

低次元ナノ物質における光誘起超高速電荷移動

Laser induced ultrafast charge transfer in low-dimensional nanomaterial

○佐甲徳栄¹*Tokuei Sako¹

Abstract: Light-induced ultrafast charge transfer in low-dimensional nanostructure has been studied by a model of a few electrons confined in a 1D electrostatic potential coupled to electrodes at both ends and subjected to an ultrashort pulsed laser field. The time-propagation of the one- and two-electron wave packets has been calculated by integrating the time-dependent Schrödinger equation by the symplectic integrator method with uniform Fourier grid. The temporal behavior of the resultant light-induced current in the studied systems has been discussed with respect to the central frequency and pulse width of the applied laser fields.

1. 序

分子や量子ドット等によって架橋された擬 1 次元ナノワイヤーの電気伝導は、基本的なナノデバイス素子の性能を特徴付ける物性として、近年大きな注目を集めている^[1]。現在、均一にナノスケールの構造体を作りこむ技術が開発途上にあるため、作成された個々のナノ構造体は、サイズ・形状・電極との接合状態にばらつきを持ち、この不均一さのために、それらの電気伝導の I-V 特性もばらつきを持つという問題点がある。この「性能のばらつき」を前提に、ナノ構造体に目的の動作を実行させる方法として、確率共鳴を用いた方法が提案されている^[1]。これは、ナノ構造体に外部からノイズを印加することによって応答の閾限をクリアし、信号を取り出すという方法である。本研究ではこの外部からノイズを与えるという発想に基づき、ノイズを外部電磁場と見立て、パルスレーザー場照射条件化において、擬 1 次元ナノ構造体に誘起される過渡的な電流を電子波束の量子ダイナミクス計算により調べた。

2. 理論モデル・計算方法

本研究では、巨大な振動子強度によって光と強く結合することができる量子ドットに着目し^[2]、次式のハミルトニアン(原子単位系で表現)で定義される電極と接合した複数の一次元量子ドット鎖を考察した：

$$\hat{H} = \sum_{i=1}^N \left[-\frac{1}{2} \frac{\partial^2}{\partial z_i^2} \right] + \sum_{i=1}^N \left[\sum_{\alpha=1}^M V_{\alpha}(z_i) - E_0 z_i + E(t) z_i \right] + \sum_{i>j} \frac{1}{|z_i - z_j|}, \quad (1)$$

$$V_{\alpha}(z) = -D_{\alpha} \exp \left[-\frac{\omega_{\alpha}^2}{\sqrt{2} D_{\alpha}} (z - z_{\alpha})^2 \right]. \quad (2)$$

式(1)において、右辺第 2 括弧内は左から順に、 M 個の量子ドットの閉じ込めポテンシャル、電極間電位差による静電ポテンシャル、最終項は長さゲージによる光電場と電子との相互作用ポテンシャルを表す。量子ドットの個々の閉じ込めポテンシャルは、式(2)で表されるガウス型の引力ポテンシャルを用いた^[3]。図 1 に、電極の両端に電圧が印加された場合の 3 個の量子ドットからなる 1 次元鎖のポテンシャルエネルギーの一例を示す。井戸の極小近傍に初期電子波束を置き、パルスレーザー光が照射された場合における過渡的な電流を、鎖の右端から流れ出る電子の確率密度として計算した。電子波束の時間発展は、確率密度の保存の精度が高いシンプレクティック・インテグレーター法^[4]を用いて、微小時間 dt での時間発展演算を繰り返すことによ

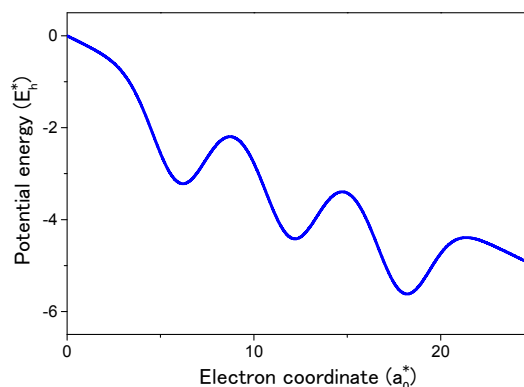


Figure 1. Potential energy curve of the one-dimensional confining potential for the chain of the three coupled quantum dots. The horizontal and vertical axes are represented in the units of effective Bohr radius a_0^* and effective Hartree energy E_h^* , respectively.

1 : 日大理工・教員・一般、Laboratory of Physics, CST, Nihon-U.

て計算を行った. シンプレクティック・インテグレーター法の概要を次式に示す.

$$\begin{aligned}\Psi(t+dt) &= \exp(-i\hat{H}dt)\Psi(t), \\ &\cong \exp(-i\hat{T}dt/2)\exp(-i\hat{V}dt)\exp(-i\hat{T}dt/2)\Psi(t).\end{aligned}\quad (3)$$

式(3)第 2 行目右辺に示されるように, 時間発展演算子を運動エネルギー T およびポテンシャルエネルギー V のみを含むユニタリー変換の積に分解し, 時間反転対称性を課することによって, 単純かつ dt の 3 次のオーダーまで正確な時間発展法が得られる. ユニタリー変換 $\exp(-i\hat{T}dt/2)$ および $\exp(-i\hat{V}dt)$ は, それぞれ運動量空間および座標空間の波動関数 $[\Psi(\mathbf{p})$ および $\Psi(\mathbf{r})]$ に対して, ノルムが 1 の定数値 $\exp(-i\mathbf{p}^2dt/4)$ および $\exp[-iV(\mathbf{r})dt]$ の掛け算となる. このため, 高速フーリエ変換を用いて波動関数の表現を座標空間と運動空間との間で交互に変換することによって, 確率密度の保存精度が高く, 安定な時間発展が可能となる.

3. 電子波束の時間発展

図 2 に 2 電子波束の時間発展の一例を示す. 図の横軸・縦軸はそれぞれ, 電子 1 および 2 の座標を表す. 図 2(a)–(c) は 2 電子が共に左端の井戸に入った初期状態から出発した場合, (a')–(c') は二つの電子がそれぞれ左端および中央の井戸に入った初期状態から出発した場合の一重項状態の時間発展を表している. 図 2(a)–(c) が示すように, 2 電子が共に左端の井戸に入っている場合には, 一方の電子が速やかに井戸の外部に流出することによって過渡電流が生成する. 一方, 2 電子がそれぞれ隣り合う別の井戸に入っている場合には, 二つの電子がビリヤードの玉突き衝突のような運動を経由して電流が生成することが示された. 当日は, 照射するレーザーパルス光の中心周波数および振幅と電気伝導ダイナミクスとの関係を議論する.

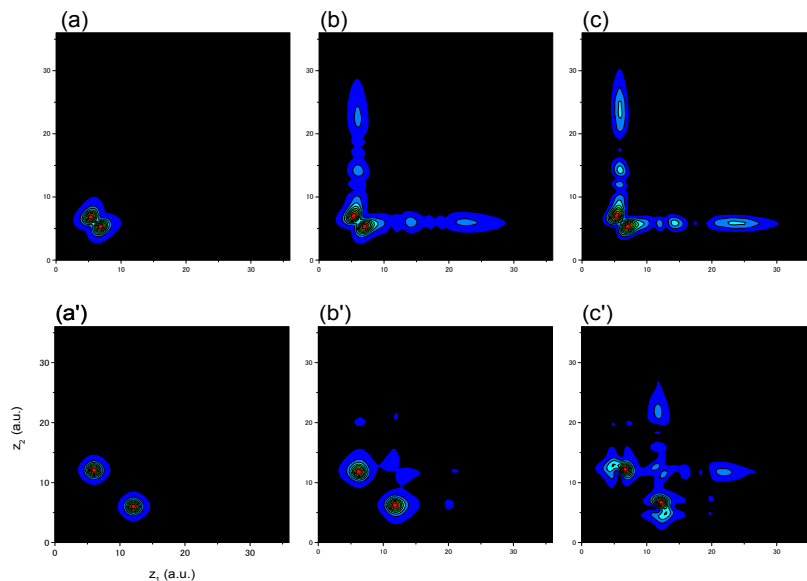


Figure 2. Snapshots of time-dependent two-electron wave packet. (a) – (c) represent the case in which both electrons are initially placed in the left well, while (a')–(c') represent the case in which one electron is placed in the left well and the other in the middle well. The abscissa and ordinate represent the coordinate of electron 1 and 2, respectively.

4. 参考文献

- [1] Molecular Architectonics: <http://molarch.jp/>
- [2] T. Sako et al., “Distribution of oscillator strength in Gaussian quantum dots: An energy flow from center-of-mass mode to internal modes”, *Phys. Rev. B* **74**, 045329 (2006).
- [3] T. Sako and G.H.F. Diercksen, “Spectra and correlated wave functions of two electrons confined in a quasi-one-dimensional nanostructure”, *Phys. Rev. B* **75**, 115413 (2007); “Understanding the spectra of a few electrons confined in a quasi-one-dimensional nanostructure”, *J. Phys.: Condens. Matt.* **20**, 155202 (2008).
- [4] K. Takahashi and K. Ikeda, “Applicability of symplectic integrator to classically unstable quantum dynamics”, *J. Chem. Phys.* **99**, 8680 (1993).