」この方法を用いる。これによって、限られた研究期間内に計算システムの開発を行い、大規模計算を実行する。

## 4. 研究成果

### (1). 理論モデルおよび計算コードの開発

人工原子を3次元非等方調和振動子ポテンシャルによって束縛された  $N$  電子系としモデル化し、磁性原子と人工原子内電子との相互作用を、接触型のスピン交換相互作用によって記述した。固有状態の計算法については、研究の方法で述べた通り、「二段階対角化法」を採用した。すなわち、段階多参照配置間相互作用法を用いてハミルトニアン的人工原子部分のみの固有エネルギーおよび波動関

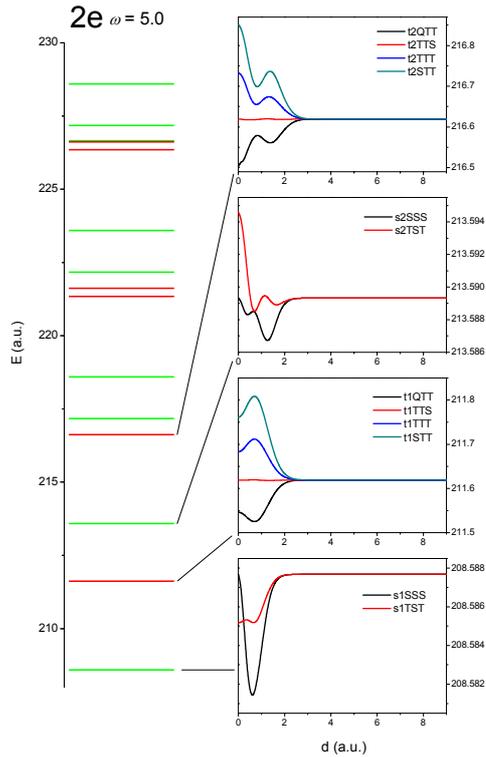


図 1. 擬 1 次元人工原子 ( $N=2$ ,  $\omega=5.0$ ) のエネルギー準位構造。磁気不純物原子なし(左)およびあり(右)。左図の緑線・赤線はそれぞれ 1 重項・3 重項を表す。右図の横軸は不純物原子間距離を表す。

数をまず求め、得られた多電子波動関数を用いてスピン交換相互作用の行列要素を計算し、全ハミルトニアンに対して再度対角化を行う計算コードの開発を行った。

## (2). 磁性原子内包人工原子の電子構造と光励起スペクトル

ハミルトニアン(1)における最も簡単な場合として、電子数 2 ( $N=2$ )、スピン量子数  $1/2$  を持つ磁気不純物原子を 2 個内包した擬 1 次元人工原子に着目し、不純物原子間距離を変化させてエネルギー準位を計算した。例として図 1 に、閉じ込めの強さが  $\omega = 5.0$  の場合におけるスピン電子エネルギー準位構造を示す。磁気不純物原子を含まない人工原子においては、エネルギー準位構造は、電子波動関数の節の数によって定義されるポリヤッド量子数  $\nu_p$  で表されるバンド構造を持つことが知られている(図 1 左)。磁気不純物原子が導入されると個々のエネルギー準位は、1 重項は 2 個、3 重項は 4 個のスピン電子状態に分裂する(図 1 右)。  $\nu_p=0\sim 4$  までの各準位についてエネルギーの変化を調べたところ、不純物原子間距離の関数として超微細構造のエネルギーが振動構造を持つことが見出

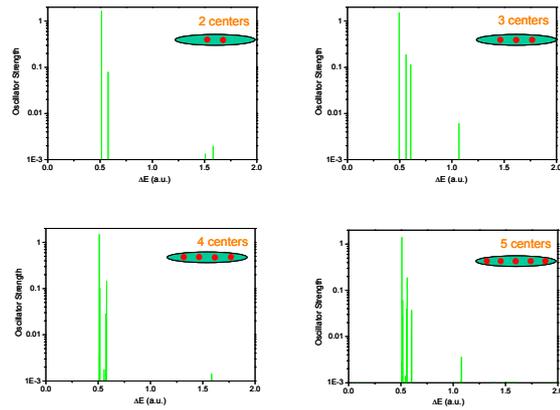


図 2. 擬 1 次元人工原子 ( $N=2$ ,  $\omega=5.0$ ) の振動子強度分布。各図右上に磁性原子の数および空間配置の模式図を示す。

された。そしてこの振動構造は、電子波動関数の節構造を反映していることが示された。

また、この擬 1 次元人工原子について、磁性原子の数および空間配置を変化させて、基底状態からの振動子強度分布の計算を行った(図 2)。磁性原子を含まない人工原子においては、一般化された Kohn の定理によって、振動子強度は重心励起のみに集中することが知られている。一方、図 2 に示される通り、磁性不純物原子を含む場合には、振動子強度が重心励起状態近傍のスピン電子準位に分配されることが示された。この結果は、適切な励起波長を選択することによって、磁気不純物原子のスピン状態を制御できる可能性を示唆している。

## (3). 人工原子におけるフント多重項則の起源

本研究で研究対象としている人工原子においては、原子の場合と同様に、フントの規則を満たす電子配置を取ることが実験的に知られている。通常の原子におけるフントの規則の起源については、1929 年の Slater の考察に基づく、「スピン多重度の大きい状態ほど電子間反発ポテンシャルによるエネルギー増加が小さくなる」ことが原因だとする、いわゆる伝統的な解釈が知られている。一方 Davidson は量子化学計算によって、He 原子の 1 電子励起状態  $(nl)^1L$  および  $(nl)^3L$  ( $n=2, 3, \dots; l=s, p, d, \dots; L=S, P, D, \dots$ ) について 1 電子演算子および 2 電子演算子の期待値を計算し、Slater の解釈とは逆に、スピン多重度が大きい 3 重項状態の方が 1 重項状態よりも電子間反発ポテンシャルのエネルギー寄与が大きいことを示している。すなわち、3 重項状態の方が 1 重項状態よりも低いエネルギー値を持つのは、電子間反発ポテンシャルによるエネルギー増加が小さいからではなく、

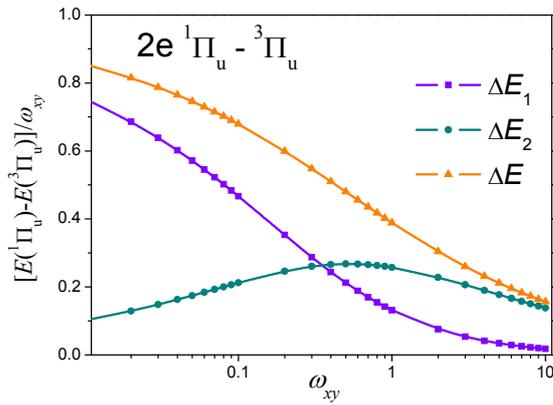


図3. 擬2次元2電子人工原子における1重項(1 $\pi$ )<sup>1</sup> $\Pi$ 状態と3重項(1 $\pi$ )<sup>3</sup> $\Pi$ 状態のエネルギー差およびその内訳.

電子分布がより核付近に収縮していることによって、「核引力ポテンシャルによるエネルギー低下の利得が大きいため」であることが示されている。

本研究では、閉じ込めの強さによって電子間反発ポテンシャルの役割が大きく変化をする人工原子について、フントの規則の起源を明らかにすることを目的として、擬2次元調和ポテンシャル中に拘束された2電子系について完全CI計算を行い、He原子との比較を行った。

擬2次元2電子人工原子の基底状態の電子配置は(1 $\sigma$ )<sup>2</sup>であり、これはHeの基底状態の電子配置(1s)<sup>2</sup>に対応する。この配置から1電子が最低 $\pi$ 軌道に励起した状態(1 $\pi$ )<sup>1</sup> $\Pi$ および(1 $\pi$ )<sup>3</sup> $\Pi$ は、それぞれHe原子の(2p)<sup>1</sup>Pおよび(2p)<sup>3</sup>P状態に対応する。これらの準位を例として、以下に解析の結果を示す。

1重項(1 $\pi$ )<sup>1</sup> $\Pi$ 状態と3重項(1 $\pi$ )<sup>3</sup> $\Pi$ 状態について、全エネルギーの差 $\Delta E$ 、1電子演算子の期待値の差 $\Delta E_1$ 、および2電子演算子の期待値の差 $\Delta E_2$ を、閉じ込めの強さ $\omega_{xy}$ の関数として表したものを図3に示す。3つのエネルギー値 $\Delta E$ 、 $\Delta E_1$ 、および $\Delta E_2$ の間には、

$$\Delta E = \Delta E_1 + \Delta E_2 \quad (2)$$

という関係が成り立つ。異なる $\omega_{xy}$ の結果を見やすく表示するために、図3の縦軸は $\omega_{xy}$ で規格化してある。

図3が示すように、閉じ込めが強い場合( $\omega_{xy}=10$ )には、1重項状態と3重項状態のエネルギー差の殆どは2電子演算子、すなわち、電子間反発ポテンシャルの寄与に由来し、1電子演算子の寄与は極めて小さいことが分かる。すなわちこの場合には、多重項状態間のエネルギー差は、He原子の場合とは異なり、Slater的な描像によって説明されることが示される。一方、閉じ込めの強さが減少すると、図1が示すように、2電子演算子期待値の差が減少し、代わりに1電子演算子の期待値の

差が増大する。すなわち、フントの規則の起源はSlater的な描像からHe原子の場合の描像に近づいていくことが示された。

また、以上の結果を説明するために波動関数の節構造の詳細な解析を行った。電子状態計算において従来用いられてきた独立電子座標とは異なる「ノーマル座標」を導入することによって、波動関数を重心成分と内部成分に分離し、そしてこのノーマル座標に基づく量子数の帰属を行った。その結果、2電子系のスピン状態である1重項と3重項状態は、それぞれ、重心角度モードおよび内部角度モードに励起を持つことが示された。そして、3重項状態では、内部波動関数に角度モード励起による節を持つことによって、電子間反発ポテンシャルの特異点を避けることができるため、1重項状態よりも必ず低いエネルギーを持つことが明らかとなった。

## 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2件)

1. T. Sako, J. Paldus and G.H.F. Diercksen, "The Energy Level Structure of Low-dimensional Multi-electron Quantum Dots", 査読有, *Advances in Quantum Chemistry* **58** 177-201 (2009).

2. T. Sako, J. Paldus and G.H.F. Diercksen, "Origin of Hund's multiplicity rule in quasi-two-dimensional two-electron quantum dots", 査読有, *Physical Review A* **81** 022501 (11 pages) (2010).

[学会発表] (計7件)

1. 佐甲徳栄, “磁気不純物原子を内包した人工原子のスピン電子構造”, 化学反応討論会, 札幌 (2008年6月2日).

2. 佐甲徳栄, “磁性原子を内包した人工原子の光励起スペクトル”, 分子科学討論会, 福岡 (2008年9月24日).

3. 佐甲徳栄, “低次元人工原子のポリヤッドエネルギー準位構造”, 理論化学討論会, 東京 (2009年5月28日).

4. 佐甲徳栄, “人工原子におけるフントの規則”, 分子科学討論会, 名古屋 (2009年9月22日).

5. 佐甲徳栄, “フロケ理論と強レーザー場中の原子分子過程”, 宇宙空間原子分子過程研

究会, 神奈川 (2010年3月1日).

6. 佐甲徳栄, “Origin of Hund's multiplicity rule in artificial atoms”, One Day Symposium on Molecules in Intense Laser Fields and Related Phenomena, 東京 (2010年3月25日).

7. 佐甲徳栄, “人工原子のエネルギー準位構造: フントの規則と角運動量依存性”, 日本化学会, 大阪 (2010年3月26日).

## 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・講師

研究者番号: 60361565