

ナノ構造体における光誘起電子ダイナミクス

分子研 信定克幸、野田真史

ナノ構造体の柔軟な電子構造や化学的性質の多様性を活かし、更には光との相互作用の自由度を取り込んだ量子デバイスは、従前の電子デバイスや光デバイスとは異なる光・電子機能性を併せ持った有望な次世代量子デバイスと考えられる。しかし、その機能発現のメカニズムは複雑であるために実験的研究も未だ試行錯誤の連続であり、ましてや理論的研究では、極端に単純化した理論モデル系を対象として、実在系とかけ離れた定性的議論をしているだけであり、光・電子機能性量子デバイス開発に資する基礎的知見は事実上得られていない。この現状を打破するためには、実在系に即したナノ構造体を対象としてその機能性発現のメカニズムを基礎的な観点から明らかにしつつ、その知見を踏まえた上で物質に任意の機能性を付加する計算科学的観点に立った指導原理を見出すことが必須である。

本研究課題では、光と物質が露に相互作用した結果生じる光・電子機能性を持った、従前のデバイスとは異なる次世代量子デバイスを理論的に設計することを最終目的とする。より具体的には、金属や半導体、有機分子で構成される高次構造を持った実在系ナノ構造体の実時間・実空間光励起電子ダイナミクスの第一原理計算を行い、光・電子機能発現のメカニズムを根源から理解するとともに、光エネルギー伝搬、波長変換素子、高効率・広帯域光エネルギー変化デバイス（太陽電池・光触媒）等の光・電子機能を持つ新規量子デバイスを計算により提案し設計するための基礎理的知見を得ることを目指す。この目的達成のためには、第一に電子と電磁場の露なカップリングを取り扱う為のナノ光応答理論の開発、第二にその理論に基づく超並列大規模電子・電磁場ダイナミクス法プログラムの開発、第三に電子・電磁場ダイナミクス法を用いて数～数十 nm サイズ程度の実在系ナノ構造体における光励起電子ダイナミクスの第一原理計算を実行しなければならない。既に第一、第二課題までは順調に進んでおり、プログラムの更なる超並列化と高速化を行うと同時に、実在系量子デバイス設計のプロダクトランにも着手し始めた。

計算手法としては、時間依存コーンシャム方程式を実空間グリッド上で差分法を使って直接解き、時間発展はテーラー展開を採用した。いずれも非常に簡便なアルゴリズムであり、一般的な量子化学計算やバンド計算で用いられる固有値対角化や高速フーリエ変換等の計算負荷が大きくかつ超並列化計算に必ずしも向いていないアルゴリズムが一切含まれていない。このため、非常に超並列化に向いており、現状で数～十数 nm 程度のナノ構造体の光励起電子ダイナミクスの計算が可能となっている。このサイズの光励起電子ダイナミクスの第一原理計算を実行できるグループは世界的に見ても極めて少ない。この超並列プログラムは、GCEED(Grid-based Coupled Electron and Electromagnetic field Dynamics)と称して開発を進めている[1]。

当日は、金属と半導体から構成されるコアシェル型ナノ構造体の光励起ダイナミクスや回折限界を超えた近接場光励起ダイナミクスの実例を紹介する。

文献

[1] M. Noda, K. Ishimura, K. Nobusada, K. Yabana, T. Boku; submitted to J. Comput. Phys.