

# 博士論文概要

## 論文題目

量子場に閉じ込められた少数電子系の  
電子相関と動力学に関する理論的研究  
Theoretical Study on Electron Correlation  
and Dynamics for Multi-Electron  
Confined in Quantum System

申請者

奥西	拓馬
Takuma	OKUNISHI

電気・情報生命専攻 量子材料学研究

2011 年 12 月

(受理申請する部科主任会開催年月を記入)

数ナノから数十ナノサイズの半導体微細領域に閉じ込められた電子は、バルクでの連続準位とは異なり、閉じ込め方向に対して量子化された離散エネルギー準位を持つようになる。こうした量子化を引き起こす量子閉じ込め場においては、閉じ込めの次元や幾何学的形状、またはサイズによって、電子のエネルギー状態が劇的に変化する。例えば閉じ込め幅を小さくすることで、電子の基底エネルギーは上昇し、準位間隔は広がる。この効果は一般に量子サイズ効果と呼ばれ、例えば量子閉じ込め場固有の光吸収スペクトルとして反映される。量子閉じ込め場は、量子サイズ効果に起因する多くの量子力学的現象が出現する対象である。単電子トランジスタ、量子ドットレーザー、量子ビット等に代表される、量子効果の工学的応用による次世代の電子デバイス開発は、微細加工技術の発展に伴い、昨今の注目される研究分野の一つである。

量子閉じ込め場中の電子状態に関する理論的及び計算科学的研究は、これまで多くの先駆的研究が報告されている。しかしながらその多くは、静的定常状態に対する考察である。一方、電子波の伝播や、時間変遷する外場との相互作用効果を考えた場合、時間発展をする電子系の動力学に対する考察は必須であり、それを直接的かつ直観的に具現化した数値解が求められている。こうした背景から本研究では、時間依存シュレディンガー方程式の数値解法を通し、電子系の時間発展に伴い出現する新奇量子力学的現象の理論予測とその解明を行った。理論解析の過程では、複雑な系に対する数値演算法を開発・実行するのと同時に、系の物理現象を抽出したモデル系を準備し、その解析解と比較することにより、新奇現象の理論的解釈に務めた。本論文は序論とした第 1 章、種々の前提を述べた第 2 章を含め、全 6 章から成る。以下、第 3 章以降について各章の概要を記す。

第 3 章では時間依存シュレディンガー方程式の種々の数値解法の長短を整理し、量子閉じ込め場での数値計算に最適なアルゴリズムを探索した。本研究では時間依存シュレディンガー方程式の数値解法を行うことで、電子系の波動関数を実時間の中で数値発展させる。このため得られた解には、直観的解釈が可能である。さらに言えばこの方法は、有効ハミルトニアンが持つ高次の情報を直接扱うことが可能な、非常に優れた手法である。その一方で、対象系に応じて大きな計算コストを要するために、その歴史的背景は比較的新しく、今現在に至っても開発・試行が続く分野である。各方法論の違いは、時間推進演算子の波動関数への演算アルゴリズムに起因する。本章で取り上げた手法は、波動関数の経時変化を逐次的に解析するに適していると考えられる、(1) 2 次精度差分法、(2) 指数積分法、(3) 短反復ランチョス法の 3 種である。これらの比較により、実時間・実空間差分近似にて計算を行う場合は、トロッター分解とケーリー法を併用した (2) の方法が、計算時間と計算精度のバランスに優れていることを評価し、本研究における主要な数値演算法として採用した。一方で (3) の方法は、適用可能な計算空間を実空間に限定しない汎用性の高い方法であり、大きな計算時間を必要とするものの、非常に優れた計算精度を有している。このため、電子相関を扱うためにより精度が求められる第 6 章では、この方法を採用している。

単電子の時間発展を検討する系として量子リングに着目し、その解析結果を第 4 章に記載する。量子リングはその特徴的な幾何学的対称性から、従来注目されている系である。例えばメゾスコピックサイズを有する量子リングでの、リングを垂直に貫くベクトルポテンシャルと波動関数の相互作用 (AB 効果) や、ナノサイズの量子リングでの軌道角運動量と電子スピンとの相互作用 (スピン軌道相互作用)

等、これまで多くの研究が為されている。これらの量子効果はいずれも、量子リングの周回角度方向への全対称性に起因するものである。一方、観測行為そのものが系の対称性を本質的に低下させ、幾何学的対称性に基づく量子効果の抽出に影響を及ぼす場合が出現する。本研究では電子波束の共鳴トンネリングに伴う量子準位間干渉効果と、これにより誘起される磁場に着目した。量子リングに電子波束の出入口として導波路を接続した場合、系全体としての点群対称性は、孤立状態の全対称から、2回軸対称へと低下する。孤立した量子リングは回転対称性の要請から多くの二重縮退軌道を有すが、観測に伴う対称性の低下により、系内全ての縮退が解ける。これら縮退の分裂幅は小さく、擬縮退状態を保持するが、各軌道はそれぞれ異なった軌道対称性（偶奇性）を有する。従って、通常の導波路を用いた電子注入では、この擬縮退軌道の内の偶奇性が一致する軌道を介してのみ共鳴を生じて、量子リングを通過する（非干渉共鳴トンネリング）。しかしながら本研究では、人為的に制御した導波路を用意することにより、敢えて対称性を低下させた電子波束を打ち込む事で、偶奇両方の擬縮退軌道を通過する共鳴トンネリングが可能であることを、初めて見出した。さらにこの共鳴過程においては、エネルギーの異なる複数状態の同時存在により、量子リング内で干渉が起こることを理論的に明らかにした。この波動関数の干渉は、角運動量期待値の振動現象として出現するため、振動磁場として観測されることが期待される。本研究では、二準位モデルを用いて振動現象を単純化し、その振動解析を行った、さらに、外部静磁場の印加による共鳴トンネリングの変調についても検討を行った。その結果、静磁場の印加強度の可変により、量子リング内電子密度の回転方向が状態間干渉により可変される、全く新しい物理現象を見出すことに成功した。静磁場は一軸方向に無限回転対称性を与える外場であり、観測のために結合された導波路による対称性低下を回復する役割を持ち得る。さらに軌道角運動量の正負で軌道分裂を促進するため、外部磁場による電子制御にも一案を与えるものと考えられる。

一方、量子場に閉じ込められた複数電子に関しては、その電子相関の影響は甚大である。第 5 章には従来の数値計算法を用いた際の電子相関の扱いの難しさと、新たに開発した電子相関の取扱い方法の詳細を纏めた。量子ドットは人工原子と比喻されるように、内部に閉じ込められた電子がシェル構造と呼ばれる電子状態を有する。この原子に良く似た電子状態により、計算科学の立場からは、非制限ハートリーフォック（UHF）法やスピン密度汎関数理論等、平均場近似に基づくアプローチが多く用いられてきた。しかしこれら平均場での取り扱いは、電子間相互作用が強く表れる系で実験結果を正確に説明することが難しいという点が、予てより指摘されている。とりわけ、電子相関の効果が相対的に強い影響力を持つ量子閉じ込め場系では、平均場近似を超えた電子間相互作用の取り扱いが求められている。その理由は、内部の実効的な電子密度が低いため、強い電子相関の影響によって電子がウィグナー局在を起こすとの予想にある。閉じ込め場内での電子が、ウィグナー分子と呼ばれる強相関状態を形成することで、単純な一電子軌道での電子状態解釈が困難となるのである。電子相関を直接取り込む計算法として、厳密対角化法を用いた研究も報告されているが、多電子シュレディンガー方程式を直接対角化するという性質上、電子数が増えるにつれて多大な計算コストを必要とする難しさを併せ持つ。本研究ではこの問題に対して、UHF 法により求められた複数の自己無撞着（scf）解に着目し、これらの量子力学的相互作用として電子相関の効果を取り入れる新たな方法を提案し、量子閉じ込め場中の電子相関を検討した。具体的な計算対象系は、4 回回転軸対称を有する正方量子ドットとし、シングレットスピン相関を有した

二電子とした。変分原理に基づき、UHF 法で求められる二電子の scf 解には、閉じ込め系が大きくなるにつれ、幾何形状に由来する等価な“置き方”（空間配座）が同時解として出現した。このような場合の UHF scf 解には、近似法に起因する電子相関の欠落により、対象ハミルトニアンの特称性が消失している。本研究では、配置間相互作用の基底として UHF scf 解を参照し、真の二電子状態を探索する新しい方法論（共鳴 UHF 法）を展開した。この共鳴 UHF 法では、電子相関を UHF scf 解の間での共鳴として捉えることにより、非常に少数の基底でも十分な精度で、系の電子相関の記述が可能である。加えて、本共鳴 UHF 法と従来の励起配座との配置間相互作用を組み合わせた方法によって、厳密対角化法に匹敵する精度の解を与えることに成功した。

さて、全ての実験においては、系に対して外部から電子を注入しなければならず、その初期時点においてはいかなる場合も電子は系の非固有状態である。一電子非固有状態の時間発展は、多くの教科書でその詳細な記述が為されているが、多電子系に対する検討は皆無である。その理由は、多電子系では固有状態それ自身を算出する一般則がなく、その決定が極めて困難な為である。第 6 章では、第 5 章にて提案・開発した共鳴 UHF 法を時間発展方程式へ組み込んだ、全く新たな方法論を展開して、非固有状態を初期配座とした複数電子系の動力学を第一原理的に解明した。具体的には、時間依存波動関数を UHF scf 解で線形展開することにより、時間依存シュレディンガー方程式を、UHF scf 解に対する展開係数の時間発展方程式へと変換した。その結果、一電子非固有状態で明らかとなっている電子状態の時空的変遷が、複数電子系でも同様に生じていることを、本方法で数値的に実証することに成功した。とりわけ、固有関数展開では解析不能な密度の揺らぎに対して、その空間的ゆらぎが UHF scf 解間の遷移として捉えられることを初めて明らかにした。共鳴 UHF 法に基づく電子相関の見積りにより、例えば正方量子ドットにおける非固有状態の時間発展は、本系で扱った 9 個の UHF scf 解を用いることで、8 割もの電子相関エネルギーを取り込んだ議論が可能である。

以上要約する。まず本研究では、種々の時間依存シュレディンガー方程式の数値解法の比較検討を行い、その長短を整理し、量子閉じ込め場に対して最適な数値演算法を選択した。続いて、選択した数値演算法を量子リングにおける電子波束の共鳴トンネル過程に適用した結果、共鳴状態間相互作用が新奇な量子現象を生み出すことを初めて理論的に見出した。また電子相関を扱う方法として新たに共鳴 UHF 法を提案・開発し、配置間相互作用の方法と組み合わせる事により、量子閉じ込め場における電子相関を見通し良く、かつ非常に高精度に取り扱うことに成功した。さらにこの共鳴 UHF 法を時間依存問題へ拡張し、量子閉じ込め場において非定常状態から開始される二電子系の動力学を初めて理論的に明らかにした。特に本研究を通じて開発した共鳴 UHF 法並びにその時間発展方程式は、特徴的な幾何形状を有す量子閉じ込め場において、非常に優れた精度で電子相関を扱う、新しい方法である。これらは、今後の電子状態理論ならびにそれに基づく計算物質探索分野において、極めて有力な手法となることが期待できるばかりでなく、従来未開拓の電子相関の第一原理動力学的考察の指針を与えるものとなる。

## 早稲田大学 博士（工学） 学位申請 研究業績書

氏名 奥西 拓馬 印

(2012年2月 現在)

種 類 別	題名、 発表・発行掲載誌名、 発表・発行年月、 連名者（申請者含む）
論文 ○	<p><u>Takuma Okunishi</u> and Kyozauro Takeda: “Resonating UHF Study on Electron Correlation in a Ground State of Two Electrons Confined in 2D Quantum Dot”, 2011 Material Research Society Fall Meeting proceedings, RR4.9. (掲載決定)</p> <p>Yhuki Negishi, Masamu Ishizuki, <u>Takuma Okunishi</u>, and Kyozauro Takeda: “Ground state instability in spin polarization for electrons confined in 2D square quantum dots”, Jpn. J. Appl. Phys. <b>50</b> (2011) 085001.</p> <p>Kouta Sugiyama, <u>Takuma Okunishi</u>, Masakazu Muraguchi, and Kyozauro Takeda: “Electron resonant tunneling through a circle—ring multicomponent quantum system”, Phys. Rev. B <b>81</b> (2010) 115309.</p>
○	<p><u>Takuma Okunishi</u>, Yuki Negishi, Masakazu Muraguchi, and Kyozauro Takeda: “Resonating Hartree-Fock Approach for Electron Confined in Two Dimensional Square Quantum Dots”, Jpn. J. Appl. Phys, <b>48</b> (2009) 125002.</p> <p>Masakazu Muraguchi, Kenji Shiraishi, <u>Takuma Okunishi</u>, and Kyozauro Takeda: “Theoretical Study of the Time-Dependent Phenomenon of Photon-Assisted Tunneling through a Charged Quantum Dot”, J. Phys.: Condens. Matter <b>21</b> (2009) 064230.</p>
○	<p><u>Takuma Okunishi</u>, Yusuke Ohtsuka, Masakazu Muraguchi, and Kyozauro Takeda: “Interstate interference of electron wave packet tunneling through a quantum ring”, Phys. Rev. B <b>75</b> (2007) 245314.</p>
講演 国際会議	<p><u>Takuma Okunishi</u> and Kyozauro Takeda: “Resonating UHF Study on Electron Correlation in a Ground State of Two Electrons Confined in 2D Quantum Dot”, 2011 Material Research Society Fall Meeting, Hynes Convention Center, Boston, USA, November 28- December 2 (2011) RR4.9.</p> <p><u>Takuma Okunishi</u>, Atsushi Tsubaki, Tomoki Tagawa, and Kyozauro Takeda: “Vacillation in density of correlated electron-electron pair confined in 2D quantum dot”, American Physical Society March Meeting 2011, Dallas Convention Center, Dallas, USA, March 21-25 (2011) K1.00054.</p>

## 早稲田大学 博士（工学） 学位申請 研究業績書

種 類 別	題名、 発表・発行掲載誌名、 発表・発行年月、 連名者（申請者含む）
講演 国内学会	<p><u>Takuma Okunishi</u>, Yuki Negishi, Masakazu Muraguchi, and Kyozaaburo Takeda:  “Numerical estimate for correlation energy of two electrons confined in 2D quantum dot”, American Physical Society March Meeting 2008, Morial Convention Center, New Orleans, USA, March 11-14 (2008) Y28.00009.</p>
	<p><u>Takuma Okunishi</u>, Masakazu Muraguchi, and Kyozaaburo Takeda:  “Orbital Interference of an Electron Wave Packet Tunneling through 2D Quantum Ring”, International Conference on Quantum Simulators and Design 2006, Hiroshima University, Japan, December 3-5 (2006) P-53.</p>
	<p>根岸 佑樹、<u>奥西 拓馬</u>、武田 京三郎:  “2次元量子閉じこめ場における二電子基底状態とその電子相関”, 日本物理学会 秋季大会、2008年9月20日～23日、岩手大学上田キャンパス、20aYF-4.</p>
	<p>杉山 功太、<u>奥西 拓馬</u>、木下 健志、武田 京三郎:  “円ーリング複合型量子ドットにおける電子状態とその時間発展”, 日本物理学会 第62回年次大会、2007年9月21日～24日、北海道大学札幌キャンパス、24pTG-9.</p>
	<p>木下 健志、<u>奥西 拓馬</u>、杉山 功太、武田 京三郎:  “非対称形状をもつ量子ドットに於ける共鳴トンネリングの透過過程”, 日本物理学会 第62回年次大会、2007年9月21日～24日、北海道大学札幌キャンパス、21aRJ-7.</p>
	<p><u>奥西 拓馬</u>、村口 正和、武田 京三郎:  “荷電された量子リングでの電子波束の共鳴トンネル”, 日本物理学会 春季大会、2007年3月18日～21日、鹿児島大学郡元キャンパス、19pRC-8.</p>
	<p>村口 正和、<u>奥西 拓馬</u>、武田 京三郎:  “荷電された量子ドットに入射した電子波束の光支援トンネリング”, 日本物理学会 春季大会、2007年3月18日～21日、鹿児島大学郡元キャンパス、19aTA-6.</p>
	<p><u>奥西 拓馬</u>、村口 正和、武田 京三郎:  “量子リング内へ入射された1電子および2電子波束の動的過程”, 日本物理学会 秋季大会、2006年9月23日～26日、千葉大学、23pXL-9.</p>