

博士論文

計算科学的手法を用いた量子閉じこめ場内  
電子波束の動力学に関する研究

Computational Approach on Dynamics of  
an Electron Wave Packet Propagating through  
Quantum Confined Systems

2007 年 3 月

早稲田大学大学院 理工学研究科  
環境資源及材料理工学専攻 物質材料理工学専門分野  
量子材料学研究室

村口 正和



# 目次

第 1 章	序論	1
1.1	研究の背景	1
1.2	本論文の構成	4
第 2 章	数値計算法	6
2.1	時間依存シュレディンガー方程式の数値解法	6
2.1.1	形式解の導出	6
2.1.2	実空間基底	7
2.1.3	演算子の指数積分解法 (Split Operator Method) を用いた時間発展計算	7
2.1.4	諸量の定義	15
2.1.5	空間刻み及び時間刻みと電子波動関数の振動数について	15
2.1.6	精度の検証と手法の比較	16
2.2	実空間差分を用いた固有状態の計算	21
2.2.1	一次元に対する解法	22
2.2.2	二次元に対する解法	22
2.3	結論	23
第 3 章	静電ポテンシャル場中電子波束の運動	24
3.1	波束の基本的性質と物理描像	24
3.1.1	波束の表式と性質	24
3.1.2	波束の物理的意味	28
3.2	透過率と透過波の波数分布	28
3.2.1	階段型ポテンシャル場における波束の運動	28
3.2.2	箱形ポテンシャル場における波束の運動	33
3.3	古典軌道との対比	36
3.3.1	一様磁場下における荷電粒子の古典軌道	36
3.3.2	一様磁場下における電子波束の運動	38
3.3.3	楕円型ポテンシャル場における電子波束の動力学	41
3.4	波束の共鳴トンネリングと共鳴状態寿命	47
3.4.1	二重障壁ポテンシャル場における波束の透過率	47
3.4.2	二重障壁ポテンシャル場における電子の共鳴状態寿命	49
3.5	結論	52
第 4 章	動的ポテンシャル場における量子的に閉じ込められた電子の動力学	54

4.1	電子-光子相互作用と二準位系の時間発展	54
4.1.1	電気双極子近似の下でのハミルトニアン	55
4.1.2	電気双極子近似の下での二準位系の時間発展	58
4.1.3	二準位系への回転波近似の適用	59
4.1.4	数値解による二準位系の時間発展解析	65
4.1.5	三準位の定式化と $N$ 準位への拡張	67
4.1.6	Floquet 状態から見た電子-光子相互作用	68
4.1.7	二準位系 Floquet 状態	77
4.1.8	三準位系における Quasienergy 演算子の行列表示と $N$ 準位までの拡張	80
4.2	実空間差分法を用いた波動関数の時間発展計算	81
4.2.1	系の設定と時間依存シュレディンガー方程式の数値解法	81
4.2.2	物理量の時間発展	82
4.2.3	射影を用いた解析	85
4.3	結論	88
第 5 章	光支援トンネリング	90
5.1	従来の研究と検討課題	90
5.2	系の設定と計算条件	91
5.3	二次元菱形量子ドットにおける電子波束の共鳴トンネリング	92
5.3.1	確率密度の時間発展と共鳴状態寿命	94
5.3.2	透過波の波数分布解析	96
5.4	二次元菱形量子ドットにおける電子波束の光支援トンネリング	97
5.4.1	射影を用いた解析	97
5.4.2	有効寿命の変調	98
5.4.3	擬暗状態	101
5.4.4	波数分布解析	102
5.5	結論	103
第 6 章	総括	105
付録 A	数値計算アルゴリズム	109
A.1	二次精度差分法	109
A.2	Chevyshev 多項式展開法	110
A.3	Short Iterative Lanczos 法	111
A.4	高速フーリエ変換と組み合わせた演算子の指数積分解法	113
付録 B	静電量子レンズ	114
B.1	静電量子レンズによる電子波束の収束性制御	114
B.1.1	電子波の屈折	114
B.1.2	数値計算による屈折描像の解析	117
B.1.3	静電量子レンズの設計	121
B.1.4	静電量子レンズにおける電子波束の運動	124
B.1.5	傾斜型ポテンシャルによるレンズ性能の改善	126

---

付録 C	Lanczos 法を用いた大行列の対角化	130
付録 D	Dressed 状態	133
付録 E	現象論的解析による共鳴状態寿命の検討	136
付録 F	有効原子単位	139
参考文献		141
謝辞		143
研究業績		144

# 第 1 章

## 序論

### 1.1 研究の背景

近年、フェムト秒レーザーの開発、微細構造の作製、その他多くの実験技術の進展により、光学、物理化学、固体物理など多くの領域で量子力学における時間依存問題が盛んに研究されるようになってきた。このような隆盛の背景にはここ数年めざましい勢いで発展しているナノテクノロジーがある。ナノテクノロジーという言葉が何を意味するのかについては諸説あるが、ナノスケールの物質に特徴的な物性を利用したシステムの構築であるといっている間違った見方はないであろう。ナノスケールが物質においてどのようなサイズであるか具体的に考えてみるとそれはわずかに数十から数百個の原子・分子によって構成される  $10^{-7}\text{m} \sim 10^{-9}\text{m}$  程度の大きさであり、我々の日常的な大きさ（マクロ系）に比べ格段に微細であることがわかる。固体物理の分野からいえば、これはこの 20 年ほどで急速に進展してきた「メゾスコピック系」の物理の適用される領域であるといえる。このナノスケールの系では、もはや電子波の波長が物質のサイズ程度となるため、電子波そのものが系と可干渉となり、物質が必然的に持つ波動性と粒子性が各々の現象に特徴的な形をとって姿を現しはじめる。これらの特徴的な量子効果を積極的に使ったデバイスの作製こそが固体物理の立場からのナノテクノロジーの実現であると言える。

量子効果デバイスの実現には、ナノサイズの微細構造中に運動する電子の状態制御が求められる。実際、微細構造へ外場を印加することにより電子の運動を変調する試みが多くなされている。その際、時間依存外場により励起された電子は短時間でその状態を大きく変化させるため、その運動を制御するためには系の時間発展の理解に基づいた物質設計が不可欠となる。しかしながら多くの量子系においてはその運動に関する方程式を解析的に解くことは出来ず、これが時間依存問題に対する研究の妨げとなってきた。ところが近年のコンピューター技術の発達と新たな数値計算法の開発によりこれらの時間依存問題に対する研究が可能となりつつある。本研究ではこの点に着目し、量子系の時間発展を計算科学的手法を用いて検討し、特に実際の物理的現象への適用を通して手法の開発と同時に物理現象の探求を行うことを主目的とした。具体的には量子ナノ構造中を外場と相互作用しながら伝搬する電子の時間発展問題へ着目し、その動力学の理論的解明を行い、外場を用いた電子状態制御とナノ量子構造の物質設計への指針を与えることを目指し研究を行った。荷電担体の動力学に対する第一原理時間発展計算を用いた研究は、世界的に見てもまだアルゴリズムの開発に主な力点が置かれており、実際の物理的現象への適用は極めて少ないのが現状である。そのため物質探索と構造設計を意図した本研究は非常に意義深いものであると考えている。

#### 量子閉じこめ場の作成と量子効果デバイスへ向けた課題

本研究では二次元電子ガス系に着目し、その系内を伝搬する電子の動力学を計算科学的手法を用いて研究する。二次元電子ガス系とは、異なるバンドギャップを持つ半導体を接合することでその界面に電子を集め、電子の空間的自由度を二次元的に制限し閉じ込めた系である。そのキャリア濃度は外部からの電場印加などにより  $10^8$  個/cm<sup>2</sup> 程度にまで減少させることが可能であり、電子の平均自由行程が大変長い状態が実現される。近年ではこのような系へ微

細加工を施すことで電子の自由度をさらに制限し、電荷を微小な半導体小片へ閉じ込めることが盛んに試みられている。これらの構造は閉じ込め場の空間的自由度の程度に応じて量子井戸、量子細線、量子ドットと呼ばれる。閉じ込められた電子は原子・分子と同様に離散化固有状態を持ち、マクロな系では見られなかった様々な量子効果を発現することが明らかとなってきた。それは例えば共鳴トンネリングや量子化コンダクタンスなどであり、科学的観点から非常に興味深いのみならず、単電子トランジスタ、レーザー素子、量子演算素子などの量子効果デバイスへの工学的応用が期待されている。その際重要となるのが量子効果を発現するための量子状態制御である。とりわけ量子閉じこめされた荷電担体と時間依存した外場との相互作用を通してデバイス動作を具現化する系では、量子状態の時間発展の解明が不可欠となる。

#### 時間発展計算の利点と従来研究

時間発展を評価するためのアプローチは大きく分けて二つある。ひとつは固有状態からのアプローチである。いくつかの亜種が存在するが、基本的にはどの方法も、時間に依存しないシュレディンガー方程式から系の固有状態を求め、それに摂動論を組み合わせ系の時間発展を議論している。これらはそれぞれの摂動の効果を明示的に取り込むために見通しがよく従来からよく用いられている手法であるが、摂動論を用いて時間発展を扱うため強電場や強磁場による電子波の変調が生み出す種々の高次の相互作用や長時間の時間発展の議論が困難という問題を内在している。

もうひとつのアプローチとしては時間依存シュレディンガー方程式を直接数値積分することで、波動関数の時間発展を初期値問題として扱う方法がある。この方法は実時間で各時刻の波動関数を逐次的に見ることが出来るため、系の時間発展を直感的に理解しやすいという特徴を持つ。また、直接解法であるということに起因して、ハミルトニアンに表現された情報が摂動論を用いることなく近似なしにそのまま波動関数の時間発展として取り込まれるという利点もある。これによって従来の固有状態からのアプローチでは困難であった高次の効果をも自然に取り込むことが可能となり得る。これらの点を踏まえて、本研究では後者の手法を採用し、量子閉じこめ場中の電子波の時間発展を初期値問題としてとり扱うことで、その動力学的理論的解明を行った。

時間依存シュレディンガー方程式を初期値問題として解くための原初的アルゴリズムは古くは1960年代まで遡ることが可能であり、現在に至るまでいくつかの方法論が提案されている。その中で実空間格子点を基底として用いた計算法はMcCloughらにより初めて提案された<sup>3)</sup>。彼らは有限差分法を用いて計算を行ったが、運動エネルギー項の算出には熱伝導などの放物型微分方程式によく使用されていたCrank-Nicholson(CN)法を用いている。続いて、より少ない計算量で時間発展計算を実現するためにAskerらは二次精度の差分表式を提案した<sup>4)</sup>。さらに運動エネルギー演算子を計算する際に高速フーリエ変換を用いる方法がFeitらによって提案され<sup>5)</sup>、Kosloffらによって改良された<sup>6)</sup>。これらの提案を基礎として、様々な時間推進演算子を近似する計算法の提案がなされた。Askerらの表式を発展させた二次精度の有限差分法<sup>7)</sup>、Kosloffらによるチェビシェフ多項式を用いて時間推進演算子を展開する方法<sup>6)</sup>、Lanczos法を用いて演算子を縮約して解く方法<sup>8)</sup>、演算子を指数積へ分解する方法<sup>10)</sup>などがあり、それぞれに多くの亜種も存在する。その中で我々はWatanabeらによって提案された解法を採用した<sup>10),11)</sup>。この方法は演算子の指数積分解法とCayley形式を組み合わせ演算子を実空間で作用させるものであり、高精度で効率のよい計算が可能であることが示されている。第2章ではこの解法の導入と他の方法との比較検討を行い、続く第3～5章で実際の系への適用した結果を議論する。

#### 半導体ナノ構造中を伝搬する電子波の動力学

量子閉じこめ場を運動する電子に作用する力としては、図1.1に示すように静的あるいは動的なスカラーポテンシャル場、および静的あるいは動的なベクトルポテンシャル場が考えられるが、これらのポテンシャル場を組み合わせることにより電子の運動を人為的に制御することが量子デバイスの設計では不可欠となる。

まず電子が感じる力として量子構造を構成する静的スカラーポテンシャル場が考えられる。これは量子ドットや量子井戸などの人工的に作成されたポテンシャル場ばかりでなく、外部印加されたバイアスなどによるものである場合

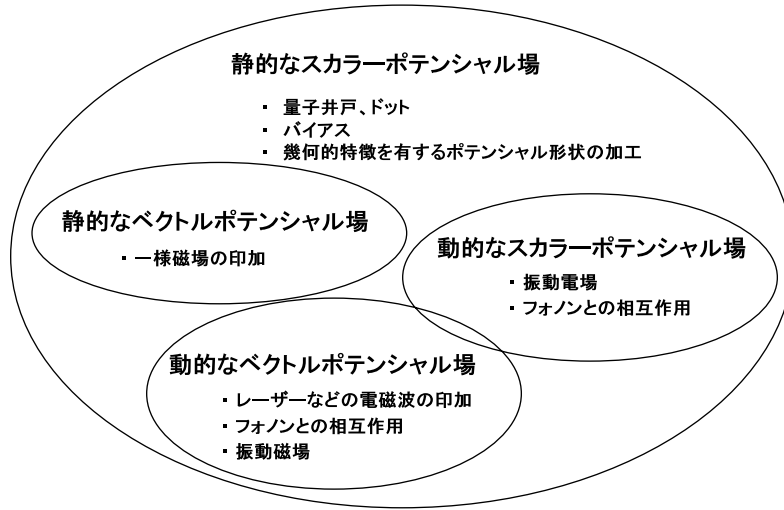


図 1.1 半導体ナノ構造中を伝搬する電子が受ける外力

も考えられ、電子の運動の舞台を与える。このような静的なポテンシャル場中を運動する電子に対して、さらなる外場を印加することでその運動を制御する試みが多く為されている。例えば、一様磁場の印加による電子波の運動制御は静的ベクトルポテンシャル場を用いた電子状態制御の代表的な例である。電子の運動面に対して垂直に一様磁場を印加することにより、電子波はローレンツ力を受け、自由空間であればサイクロトロン運動を起こすが、さらに電子の量子閉じこめ場による運動の制限と組み合わせることで量子ホール効果などの様々な特異な運動を生じる。

動的な外場による変調の試みも為されはじめている。最も多く用いられるのがレーザーやマイクロ波などの電磁波であり、その照射による電子状態の変調と光学応答が理論、実験両面から検討されている。これらは電子の動力学の立場からは動的ベクトルポテンシャル場中での運動と捉えることが出来る。また、フォノンとの相互作用、振動電場、さらには電子間相互作用下での運動などは動的なスカラーポテンシャル場中の運動という枠組みから見る事が出来るであろう。

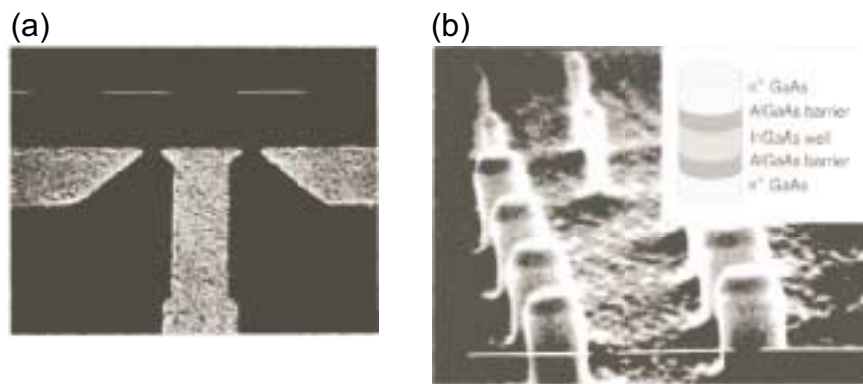


図 1.2 半導体ナノ構造を利用した量子効果デバイス。(a)Reed らによって作成された量子ドット。彼らは量子ドットにおける電流電圧特性の測定を行った<sup>1)</sup>。(b)van Houten らによるサイクロトロン運動を利用したバリステック電子の運動制御<sup>2)</sup>

代表的な実験例を図 1.2 に引用した。例えば図 1.2(a) は弾道的な電子の運動に対して一様磁場を印加することによる電子波の収束性制御の実験であり、これは静的ベクトルポテンシャル場を用いた電子状態制御の代表的な例であ



る。一方、図 1.2(b) は Reed らによって作成された半導体量子ドットである。これは幾何的形狀の制限による電子の固有状態制御という意味で静的ポテンシャル場を用いた電子状態制御である。これらの量子ドットへさらに電磁波を照射し電子状態を動的に制御することで、その光応答の研究と同時にレーザー発振や量子ビットへの応用も試みられている。

初期値問題に対する解析法、検討課題 本研究の検討課題について述べる。系の時間発展を初期値問題として評価する場合、計算の結果得られる各時刻の波動関数およびそれに伴う物理量の時間変化に対するデータは膨大なものとなる。これは時間発展計算の利点であるが、反面、現象の解析にとっては難点となる。この問題に対して、本研究では各時刻に得られた波動関数を系の特徴的な種々の状態へ射影する方法論を提案し、かつその適用を行った。特徴的な状態としては、量子閉じこめ場の静的固有状態および周期的な外場によって生じた時間方向への結晶状態 (Floquet 状態) を取り上げた。各状態への射影を行うことにより、外場と相互作用した電子がどのような内部状態の変化を伴って時間発展していくのか、それがまた物理量や現象にどのように寄与していくのか、直感的に追尾可能となる。さらに、固有状態と初期値問題それぞれの立場から得られる電子波の動力学に対する知見の整合性を検討することも重要である。従来の研究が与えた結果に対して、波動関数の時間発展を初期値問題として扱った結果がどのように位置づけられるのかを探索することで、我々の方法論の特徴をより明確化出来ると考えられる。これらの点を踏まえて、実際の物理的現象への適用を行う。静的なポテンシャル場中の動力学として簡単なポテンシャル場に対する電子波束の運動を、動的なポテンシャル場として量子閉じ込められた電子の電磁場との相互作用による光学過程を検討し、最終的には両者の複合系である光支援トンネリングの解析を行う。これらの系への適用を通して、時間依存問題を扱うための解析手法の確立を行い、同時に物理描像を明らかにすることが本研究の中心課題である。

## 1.2 本論文の構成

第2章では時間依存シュレディンガー方程式の数値解法について述べる。本研究で採用した実空間基底の特徴について論じ、続いて時間推進演算子の波動関数への作用を数値的に近似する4種類のアルゴリズムの比較を行う。その中で指数積分法による時間発展計算が汎用性と精度の点で優れていることを述べ、様々なハミルトニアンに対する指数積分法の適用について検討する。また時間に依存しないシュレディンガー方程式の実空間基底を用いた行列表示についても述べる。

第3章では静的なポテンシャル場中における電子波束の運動について述べる。波束の時間発展の検討を通して、数値計算によって得られる結果の解析法を検討する。まず、半導体ナノ構造による電子の閉じこめを想定し簡単な静的ポテンシャル場に対する波束の透過率および透過波の波数分布を検討する。数値計算の結果得られた波動関数および物理量を固有状態からのアプローチによる結果と比較することで両者の関係を明らかにし、その中で波動関数の時間発展を初期値問題として扱う際のデータの解析方法について検討を行う。続いて、古典軌道との対比から電子波伝搬過程を解析する。一様磁場を印加した系における、電子波束の重心位置の軌跡と荷電粒子に対する古典軌道との比較を行い、両者の関係を明確化することで、エネルギー間隔の狭い、連続に近い状態を持つ系における解析法を確立し、さらに楕円型ポテンシャル場における電子波束の動力学解析へ発展させた。その中で、楕円型ポテンシャル場の幾何的形狀を利用した電子波の収束性を議論し、楕円の形狀を表す量として長軸と短軸の比を用いる事で、楕円のサイズおよび形狀が電子波束の運動に与える影響を議論する。その結果、電子波束の収束性はポテンシャル場と電子波の初期条件によって決まる干渉のために強調される場合があることを見出し、幾何的形狀を利用して電子波束の収束性を判断するには注意が必要であることを明らかにする。さらに少数の固有状態を介した伝導の代表例である共鳴トンネリングの検討を行う。電子の共鳴状態の減衰時間から有効共鳴状態寿命を定義することで、波束の初期幅や初期位置にほとんど依存しない量の抽出を行い、電子波束の運動を通した共鳴状態寿命の定量的解析法を提案する。

第4章では動的なポテンシャル場中に対する閉じ込められた電子の応答について議論する。量子的に閉じこめられ

た電子と外部から印加された電磁波との相互作用に対する一般的描像を半古典近似の観点から俯瞰した後、数値計算結果の解析を行う。電磁場の印加された量子井戸における電子の時間発展計算を電気双極子近似の下で行い、得られた結果を二準位近似との整合性およびその限界点に焦点を当てて検討する。系の時間発展を初期値問題として評価する場合には計算の結果得られるデータは膨大なものとなり、その解析は困難であった。この問題に対して、本研究では各時刻に得られた波動関数を系の特徴的な種々の状態へ射影する方法論を提案し、かつその適用を行った。特徴的な状態として量子閉じこめ場の静的固有状態および周期的な外場によって生じた時間方向への結晶状態 (Floquet 状態) を取り上げ各状態への射影を行い、電磁場と相互作用した電子がどのような内部状態の変化を伴い時間発展していくのかを逐次的に解析した。その結果、多準位が関与した種々の高次の相互作用を含む時間発展の時系列を追った解析に、射影法による解析が非常に有効であることを明らかとする。

第5章では時間依存シュレディンガー方程式の数値解法を光支援トンネリングへ適用し、その解析を行っている。光支援トンネリングは電子波の共鳴トンネル現象と電子-光子相互作用の組み合わせによって生じる現象であり、電子が有限の共鳴状態寿命の間に外部から照射された電磁場による変調を受けながら伝搬するという点で、波動関数の時間依存性が本質的に重要な系である。従来の研究ではトンネルハミルトニアンを用いた定性的議論や有効一次元モデルを用いた近似計算が主であったが、本研究ではより現実に近い二次元の自由度を系に与えることにより、伝導に対し垂直方向の自由度も考慮に入れた定量的な計算を行った。その結果、量子ドットと伝導路との間の遷移の選択則および電磁場の偏光方向が電子波の透過過程の制御にとって重要となることを見出した。さらに電子波のトンネリングにおける共鳴状態寿命が振動外場との相互作用による状態間遷移により変調される点にも着目した。この寿命の変調現象に対して、第4章で導入する射影法を用いることで解析を行い、振動場の周波数、強度に対する共鳴状態寿命を定量的に議論した。その中で、ドット内部で電子-光子相互作用による共鳴的遷移が生じた場合、共鳴状態の有効寿命は各共鳴状態に対する時間的な占有割合の重ね合わせとして決定され、それに伴い大きな寿命変調が起こることを見出した。さらに電場強度、周波数の変化に対して、共鳴状態寿命は非線形な関係となることを見出した。量子ドット内における電子の Rabi 振動の時間周期と共鳴状態の有効寿命との間には密接な関係があることを明示し、電子寿命の効率的変調には Rabi 振動の周期を規定する電場強度の決定が必要であることを見出した。最後に二次元の自由度を利用した、系の対称性と光電場の偏光方向を組み合わせた電子波の閉じこめを提案し、数値計算の実行によりその実現可能性を検証する。

第6章では本研究の総括を行う。また時間発展計算の手法及び実際の問題への適用に対して残された課題と将来の展望について述べる。

## 第 2 章

# 数値計算法

### 2.1 時間依存シュレディンガー方程式の数値解法

本章では時間依存シュレディンガー方程式の数値解法について述べる。本研究で採用した Cayley 形式と指数積分解法を組み合わせた数値解法の導入を行い、様々なポテンシャル場におけるハミルトニアンに対する指数積分解法の適用について検討する。さらに計算法の特徴を抽出するため、他の計算アルゴリズムとの比較を行い、その中で指数積分解法による時間発展計算が汎用性と精度を兼ね備えている点で半導体ナノ構造中を伝搬する電子の動力学を扱うのに適した方法であることを述べる。最後に実空間基底を用いた時間に依存しないシュレディンガー方程式の行列表示を示し、固有状態に対する数値解法の道筋を与える。

#### 2.1.1 形式解の導出

時間を含むシュレディンガー方程式

$$i\hbar \frac{\partial}{\partial t} \psi(\mathbf{r}, t) = H\psi(\mathbf{r}, t) \quad (2.1)$$

を形式的に解くことを考える。ここでハミルトニアンは時間に依存しないとする。無限小の時間を  $\Delta t$  とし、時間に対する微分を定義通りに書くと

$$i\hbar \frac{\psi(\mathbf{r}, t + \Delta t) - \psi(\mathbf{r}, t)}{\Delta t} = H\psi(\mathbf{r}, t) \quad (2.2)$$

となる。これを時刻  $t + \Delta t$  の波動関数について解くと、

$$\begin{aligned} \psi(\mathbf{r}, t + \Delta t) &= \psi(\mathbf{r}, t) + \frac{1}{i\hbar} H\Delta t \psi(\mathbf{r}, t) \\ &= (I + \frac{1}{i\hbar} H\Delta t) \psi(\mathbf{r}, t) \end{aligned} \quad (2.3)$$

を得る。さらに時刻  $t + \Delta t$  から時刻  $t + 2\Delta t$  の波動関数を求めることを考えると

$$\psi(\mathbf{r}, t + 2\Delta t) = (I + \frac{1}{i\hbar} H\Delta t)^2 \psi(\mathbf{r}, t) \quad (2.4)$$

となり、この操作を繰り返して次々と新しい時間の波動関数を求めていくと、時刻  $t + N\Delta t$  の波動関数は、

$$\psi(\mathbf{r}, t + N\Delta t) = (I + \frac{1}{i\hbar} H\Delta t)^N \psi(\mathbf{r}, t) \quad (2.5)$$

となる。 $\Delta t = T/N$  において分割数  $N$  を大きくした  $\Delta t \rightarrow 0$  の極限を取ると、

$$\lim_{N \rightarrow \infty} (I + X/N)^N = \exp X \quad (2.6)$$

であることを利用して、以下のような時刻  $T$  の正確な波動関数を得るための表式を得ることができる。

$$\psi(\mathbf{r}, t+T) = \exp\left(\frac{1}{i\hbar}HT\right)\psi(\mathbf{r}, t) \quad (2.7)$$

これはある時刻  $t$  の波動関数に時間推進演算子  $\exp(\frac{1}{i\hbar}HT)$  が作用することで時刻  $t+T$  の波動関数が求まるという形である。

ここで時刻  $t+T$  の波動関数を求めるためには時間推進演算子を時刻  $t$  の波動関数に作用させなくてはならないが、これは指数の肩に演算子を持つ指数演算子であるのでこのままでは作用させることが出来ない。この時間推進演算子をどれだけ適切な形で数値的に近似して波動関数に作用させることができるかが数値計算のポイントとなる。主な計算アルゴリズムとその特徴を表にまとめた。

表 2.1 主な計算方法とその特徴。SOD は二次精度の差分 (Second Order Difference)、SPO は演算子の指数積分分解法と Cayley 形式の組み合わせによる解法 (Split Operator Method)、CH は Chebychev 多項式展開法、SIL は Short Iterative Lanczos 法をあらわす。

アルゴリズム	Norm	安定性
SOD	保存しない	条件付き安定
SPO	保存	無条件安定
CH	保存しない	条件付き安定
SIL	保存	無条件安定

ここで挙げたアルゴリズムはいずれも時間方向の精度を上げるためのアルゴリズムであり、波動関数をどのように表現するか (何を基底として表現するか) まず定める必要がある。空間方向の精度については、ハミルトニアンに含まれるそれぞれの演算子に応じて、その都度考える必要がある。

### 2.1.2 実空間基底

半導体ナノ構造中を伝搬する電子波は、様々な外場による散乱によって局在した状態から系全体へ広がった状態までを時間と共に移り変わることが期待される。このような波動関数を表現するためには原子や分子の基底関数や平面波による展開よりも実空間の各点を基底とした表現を用いた方が有利であると考え、本研究では実空間格子点を基底とした計算を採用した。本研究では実空間を格子で区切り、その各点を基底として波動関数を以下のように表現する (図 2.1 も参照)。

$$\psi(x) \rightarrow \psi(x_i) \quad x_i = i \times \Delta x \quad i = 0, \dots, N \quad (2.8)$$

ここでは  $x$  方向のみを示したが、 $y, z$  方向についても同様に実空間格子を用いて波動関数を表現する。ただし、格子の軸は直交座標系をとった。これは次で述べる指数積分分解法を効果的に使うためである。ここで提示したように、本研究では有限差分法を用いて実時間、実空間で数値計算を行うが、その際、空間と時間それぞれへの差分の刻み幅の選び方を考慮しなくてはならない。空間方向のみ精度を上げて、時間軸に対する精度が不十分では満足の行く結果を得られないし、その逆もまた真である。空間方向に対する差分の精度は二次精度とした。これについては後述する。

### 2.1.3 演算子の指数積分分解法 (Split Operator Method) を用いた時間発展計算

すでに述べたように時間発展に対する数値解法については様々な提案がなされているが、その中で本研究では時間推進演算子の指数積分分解法を用いた数値計算法を採用した。この方法は、その名の通り時間推進演算子を指数積分

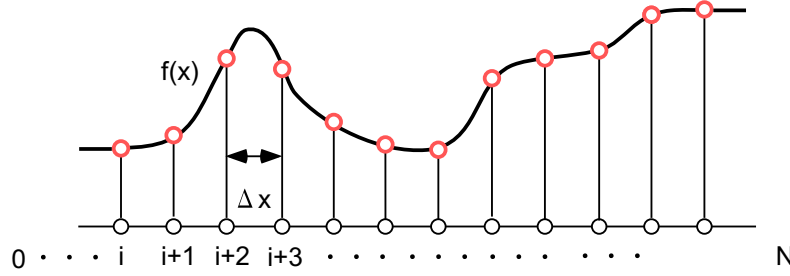


図 2.1 実空間差分の模式図。

解し、波動関数に順々に作用させることでその時間発展を計算していく計算手法である。静的な電磁ポテンシャル場や時間に依存した外場が作用している場合などそれぞれに対するハミルトニアンについて、Suzuki によって提案された演算子の指数積分分解を適用することで計算を行う<sup>(13), (14)</sup>。また分解されたそれぞれの指数演算子の計算およびその分解法との組み合わせについては Watanabe らによる論文を基礎とした<sup>(10), (11)</sup>。ここでは指数積分分解法について述べ、続く節で他の方法との比較を行うことで、この計算法の特徴を抽出する。

### 一次元自由空間

一次元の自由空間中を運動する一電子の運動を考える。このときハミルトニアンは

$$H = -\frac{\hbar^2}{2m} \frac{\partial^2}{\partial x^2} \quad (2.9)$$

で与えられ、シュレディンガー方程式は

$$i\hbar \frac{\partial \psi(x, t)}{\partial t} = H\psi(x, t) \quad (2.10)$$

とあらわされる。すでに述べたように、上の式の形式解は

$$\psi(x, t + \Delta t) = \exp\left(\frac{1}{i\hbar} H \Delta t\right) \psi(x, t) \quad (2.11)$$

で与えられる。ただしここで  $\Delta t$  は時間の刻み幅をあらわす。

ここで指数演算子を

$$\exp\left(\frac{1}{i\hbar} H \Delta t\right) \simeq \frac{1 + \frac{1}{i\hbar} \frac{\Delta t}{2} H}{1 - \frac{1}{i\hbar} \frac{\Delta t}{2} H} \quad (2.12)$$

と Cayley 形式で置き換えて計算を行う。この置き換えはシュレディンガー方程式の右边を時刻  $t$  と  $t + \Delta t$  との平均

$$H\psi(t) = \frac{1}{2}(H\psi(t + \Delta t) + H\psi(t)) \quad (2.13)$$

と似たことに相当し、これは拡散方程式などの放物型微分方程式の数値解法によく用いられる CN 法と同じ形を与える。式を変形すると

$$\left[1 - \frac{1}{i\hbar} \frac{\Delta t}{2} H\right] \psi(x, t + \Delta t) = \left[1 + \frac{1}{i\hbar} \frac{\Delta t}{2} H\right] \psi(x, t) \quad (2.14)$$

を得るが、ここでハミルトニアンの具体的表式を与えると、上の式は

$$\left[1 + \frac{1}{i\hbar} \frac{\Delta t}{2} \frac{\hbar^2}{2m} \nabla^2\right] \psi(x, t + \Delta t) = \left[1 - \frac{1}{i\hbar} \frac{\Delta t}{2} \frac{\hbar^2}{2m} \nabla^2\right] \psi(x, t) \quad (2.15)$$

で与えられる。

次に、波動関数を実空間の格子点を基底として表示し、行列表示を行うことを考える。すでに述べたように波動関数は実空間で以下のように差分化されている。

$$\psi_i(t) = \psi(x_i, t), \quad x_i = i \times \Delta x, \quad i = 0, 1, \dots, N \quad (2.16)$$

ここで空間に対する二回微分を中心差分

$$-\frac{\hbar^2}{2m} \frac{\partial^2}{\partial x^2} \psi(x, t) = -\frac{\hbar^2}{2m} \frac{\psi(x + \Delta x, t) - 2\psi(x, t) + \psi(x - \Delta x, t)}{\Delta x^2} \quad (2.17)$$

によって近似し、差分化した上の方程式を行列表示すると以下のような表式を得る。

$$\begin{aligned} & \begin{bmatrix} A & -1 & & \\ -1 & A & -1 & O \\ & \ddots & \ddots & \ddots \\ & O & -1 & A & -1 \\ & & & -1 & A \end{bmatrix} \begin{bmatrix} \psi_1(t + \Delta t) \\ \psi_2(t + \Delta t) \\ \psi_3(t + \Delta t) \\ \vdots \\ \psi_N(t + \Delta t) \end{bmatrix} \\ &= \begin{bmatrix} B & 1 & & \\ 1 & B & 1 & O \\ & \ddots & \ddots & \ddots \\ & O & -1 & B & 1 \\ & & & 1 & B \end{bmatrix} \begin{bmatrix} \psi_1(t) \\ \psi_2(t) \\ \psi_3(t) \\ \vdots \\ \psi_N(t) \end{bmatrix} \end{aligned} \quad (2.18)$$

ただし、A,B はそれぞれ

$$A = -4i \frac{\hbar}{m} \frac{\Delta x^2}{\Delta t} + 2, \quad B = -4i \frac{\hbar}{m} \frac{\Delta x^2}{\Delta t} - 2 \quad (2.19)$$

をあらわす。上の表式から時刻  $t$  の波動関数  $\psi(x, t)$  を用いて時刻  $t + \Delta t$  の波動関数  $\psi(x, t + \Delta t)$  を求めるためには、左辺の逆行列を求める必要がある。これは一見すると非常に計算時間がかかりそうであるが、しかし行列の形をみるとこれは非常に疎な行列であり、LU 分解を用いることで、大幅に計算コストを削減することができる。具体的には左辺の行列を以下のような形に LU 分解する。

$$\begin{aligned} & \begin{bmatrix} A & -1 & & \\ -1 & A & -1 & O \\ & \ddots & \ddots & \ddots \\ & O & -1 & A & -1 \\ & & & -1 & A \end{bmatrix} \\ &= \begin{bmatrix} u_1^{-1} & & & & \\ -1 & u_2^{-1} & & & O \\ & \ddots & \ddots & & \\ & & -1 & u_{N-1}^{-1} & \\ O & & & -1 & u_N^{-1} \end{bmatrix} \begin{bmatrix} 1 & -u_1 & & & O \\ & 1 & -u_2 & & \\ & & \ddots & \ddots & \\ O & & & 1 & -u_{N-1} \\ & & & & 1 \end{bmatrix} \end{aligned} \quad (2.20)$$

ただし、

$$u_i = 1/(A - u_{i-1}), \quad u_0 = 0 \quad (2.21)$$

である。また右辺はすでに既知であり、

$$\begin{bmatrix} B & 1 & & \\ 1 & B & 1 & O \\ & \ddots & \ddots & \ddots \\ & O & 1 & B & 1 \\ & & & 1 & B \end{bmatrix} \begin{bmatrix} \psi_1(t) \\ \psi_2(t) \\ \psi_3(t) \\ \vdots \\ \psi_N(t) \end{bmatrix} = \begin{bmatrix} b_1(t) \\ b_2(t) \\ b_3(t) \\ \vdots \\ b_N(t) \end{bmatrix} \quad (2.22)$$

ただし、

$$b_i(t) = \psi_{i-1}(t) + B\psi_i(t) + \psi_{i+1}(t) \quad (2.23)$$

である。

計算手順を示す。まずはじめに

$$\begin{bmatrix} \psi'_1 \\ \psi'_2 \\ \psi'_3 \\ \vdots \\ \psi'_N \end{bmatrix} = \begin{bmatrix} 1 & -u_1 & & & O \\ & 1 & -u_2 & & \\ & & \ddots & \ddots & \\ & O & & 1 & -u_{N-1} \\ & & & & 1 \end{bmatrix} \begin{bmatrix} \psi_1(t + \Delta t) \\ \psi_2(t + \Delta t) \\ \psi_3(t + \Delta t) \\ \vdots \\ \psi_N(t + \Delta t) \end{bmatrix} \quad (2.24)$$

とにおいて、

$$\begin{bmatrix} u_1^{-1} & & & & \\ -1 & u_2^{-1} & & & O \\ & \ddots & \ddots & & \\ & & -1 & u_{N-1}^{-1} & \\ O & & & -1 & u_N^{-1} \end{bmatrix} \begin{bmatrix} \psi'_1 \\ \psi'_2 \\ \psi'_3 \\ \vdots \\ \psi'_N \end{bmatrix} = \begin{bmatrix} b_1(t) \\ b_2(t) \\ b_3(t) \\ \vdots \\ b_N(t) \end{bmatrix} \quad (2.25)$$

を解くことを考える。するとこの計算は前進代入によって、簡単に計算することができる。

$$\psi'_1 = u_1 b_1 \quad (2.26)$$

$$\psi'_i = (b_i + \psi'_{i-1})u_i, \quad i = 2, \dots, N \quad (2.27)$$

$\psi'$  が決まったので、次に

$$\begin{bmatrix} 1 & -u_1 & & & O \\ & 1 & -u_2 & & \\ & & \ddots & \ddots & \\ & O & & 1 & -u_{N-1} \\ & & & & 1 \end{bmatrix} \begin{bmatrix} \psi_1(t + \Delta t) \\ \psi_2(t + \Delta t) \\ \psi_3(t + \Delta t) \\ \vdots \\ \psi_N(t + \Delta t) \end{bmatrix} = \begin{bmatrix} \psi'_1 \\ \psi'_2 \\ \psi'_3 \\ \vdots \\ \psi'_N \end{bmatrix} \quad (2.28)$$

を後退代入によって解くことで、時刻  $t + \Delta t$  の波動関数を計算することができる。後退代入は以下のように行う。

$$\psi_N(x, t + \Delta t) = \psi'_N \quad (2.29)$$

$$\psi_j(x, t + \Delta t) = \psi'_j + u_j \psi_{j+1}(x, t + \Delta t), \quad j = N-1, \dots, 1 \quad (2.30)$$

以上の操作を繰り返すことで波動関数の時間発展を計算することができる。また Cayley 形式で近似した時間推進演算子はユニタリーであるため、この計算法はノルムを保存した計算であり、系全体の電子の存在確率が保存されるとい物理描像を正しく表すことができる。

## 二次元自由空間

演算子の指数積分解法は多次元へ容易に拡張することが出来るという利点を持つ。次に二次元の自由空間に対する時間発展計算法について述べる。二次元の自由空間における一電子ハミルトニアンは

$$H = -\frac{\hbar^2}{2m} \left( \frac{\partial^2}{\partial x^2} + \frac{\partial^2}{\partial y^2} \right) \quad (2.31)$$

と与えられ、このとき時間依存シュレディンガー方程式の形式解は

$$\psi(x, y, t + \Delta t) = \exp[i\Delta t \frac{\hbar}{2m} (\frac{\partial^2}{\partial x^2} + \frac{\partial^2}{\partial y^2})] \psi(x, y, t) \quad (2.32)$$

となる。ここでそれぞれの微分演算子は交換可能であるため、上の指数演算子は以下のような指数演算子の積として分解することが出来る。

$$\psi(x, y, t + \Delta t) = \exp[i\Delta t(\frac{\hbar}{2m} \frac{\partial^2}{\partial x^2})] \exp[i\Delta t(\frac{\hbar}{2m} \frac{\partial^2}{\partial y^2})] \psi(x, y, t) \quad (2.33)$$

それぞれの演算子に対して Cayley 形式を適用することで

$$\psi(x, y, t + \Delta t) = \frac{1 + i\hbar\Delta t\partial_x^2/4m}{1 - i\hbar\Delta t\partial_x^2/4m} \frac{1 + i\hbar\Delta t\partial_y^2/4m}{1 - i\hbar\Delta t\partial_y^2/4m} \psi(x, y, t) \quad (2.34)$$

と近似する。ただし  $\frac{\partial^2}{\partial x^2}$  を  $\partial_x^2$  と略記した。それぞれの演算子に対する数値計算方法は一次元で述べたのと全く同じに実行することが出来る。まず波動関数に対して  $y$  方向への時間発展を行い、続いて得られた波動関数に対して  $x$  方向への時間発展を行うことで新たな時刻  $t + \Delta t$  の波動関数が得られる。この方法を用いると、多次元の電子波動関数の時間発展をそれぞれの次元の方向について一次的に順番に実行するだけで求められるため、大きな行列計算を行わなくてよいという利点がある。ここでは二次元の場合を例にとったが三次元の場合も全く同様に解くことが出来る。

#### 静的スカラーポテンシャル場

次に外場として静的なスカラーポテンシャルを含む系に対する時間依存シュレディンガー方程式の解法について述べる。次元は何次元でもかまわないがここでは二次元を例にとって説明をすすめる。

ハミルトニアンは

$$H = -\frac{\hbar^2}{2m} \left( \frac{\partial^2}{\partial x^2} + \frac{\partial^2}{\partial y^2} \right) + V(x, y) \quad (2.35)$$

で与えられ、このとき形式解は

$$\psi(x, y, t + \Delta t) = \exp \left[ i\Delta t \left( \frac{\hbar}{2m} \nabla^2 \right) - i\frac{\Delta t}{\hbar} V(x, y) \right] \psi(x, y, t) \quad (2.36)$$

とあらわされる。

数値計算を行うために先ほどと同様に指数演算子を指数積へ分解したいが、ポテンシャル項とラプラシアンは可換ではないため単純な分解は適用出来ない。我々はこれに対して Suzuki-Trotter 分解を適用し二次精度で分解を行った。

$$\begin{aligned} \psi(x, y, t + \Delta t) &= \exp[i(\frac{\Delta t}{2} \frac{\hbar}{2m} \frac{\partial^2}{\partial y^2})] \exp[i(\frac{\Delta t}{2} \frac{\hbar}{2m} \frac{\partial^2}{\partial x^2})] \\ &\times \exp[-i\Delta t \frac{V(r)}{\hbar}] \exp[i(\frac{\Delta t}{2} \frac{\hbar}{2m} \frac{\partial^2}{\partial x^2})] \exp[i(\frac{\Delta t}{2} \frac{\hbar}{2m} \frac{\partial^2}{\partial y^2})] \psi(x, y, t) \end{aligned} \quad (2.37)$$

このように分解した時間推進演算子を順々に元の時刻の波動関数へ作用させていくことで、新たな時刻の波動関数を求めることが出来る。数値計算法はラプラシアン部分についてはすでに示したとおり効率よく計算出来、またポテンシャル部分は波動関数の各格子点における値の位相を回転させるだけであるため容易に計算できる。また上の分解が二次精度であることも  $\exp[A + B]$  と  $\exp[A/2] \exp[B] \exp[A/2]$  をそれぞれテーラー展開して比較することで容易に確かめられる。このような対称分解を行うことで計算の安定性が格段に増すことが示されている。4次精度、6次精度への拡張も容易に行うことが出来、参考文献 [17] に詳しい記述がある。

各演算子は厳密にユニタリーであるが、エネルギーなどの諸量は実空間差分の細かさに応じて完全に保存はされない。しかし誤差は対称分解であることに起因して一気に発散することではなく、初期値の周りを振動する。条件を問題に即して適切に選ぶことでその誤差を許容出来る範囲に抑えることができる。これらについては後述する。



静的ベクトルポテンシャル場（ $z$  方向に垂直な一様磁場）

次に外場として静的なベクトルポテンシャル場が作用している系を考える。例として対称ゲージ

$$\mathbf{A} = (-By/2, Bx/2, 0) \quad (2.38)$$

を考える。これは

$$\mathbf{B} = \text{rot} \mathbf{A} = (0, 0, B) \quad (2.39)$$

を与え、 $z$  方向に一様な静磁場をあらわす。ただし、ここで  $\mathbf{B} = (B_x, B_y, B_z)$  は磁場を、 $\mathbf{A}$  はベクトルポテンシャルをあらわす。このようなポテンシャル場の下でのハミルトニアンは

$$H = \frac{1}{2}(\mathbf{p} + i\mathbf{A})^2 \quad (2.40)$$

$$= -\frac{1}{2} \left[ \left( \frac{\partial}{\partial x} - \frac{iBy}{2} \right)^2 + \left( \frac{\partial}{\partial y} + \frac{iBx}{2} \right)^2 \right] \quad (2.41)$$

と与えられる。ただし、記述を簡単にするために  $\hbar = 1, m = 1$  として式をあらわした。このハミルトニアンに対する時間推進演算子の二次精度の指数積分分解は

$$\exp \left[ i \frac{\Delta t}{2} \left( \frac{\partial}{\partial x} + iBy \right)^2 \right] = \exp[iBxy] \exp \left[ i \frac{\Delta t}{2} \frac{\partial}{\partial x} \right] \exp[-iBxy] \quad (2.42)$$

という関係を使って、展開することで

$$\begin{aligned} \psi(x, y, t + \Delta t) &= \exp[-i \frac{B}{2} xy] \exp \left[ i \frac{\Delta t}{4} \frac{\partial^2}{\partial y^2} \right] \exp \left[ i \frac{B}{2} xy \right] \\ &\quad \times \exp \left[ i \frac{B}{2} xy \right] \exp \left[ i \frac{\Delta t}{2} \frac{\partial^2}{\partial x^2} \right] \exp[-i \frac{B}{2} xy] \\ &\quad \times \exp[-i \frac{B}{2} xy] \exp \left[ i \frac{\Delta t}{4} \frac{\partial^2}{\partial y^2} \right] \exp[-i \frac{B}{2} xy] \psi(x, y, t) \end{aligned} \quad (2.43)$$

と与えられる。これが一様磁場下での定式化である。磁場を含む項の計算は前節のスカラーポテンシャル項と同様局所的な演算子であるので、実空間基底の各点に直接作用させることが出来る。他の項については前節までと同様に計算できる。

動的スカラーポテンシャル場

次にハミルトニアンが時間に依存する場合を考える。ここでは記述の簡単のために一次元の定式化を示す。また本節でも  $\hbar = 1, m = 1$  とした。時間に依存するシュレディンガー方程式を解くと波動関数の時間発展は形式的に

$$\psi(x, t + \Delta t) = \tilde{T} \exp \left[ -i \int_t^{t+\Delta t} H(x, t') dt' \right] \psi(x, t) \quad (2.44)$$

と与えられる。ただし  $\tilde{T}$  は時間順序演算子である。ここで  $V_{\text{stat}}$  を静的ポテンシャル、 $V_{\text{td}}$  を時間に依存する動的スカラーポテンシャルとして、ハミルトニアンを

$$H(x, t) = -\frac{1}{2} \frac{\partial^2}{\partial x^2} + V_{\text{stat}}(x) + V_{\text{td}}(x, t) \quad (2.45)$$

として指数積分分解を考える。

最も単純に数値解を求める場合には時間幅が十分に小さいとして、時間推進演算子を

$$\tilde{T} \exp \left[ -i \int_t^{t+\Delta t} H(x, t) dt \right] \simeq \exp[-iH(x, t)\Delta t] \quad (2.46)$$

と近似し、さらに時間順序のとれた指数演算子を適当な次数までテーラー展開することで計算を行えばよい。しかしながら、この方法では  $\Delta t$  を非常に小さくとらなくてはならず、計算時間がかかる上にノルムを保存しないため、扱える時間範囲も短くなってしまふ。

そこで我々は鈴木によって提案された分解法を用いて時間順序演算子付きの指数演算子を二次精度で分解した<sup>15)</sup>。

$$\begin{aligned} \tilde{T} \exp \left[ -i \int_t^{t+\Delta t} H(x, t) dt \right] &\simeq \exp \left[ i \frac{\Delta t}{2} \frac{1}{2} \frac{\partial^2}{\partial x^2} \right] \\ &\times \exp \left[ -i \Delta t \left\{ V_{\text{id}}(x, t + \frac{\Delta t}{2}) + V_{\text{stat}}(x) \right\} \right] \exp \left[ i \frac{\Delta t}{2} \frac{1}{2} \frac{\partial^2}{\partial x^2} \right] \end{aligned} \quad (2.47)$$

時間に依存したポテンシャル項の時刻が  $\frac{\Delta t}{2}$  だけ進んでいる点に注意が必要である。このように分解した演算子を順番に時刻  $t$  の波動関数に作用させることで次の時刻の波動関数を求めることができる。簡単な証明を下に載せた。詳細は文献 [15] を参照のこと。またここでは一次元の場合のみ示したが、前節における自由空間におけるラプラシアンを含む項に対する指数積分分解と組み合わせることで二次元、三次元の場合においても展開は容易である。

展開の方法 まず時間順序演算子  $\tilde{T}$  を用いてあらわされた時間推進演算子はそのままでは分解できないため、以下のような通常の指数演算子へ置き換えを行い、それから分解を行う。

$$\tilde{T} \left[ \exp \int_t^{t+\Delta t} A(s) ds \right] = \exp[\Delta t(A(t) + J)] \quad (2.48)$$

ここで  $J$  は右側にかかる変則的な演算子で

$$F(t) \exp[\Delta t J] G(t) = F(t + \Delta t) G(t) \quad (2.49)$$

$$J \equiv \overleftarrow{\frac{\partial}{\partial t}} \quad (2.50)$$

と定義される。これを使うことで上の分解を示すことができる。

$$\begin{aligned} \exp[\Delta t(A(t) + J)] &= \lim_{n \rightarrow \infty} \left[ \exp\left[\frac{\Delta t}{n} A(t)\right] \exp\left[\frac{\Delta t}{n} J\right] \right]^n \\ &= \lim_{n \rightarrow \infty} \exp\left[\frac{\Delta t}{n} A(t + \Delta t)\right] \cdots \exp\left[\frac{\Delta t}{n} A(t + \frac{2\Delta t}{n})\right] \exp\left[\frac{\Delta t}{n} A(t + \frac{\Delta t}{n})\right] \end{aligned} \quad (2.51)$$

である。ただし

$$\begin{aligned} \exp\left[\frac{\Delta t}{n} A(t + \frac{\Delta t}{n})\right] \exp\left[\frac{\Delta t}{n} A(t)\right] \exp\left[\frac{\Delta t}{n} J\right] \\ = \exp\left[\frac{\Delta t}{n} A(t + \frac{2\Delta t}{n})\right] \exp\left[\frac{\Delta t}{n} A(t + \frac{\Delta t}{n})\right] \end{aligned} \quad (2.52)$$

という関係を使った。これは式の両辺をテイラー展開してみると理解しやすい。以上から

$$\begin{aligned} \exp[\Delta t(A(t) + J)] \\ &= \lim_{n \rightarrow \infty} \exp \left[ \frac{\Delta t}{n} \left\{ A(t + \Delta t) + \cdots + A(t + \frac{2\Delta t}{n}) + A(t + \frac{\Delta t}{n}) \right\} \right] \\ &= \tilde{T} \left[ \exp \int_t^{t+\Delta t} A(s) ds \right] \end{aligned} \quad (2.53)$$

が得られる。このように置き換えられた指数演算子を二次精度で分解すると、

$$\begin{aligned} \exp[\Delta t(H(t) + J)] &= \exp\left[\frac{\Delta t}{2} \overleftarrow{\frac{\partial}{\partial t}}\right] \exp[-i \Delta t H(t)] \exp\left[\frac{\Delta t}{2} \overleftarrow{\frac{\partial}{\partial t}}\right] \\ &= \exp\left[-i \Delta t H(t + \frac{\Delta t}{2})\right] \end{aligned} \quad (2.54)$$

であることが示された。ここで

$$H(t + \frac{\Delta t}{2}) = -\frac{\Delta}{2} + V(x, t + \frac{\Delta t}{2}) \quad (2.55)$$

を代入してさらに二次精度の分解を行うと、結局

$$\begin{aligned} \tilde{T} \exp \left[ -i \int_t^{t+\Delta t} \left( -\frac{\Delta}{2} + V(x, t') \right) dt' \right] \psi(x, t) \\ \simeq \exp \left[ i \frac{\Delta t}{2} \frac{\Delta}{2} \right] \exp \left[ -i \Delta t V(x, t + \frac{\Delta t}{2}) \right] \exp \left[ i \frac{\Delta t}{2} \frac{\Delta}{2} \right] \psi(x, t) \end{aligned} \quad (2.56)$$

が得られ、最初の目的であった分解を示すことができた。分解の順番には任意性があることに注意が必要である。ラプラシアン項でポテンシャル項を挟んだ展開を書いたが、逆にポテンシャル項でラプラシアン項を挟む展開も同等に二次精度の分解を与える。

一様磁場と振動外場の組み合わせにおける指数積分分解

対称ゲージで表現した一様磁場と静的ポテンシャル場および動的スカラーポテンシャル場を組み合わせた系を考える。ただし、ここでも  $\hbar = 1$ ,  $m = 1$  とした。再びベクトルポテンシャル  $\mathbf{A} = (-By/2, Bx/2, 0)$  とすると、ハミルトニアンは

$$H = -\frac{1}{2} \left[ \left( \frac{\partial}{\partial x} - \frac{iBy}{2} \right)^2 + \left( \frac{\partial}{\partial y} + \frac{iBx}{2} \right)^2 \right] + V_{\text{stat}}(x, y) + V_{\text{td}}(x, y, t) \quad (2.57)$$

で与えられ、この系の時間発展は

$$\begin{aligned} \psi(x, y, t + \Delta t) &= T \exp \left[ -i \int_t^{t+\Delta t} H(x, y, t') dt' \right] \psi(x, y, t) \\ &= T \exp \left[ -i \int_t^{t+\Delta t} \left\{ -\frac{1}{2} \left[ \left( \frac{\partial}{\partial x} - \frac{iBy}{2} \right)^2 + \left( \frac{\partial}{\partial y} + \frac{iBx}{2} \right)^2 \right] \right. \right. \\ &\quad \left. \left. + V_{\text{stat}}(x, y) + V_{\text{td}}(x, y, t') \right\} dt' \right] \psi(x, y, t) \end{aligned} \quad (2.58)$$

とあらわされる。今までの方法を踏まえて時間推進演算子を二次精度で分解する。一見複雑であるが、基本的にはこままでの方法を踏まえた分解を組み合わせることで容易に分解できる。

$$\begin{aligned} \exp \left[ -i \Delta t \left\{ -\frac{1}{2} \left[ \left( \frac{\partial}{\partial x} - \frac{iBy}{2} \right)^2 + \left( \frac{\partial}{\partial y} + \frac{iBx}{2} \right)^2 \right] + V_{\text{ext}} \right\} \right] \\ = \exp \left[ i \frac{\Delta t}{4} \left( \frac{\partial}{\partial x} - iBy/2 \right)^2 \right] \exp \left[ i \frac{\Delta t}{4} \left( \frac{\partial}{\partial y} + iBx/2 \right)^2 \right] \exp \left[ -i \Delta t V(t + \Delta t/2) \right] \\ \times \exp \left[ i \frac{\Delta t}{4} \left( \frac{\partial}{\partial y} + iBx/2 \right)^2 \right] \exp \left[ i \frac{\Delta t}{4} \left( \frac{\partial}{\partial x} - iBy/2 \right)^2 \right] \end{aligned} \quad (2.59)$$

$$\begin{aligned} = \exp \left[ -i \frac{B}{2} xy \right] \exp \left[ i \frac{\Delta t}{4} \frac{\partial^2}{\partial x^2} \right] \exp \left[ i \frac{B}{2} xy \right] \\ \times \exp \left[ i \frac{B}{2} xy \right] \exp \left[ i \frac{\Delta t}{4} \frac{\partial^2}{\partial y^2} \right] \exp \left[ -i \frac{B}{2} xy \right] \exp \left[ -i \Delta t V(t + \Delta t/2) \right] \\ \times \exp \left[ -i \frac{B}{2} xy \right] \exp \left[ i \frac{\Delta t}{4} \frac{\partial^2}{\partial y^2} \right] \exp \left[ i \frac{B}{2} xy \right] \exp \left[ i \frac{B}{2} xy \right] \exp \left[ i \frac{\Delta t}{4} \frac{\partial^2}{\partial x^2} \right] \exp \left[ -i \frac{B}{2} xy \right] \end{aligned} \quad (2.60)$$

以上のようにして、一様磁場と振動電場が加わった場合の時間推進演算子の分解が与えられる。上の指数演算子のうち途中の磁場の項はまとめられるので、結局 13 項の指数演算子を順々に波動関数に作用させていくことで新たな時刻の波動関数を求めることが出来る。

## 2.1.4 諸量の定義

実空間で差分表示した波動関数に対する各物理量の定義を以下に示した。 $\Delta x \rightarrow 0$  の極限では連続系の定義と同一になる。

ノルム ノルムは一次元の場合

$$\text{Norm} = \sum_{i=1}^N \psi^*(x_i) \psi(x_i) \Delta x \quad (2.61)$$

を計算することで求める。二次元では  $\Delta x$  のかわりに  $(\Delta x)^2$ 、三次元であれば  $(\Delta x)^3$  が必要になる。一電子の時間発展においては計算の間この量が 1 に保たれていることが必要である。

続いて以下のように物理量を定義する。

エネルギー期待値

$$E(t) = \sum_{i=1}^N \left[ \psi_i^* \times \left( -\frac{\hbar^2}{2m} \frac{\psi_{i+1} - 2\psi_i + \psi_{i-1}}{\Delta x^2} + V_i \psi_i \right) \right] \Delta x^d \quad (2.62)$$

運動量期待値

$$\langle p(t) \rangle = \frac{\hbar}{2i} \sum_{i=1}^N \left[ \psi_i^*(t) \times \frac{\{\psi_{i+1}(t) - \psi_{i-1}(t)\}}{\Delta x} \right] \Delta x^d \quad (2.63)$$

位置の期待値

$$\langle x(t) \rangle = \sum_{i=1}^N x_i |\psi_i(t)|^2 \Delta x^d \quad x_i = i \times \Delta x \quad (2.64)$$

$y$  方向、 $z$  方向も同様である。

電気双極子モーメント 電気双極子モーメントは  $\mathbf{P} = e\mathbf{r}$  で定義され、これは位置の期待値と電荷との積である。

$$\mathbf{P} = e \langle \mathbf{r} \rangle \quad (2.65)$$

## 2.1.5 空間刻み及び時間刻みと電子波動関数の振動数について

時間と共に振動する波動関数を差分であらわすためにはその振動を空間、時間の両方について十分に表現できるような格子の切り方が重要である。ここでは Leforestier ら<sup>3)</sup> にならって空間の刻み幅で決まる振動数  $\omega_g$ 、時間の刻み幅で決まる振動数  $\omega_t$  を導入し、波動関数の持つ振動  $\omega_w$  との関係について考える。

与えた波動関数の最大振動数をあらわす振動数  $\omega_{max}$  波動関数に初期状態としてどのようなエネルギー分布を与えたか、さらに電子がどのようなポテンシャル場を運動するのかによってその振動数の範囲は決定される。波動関数の最大周波数を  $\omega_{max}$  とすると、数値計算における格子の切り方はこの最大周波数を表現できるような細かさになくなくてはならないことがわかる。実際には波束のような無限の振動数まで含むような波をあらわすことは不可能であるので、出来る限り誤差の少ないように格子の細かさを決める必要がある。波束に対しては中心波数の周波数  $\omega_0$  とその広がり幅  $d$  を用いて有効な  $\omega_{max}$  を定めることが差分の刻み幅を決める上でひとつの目安となる。また束縛状態に対してはあらかじめエネルギーの取りうる範囲を見積もり、刻み幅を決める必要がある。そのためには  $\omega_{max}$  と以下で定義する空間の刻み幅で決まる振動数  $\omega_g$  および時間の刻み幅で決まる振動数  $\omega_t$  との間の関係を常に考えながら系の設定を行わなければならない。

空間の刻み幅で決まる振動数  $\omega_g$  実空間を差分で表示した際にどれだけ細かく格子を切るかによって表現可能な波動関数の振動数が決定される。その範囲は空間刻み幅を  $\Delta x$  として

$$\omega_g = \pm \frac{1}{2\Delta x} \quad (2.66)$$

であらわされる。

空間方向の振動数を波数に対する条件に書き直すと  $2\pi \times \omega = k$  であるから

$$k_g = \pm \frac{2\pi}{2\Delta x} = \pm \frac{\pi}{\Delta x} \quad (2.67)$$

となる。

時間の刻み幅で決まる振動数  $\omega_t$  時間方向に対する周波数の最大値は時間刻みの幅によって決まり、 $N_t$  を時間  $t$  の間に演算子を作用させる回数とすると

$$\omega_t = \frac{N_t}{t} = \frac{1}{\Delta t} \quad (2.68)$$

である。ただし  $t$  は数値計算を行う実時間である。本研究では  $\Delta t$  は計算の間に変化させず一定値である。

振動数の比と望ましい系の設定について これらの周波数と実際に計算機に乗せたい周波数  $\omega_w$  との関係を表す量を両者の比として

$$\eta_g = \frac{\omega_{max}}{\omega_g} \quad (2.69)$$

$$\eta_{tg} = \frac{\omega_g}{\omega_t} \quad (2.70)$$

$$\eta_{tw} = \frac{\omega_{max}}{\omega_t} \quad (2.71)$$

と定義する。これらの  $\eta$  それぞれが 1 よりも小さい値であれば意図したエネルギー範囲での波動関数の時間発展が計算可能ということになる。

**ノルム保存と計算精度** 波動関数の時間発展を見ていくためには、粒子数保存という観点から計算アルゴリズムはノルムを保存するものであることが要求される。しかしここで注意すべき点はノルムの保存ということと計算精度ということ別であるということである。ノルムを保存する計算であっても空間刻み、時間刻みが不十分であれば、その結果得られる精度は不十分なものとなることに常に留意すべきである。

### 2.1.6 精度の検証と手法の比較

ここでは時間発展を計算する 4 種類の計算法を比較することで我々の採用した Suzuki-Trotter 型の指数積分分解法の特徴と利点を明らかにする。二次精度差分法 (Second Order Difference, SOD)、Cayley 形式と組み合わせた指数積分分解法 (Split Operator Method, SPO)、チェビシェフ多項式法 (Chevychev Polynominal Expansion, CH)、Short Iterative Lanczos 法 (SIL) の 4 つの計算方法を実空間格子に対する計算へ適用し、放物型ポテンシャル場、及びポテンシャル変調を受けた放物型ポテンシャル場における電子の時間発展を評価した。ただし、SPO 法以外の計算手法の詳細については付録 A に載せた。具体的には時間発展における物理量の誤差 (強度誤差)、波動関数の位相誤差をそれぞれの場合で評価し、誤差の蓄積を調べた。

強度誤差の見積もり（分散） 解析的に求めた波束の分散  $\sigma_{\text{exact}}$  と数値計算によって求めた波動関数の分散  $\sigma_{\text{num}}$  との差を各時刻でとり、誤差率を求めることで誤差の蓄積の様子を調べた。分散は

$$\sigma = \langle x^2 \rangle - \langle x \rangle^2 \quad (2.72)$$

を各時刻に計算することで求め、また誤差率を

$$\text{error}(\sigma) = \frac{|\sigma_{\text{exact}} - \sigma_{\text{num}}|}{\sigma_{\text{exact}}} \quad (2.73)$$

によって定義した。

位相誤差の見積もり（内積の定義） 解析的に求めた波動関数  $\psi_{\text{exact}}$  と数値計算によって求めた波動関数  $\psi_{\text{num}}$  の内積を各時刻でとることにより位相誤差を見積もる。内積は

$$C(t) = \sum_i \psi_{\text{exact}}^*(x_i, t) \psi_{\text{num}}(x_i, t) \Delta x_i \quad (2.74)$$

と定義した。位相誤差は波動関数を空間部分と時間に依存する位相部分に分けるとよりわかりやすい。

$$\psi_{\text{num}} = \phi_{\text{num}} \exp(-i\omega_{\text{num}}t) \quad (2.75)$$

$$\psi_{\text{exact}} = \phi_{\text{exact}} \exp(-i\omega_{\text{exact}}t) \quad (2.76)$$

とすると上で定義した内積  $C(t)$  は

$$C(t) = \sum_i \psi_{\text{exact}}^*(x_i, t) \psi_{\text{num}}(x_i, t) \Delta x_i \quad (2.77)$$

$$= \exp[i(\omega_{\text{exact}} - \omega_{\text{num}})t] \sum_i \phi_{\text{exact}}^*(x_i, t) \phi_{\text{num}}(x_i, t) dx_i \quad (2.78)$$

であり、位相誤差が  $(\omega_{\text{exact}} - \omega_{\text{num}})t$  であるとして内積値  $C(t)$  における実数部、虚数部の回転としてあらわれることがわかる。（もしも誤差がなければ位相項は打ち消しあってゼロになる。）この位相誤差を複素平面における回転角  $\text{error}(\theta)$  rad であらわし評価を行った。

放物型ポテンシャル場に束縛された電子の時間発展

一次元放物型ポテンシャル場に束縛された電子の時間発展を上記 4 種の計算法を用いて計算し、それぞれの結果を厳密解と比較することで、計算精度、計算時間を比較し誤差の蓄積や計算法の特徴を調べた。放物型ポテンシャル場に対するハミルトニアンを

$$H = -\frac{\hbar^2}{2m} \frac{\partial^2}{\partial x^2} + \frac{1}{2}\omega_0^2 x^2 \quad (2.79)$$

と与えた。計算条件は  $\omega_0^2 = 0.25$  で、波動関数の初期条件を量子数  $n = 5$  の固有状態とし、上で定義した位相誤差、強度誤差を 100 a.u. までそれぞれの手法で計算し調べた。波動関数を表現するための空間刻みの数  $N = 256$ 、刻み幅を  $\Delta x = 1/4$  a.u. と選び、また時間の刻み幅を  $\Delta t = 1/256$  a.u. とした。（ハミルトニアンを作用させる回数は 100 a.u. までで 25600 回となる。）この計算条件を先ほどの振動数の条件に当てはめると  $|\omega_w| = \pm 0.179$  に対して  $|\omega_g| = 4.0$ ,  $|\omega_D| = 32.0$  であり、上で定義した  $\eta$  はどの場合も 1 より十分小さくなっている。

結果を図 2.2、図 2.3 にまとめた。ただし、CH 法は多項式の次数を 16000 次まで取っており、また SIL 法は Lanczos 三重対角行列を 6 次までとった場合の結果である。分散、位相誤差ともに SIL 法と CH 法が他の方法と比べて高精度の計算であることがわかる。実際、100 a.u. までの計算誤差は位相誤差、分散誤差ともに  $10^{13}$  のオーダーであり、非常に優れていることがわかる。ただしこれら二つともに他の二種の計算法と同様、位相誤差が指数的に蓄

積していくことが明らかとなった。CH 法は原理的に誤差の蓄積しない計算であるので本来このような結果は予想していなかった。ここで考えられるのは実空間で Chebyshev 多項式の展開を行ったことによる微分の誤差が高次の次数に対する係数へ蓄積したということであるがこれについては、詳細な検討が必要である。

計算時間を比較すると  $SOD < SPO < CH < SIL$  の順であるという結果が得られた。SOD, SPO 法と比べて CH, SIL 法は数倍から数十倍の計算時間が必要であった。また、計算時間は同じ時間刻み幅で比較を行ったが、実際の問題へ適用するには SOD 法に比べて SPO 法における時間刻みを 10 倍程度大きく取ることが出来、その意味では SOD 法よりも SPO 法の方が速いということがいえる。

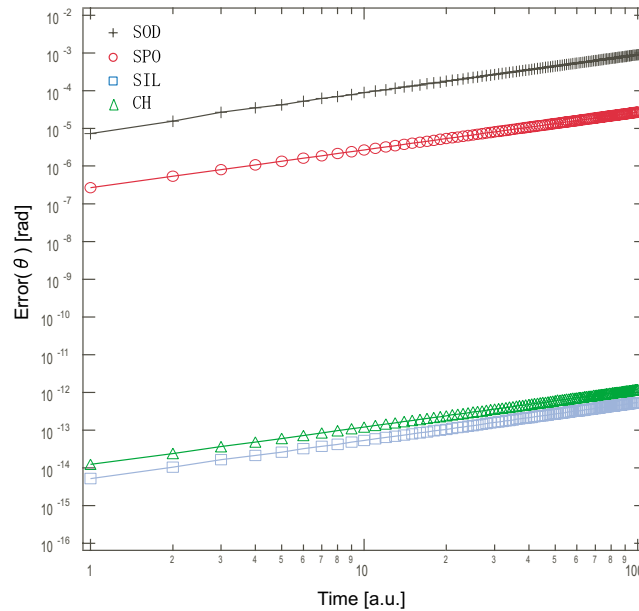


図 2.2 SPO, SOD, SIL, CH 法による放物型ポテンシャル場における固有状態の時間に対する位相誤差。ただし  $\Delta t/\Delta x^2 = 0.0625$  とし、放物型ポテンシャル場の固有状態は  $n = 5$  をとした。

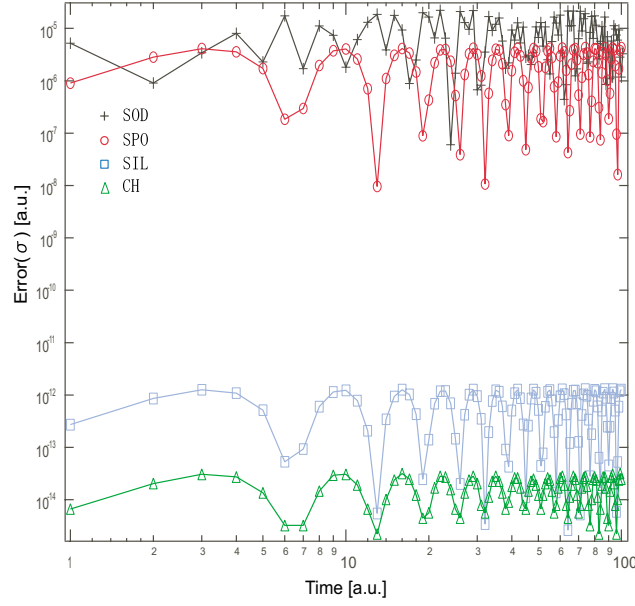


図 2.3 SPO,SOD,SIL,CH 法による放物型ポテンシャル場における固有状態の時間に対する分散誤差。ただし  $\Delta t/\Delta x^2 = 0.0625$  とし、放物型ポテンシャル場の固有状態は  $n = 5$  をとした。

#### ポテンシャル変調に対する電子の時間発展

次にハミルトニアンが時間に依存する場合の時間発展に対する計算精度を比較した。上の条件と同様  $\omega_0^2 = 0.25$  の放物型閉じこめ場の固有状態を初期状態として、ポテンシャル変調  $E_0 \cos(\omega t)$  のもとでの時間発展を評価した。ただし、 $E_0$  は振動ポテンシャル場の振幅、 $\omega$  は周波数をあらわす。ハミルトニアンは

$$H(x, t) = -\frac{\hbar^2}{2m} \frac{\partial^2}{\partial x^2} + \frac{1}{2} \omega_0^2 x^2 + E_0 \cos(\omega t) \quad (2.80)$$

と与えると、このときの波動関数の時間発展は

$$\psi_n(x, t) = \phi_n(x) \exp\left(-\frac{i\epsilon_n t}{\hbar}\right) \exp\left[-i\left(\frac{E_0}{\hbar\omega}\right) \sin(\omega t)\right] \quad (2.81)$$

で表される。ただし  $\phi_n$  は非摂動状態における固有状態の空間部分、 $\epsilon_n$  は固有状態のエネルギーを表す。先ほどと同様、波動関数の初期状態として  $n = 5$  を与え、また時間依存ポテンシャル場の条件を  $E_0 = 0.30$  a.u.,  $\omega = 0.50$  a.u. として、位相誤差及び分散誤差を計算した (図 2.4, 2.5)。ただし CH 法は原理的に単独では時間に依存するハミルトニアンへの適用が出来ないため比較対象から除いた。時間依存問題に対しては、SIL 法の分散誤差は微少であるが位相誤差は振動的に変化し、SOD 法、SPO 法よりも大きいという結果が得られた。また高精度の計算を行うためには Lanczos 法による三重対角化の打ち切り次数を多く取らなくてはならないという問題も発生した。具体的な次数は問題に応じて決定する必要がある、それに依りて計算に必要な時間も決定される。3 つ計算法の比較結果においては Cayley 形式と組み合わせた SPO 法が最も良い精度となった。ただし位相誤差はどの場合にも指数的に蓄積することに注意が必要である。また計算時間については時間に依存しない場合と同様に、SOD、SPO、SIL の順となった。

#### 比較結果の検討

精度 いずれの方法においても誤差の指数的な蓄積が見られたが、ハミルトニアンが時間に依存しない場合には CH 法、SIL 法が他の 2 つの方法に比べて優れているという結果が得られた。しかしながら外場の印加などによりハ



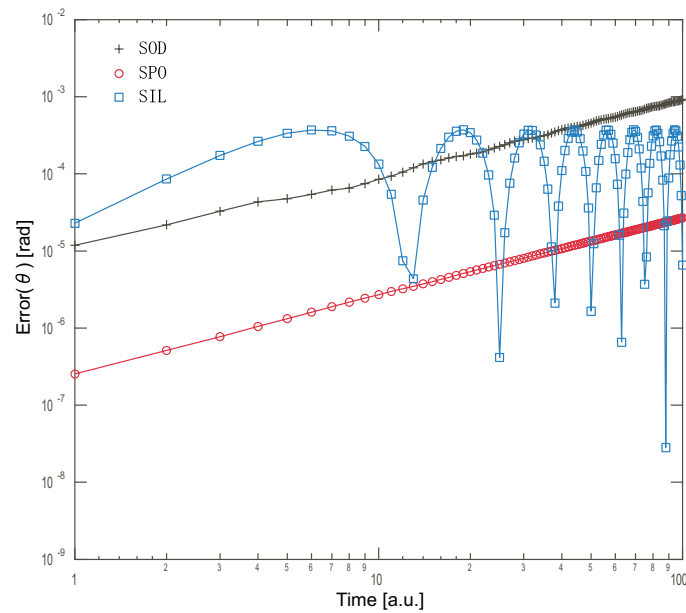


図 2.4 放物型ポテンシャル場に閉じ込められた電子に対する時間依存ポテンシャル変調の位相誤差。時間依存ポテンシャル場の条件を  $E_0 = 0.30$  a.u.,  $\omega = 0.50$  a.u. としている。また、 $\Delta t / \Delta x^2 = 0.0625$  とした。

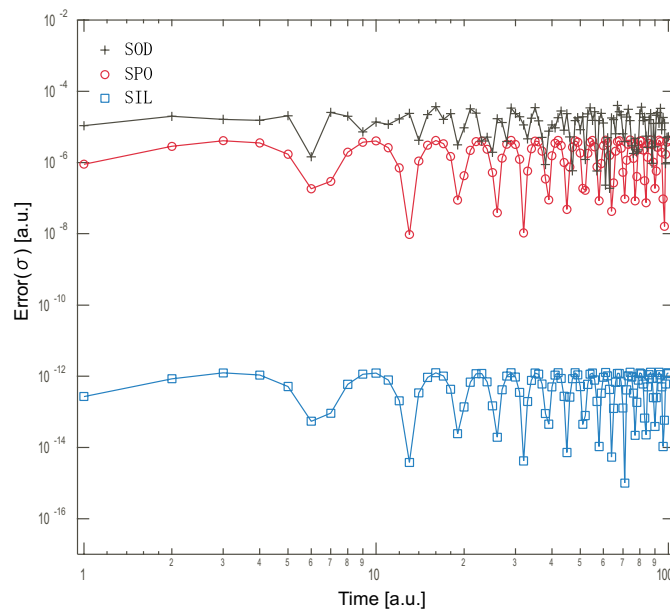


図 2.5 放物型ポテンシャル場に閉じ込められた電子に対する時間依存ポテンシャル変調の強度誤差。時間依存ポテンシャル場の条件を  $E_0 = 0.30$  a.u.,  $\omega = 0.50$  a.u. としている。また、 $\Delta t / \Delta x^2 = 0.0625$  とした。

ミルトニアンが時間依存する場合には CH 法による計算は原理上困難なものになり、SIL 法による計算も位相誤差が大きくなることが明らかとなった。また、SOD 法はどちらの場合においても精度は最も悪く、加えて計算が条件付き安定であるため時間刻みの幅を比較的細かく取らなくてはならない。そのため計算時間と精度の向上を両立するのは困難である。これに対して、SPO 法は演算子の分解を工夫することでハミルトニアンの時間依存性によらずほぼ同等の精度を与えることが明らかとなった。

**計算時間** 計算時間は SOD 法が最も速く、続いて SPO 法、SIL 法、CH 法の順になった。このうち SIL 法においては前者 2 つの計算法と比べて数倍から数十倍の計算時間を必要とした。また CH 法はある時刻の波動関数を求める際に途中の時刻の波動関数の情報を得ることが出来ないため、その都度得たい時刻の波動関数を計算しなくてはならない。そのため他の方法と同じデータを得るためには SIL 法よりもさらに数十倍程度の計算時間を必要とする。また SIL 法と SOD 法は無条件安定な計算ではないため時間の刻み幅  $\Delta t$  を細かく設定しなくてはならない。これに対して SPO 法は無条件安定であり、仮に SOD 法と同等の誤差を与えるような時間刻み幅を選ぶとむしろ計算時間は SPO 法の方が短くなるのが期待される。

**汎用性** 計算において精度、速度とともに重要なのが汎用性である。汎用性は SPO 法が非常に優れている。実際、時間に依存しないハミルトニアン、時間に依存するハミルトニアン両方に対してほぼ同等の精度を与えるという結果を得た。また前節で導入したように様々な外場に対する定式化も容易である。すでに述べたように、時間に依存しないハミルトニアンに対しては CH 法、SIL 法が非常にその精度の点で優れていたが、時間依存ポテンシャル場に対しては両方法ともに問題があり、これを考えると SPO 法が最も優れた計算法であると考えられる。

4 種の時間発展計算法を固有状態の時間発展およびポテンシャル変調を受けた放物型井戸内固有状態の時間発展に対して適用し比較を行った。その結果、それぞれの計算法の特徴が明らかとなり、その中で Cayley 形式と組み合わせた SPO 法が最も汎用性、計算コストのバランスが優れているという結論が得られた。最後に比較の結果得られた各計算法の特徴をまとめた。

**SOD 法** 条件付きでノルム保存の計算法。最も単純な方法であるが、計算速度が速く、精度も条件を選べば悪くはない。ただし条件付き安定であるため、空間刻みの幅によって取りうる時間刻みに制約が加わる点については注意が必要。またハミルトニアンが時間に依存する場合の計算についてもその正当性、精度には疑問が残る。

**SPO 法** Cayley 形式との組み合わせは無条件にノルム保存の計算法。指数積の分解の仕方により様々な場合に対する時間発展計算に対応できるという点で他の方法と比べて汎用性に優れている。また計算速度、精度も他の方法と比べて遜色ない。

**SIL 法** 無条件にノルム保存の計算法。精度の点では他の方法より優れているが時間刻みの選び方や、汎用性にやや難がある。また同じ程度の精度の計算を行うのに際して他の方法と比べて計算時間がかなり長くなってしまいうという弱点がある。時間依存問題への単独での適用は弱い。

**CH 法** ノルムを保存する計算ではないが精度の点で非常に優れ、ほとんど解析解と同一と見なせるほどである。しかし、時間依存のハミルトニアンを計算に取り込むのは難しく、汎用性という点では他の方法と比べて見劣りする。

## 2.2 実空間差分を用いた固有状態の計算

ここでは一体のハミルトニアンを一般的に

$$H = -\frac{\hbar^2}{2m}\nabla^2 + V \quad (2.82)$$

と与え、一次元、二次元それぞれにおけるシュレディンガー方程式の実空間差分表示を与える。

### 2.2.1 一次元に対する解法

一次元空間を実空間の格子点で表現し、そのとき時間に依存しないシュレディンガー方程式

$$H\phi(x) = \epsilon\phi(x) \quad (2.83)$$

をどのように表せるか考える。まず運動エネルギー演算子の波動関数への作用を

$$\frac{\partial^2}{\partial x^2}\phi(x) \rightarrow \frac{\phi(x + \Delta x) - 2\phi(x) + \phi(x - \Delta x)}{\Delta x^2} \quad (2.84)$$

と近似する。ただし  $\Delta x$  は空間の刻み幅を表す。そうするとシュレディンガー方程式は空間の刻み数  $N$  個に対応した  $N$  個の方程式を連立した形にあらわされ、これを行列でまとめると結局

$$\begin{pmatrix} -2+V & 1 & & & \\ 1 & -2+V & 1 & & \\ & \ddots & \ddots & \ddots & \\ & & 1 & -2+V & 1 \\ & & & 1 & -2+V \end{pmatrix} \begin{pmatrix} \phi_i(x_1) \\ \phi_i(x_2) \\ \vdots \\ \phi_i(x_{N-1}) \\ \phi_i(x_N) \end{pmatrix} = \epsilon_i \begin{pmatrix} \phi_i(x_1) \\ \phi_i(x_2) \\ \vdots \\ \phi_i(x_{N-1}) \\ \phi_i(x_N) \end{pmatrix} \quad (2.85)$$

を得る。ただしここでラプラシアンにかかる係数  $-\frac{\hbar^2}{2m\Delta x^2}$  を省略した。また数値の入っていない行列要素は全てゼロである。この行列を対角化することで実空間格子を基底とした表現における固有値と固有関数を求めることができる。

### 2.2.2 二次元に対する解法

二次元の場合も一次元の場合と同様に運動エネルギー演算子を各方向ごとに三点差分で表現し

$$\begin{aligned} & \left( \frac{\partial^2}{\partial x^2} + \frac{\partial^2}{\partial y^2} \right) \phi(x, y) \\ & \rightarrow \frac{\phi(x + \Delta x, y) + \phi(x - \Delta x, y) - 4\phi(x, y) + \phi(x, y + \Delta y) + \phi(x, y - \Delta y)}{\Delta x^2} \end{aligned} \quad (2.86)$$

ただしここで  $x$  方向、 $y$  方向の空間刻み幅を等しいとして  $\Delta x$  として表記した。再び差分表示したハミルトニアンを書く。  $3 \times 3$  の系の場合について与えると

$$H = \left( \begin{array}{ccc|ccc|ccc} -4+V & 1 & 0 & 1 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 \\ 1 & -4+V & 1 & 0 & 1 & 0 & 0 & 0 & 0 \\ 0 & 1 & -4+V & 0 & 0 & 1 & 0 & 0 & 0 \\ \hline 1 & 0 & 0 & -4+V & 1 & 0 & 1 & 0 & 0 \\ 0 & 1 & 0 & 1 & -4+V & 1 & 0 & 1 & 0 \\ 0 & 0 & 1 & 0 & 1 & -4+V & 0 & 0 & 1 \\ \hline 0 & 0 & 0 & 1 & 0 & 0 & -4+V & 1 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & 1 & 0 & 1 & -4+V & 1 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 1 & 0 & 1 & -4+V \end{array} \right)$$

である。

以上のようにして一次元、二次元のシュレディンガー方程式を差分表示することが出来た。この固有値方程式に具体的なポテンシャル場を与え、それを対角化することで任意の形状のポテンシャル場に対する固有値と固有ベクトルを求めることができる。

ただし、二次元の場合、行列の次数は系の一次元方向の刻み数  $N$  に対して  $N^2$  で増加していくことに注意すべきである。そのため大きな刻み数を取った計算を行うことは多次元においては困難なものとなる。ハミルトニアンが大行列になる場合、対角化には Lanczos 法を用いた。Lanczos 法については付録 C を参照のこと。

## 2.3 結論

時間推進演算子を演算子の指数積分分解と Cayley 形式を組み合わせることで近似し実空間で作用する計算法を導入し、様々なポテンシャル場における指数積分分解の表式を与えた。他の計算法との比較を行うことでこの計算法の特徴を抽出を試みた結果、計算精度と時間のバランスが良くさらに汎用性において特に優れた計算法であることが明らかとなり、様々な外部ポテンシャル場を運動する電子の時間発展を検討するという本研究の目的によく合致するという結果を得た。また時間に依存しないシュレディンガー方程式に対しても実空間格子を基底とした行列表示を与え、解法の方針を提示した。以下の章ではこれらの手法を量子閉じこめ場を伝搬する電子波束へ適用し、その時間発展の検討を行うこととする。

## 第3章

# 静電ポテンシャル場中電子波束の運動

本章では静的なポテンシャル場中における電子波束の運動について述べる。最初に電子波束の基本的性質とその物理描像を明らかにする。次に、前章で導入した時間依存シュレディンガー方程式の数値解法を、量子ナノ構造による電子の閉じこめを想定した簡単な一次元の階段型及び箱形の静的ポテンシャル場における波束の運動へ適用し、その時間発展を検討する。数値計算の結果得られた波動関数の波数分布および透過率などの物理量を固有状態からのアプローチによる結果と比較することで両者の関係を明らかにし、波動関数の時間発展を初期値問題として扱う際のデータの解析方法について検討を行う。続いて、古典軌道との対比から電子波伝搬の解析を検討する。一様磁場を印加した系における電子波束の重心位置の軌跡と荷電粒子に対する古典軌道との比較を行い、両者の関係を明確化する。さらにこれらの解析法を用いて、楕円型ポテンシャル場中を運動する電子波束の動力学の検討を行う。楕円型ポテンシャル場は楕円の「一つの焦点から打ち出した光線がもう一つの焦点へ収束する」という特徴を利用し、古典的な粒子の運動との類似から電子の運動を制御する系であるが、これに対して楕円の形状を比較的工程準位が密な連続に近い状態から電子の波動性の無視出来なくなる条件まで変化させ、それぞれの条件における電子波束の収束性を検討することで、古典描像成立の限界を議論する。最後に少数の固有状態を介した伝導の代表例である共鳴トンネリングを検討し、電子波束の運動を通じた電子の共鳴状態寿命の解析法を提案する。共鳴状態寿命を共鳴状態の減衰時間と定義することで、波束の共鳴状態寿命を初期幅や初期位置にほとんど依存しない定量的な量として扱えることを明らかにする。

### 3.1 波束の基本的性質と物理描像

本節では電子波束の基本的性質とその物理描像を検討する。実空間、 $k$  空間におけるガウス波束の定義について述べ、続いてその時間発展の特徴を明確化する。さらに半導体ナノ構造中の電子の伝搬を扱う上での電子波束の運動の持つ物理的意味についても述べる。

#### 3.1.1 波束の表式と性質

波束の表式 ガウス波束は平面波をガウス分布で重み付けし、重ね合わせた波としてあらわされ、実空間、 $k$  空間それぞれにガウス分布を持った局在した波として表現される。重み付け係数  $C(k)$  をガウス分布

$$C(k) = \frac{\sqrt{d}}{\pi^{1/4}} \exp \left[ -\frac{d^2}{2} (k - k_0)^2 \right] \quad (3.1)$$

とし、これを波数  $k$  に対する各平面波成分  $\exp[ik(x - x_0)]$  の重み付けとしたものが波束の  $k$  空間での表式となる。これをフーリエ変換をすることで実空間表現に対する表式

$$f(x) = \frac{1}{\pi^{1/4} \sqrt{d}} \exp \left[ ik_0(x - x_0) - \frac{(x - x_0)^2}{2d^2} \right] \quad (3.2)$$

を得る。

まとめると以下ようになる。ガウス波束の実空間表現  $f(x)$  と  $k$  空間表現  $F(k)$  はそれぞれ

$$f(x) = \frac{1}{\pi^{1/4} \sqrt{d}} \exp \left[ ik_0(x - x_0) - \frac{(x - x_0)^2}{2d^2} \right] \quad (3.3)$$

$$F(k) = \frac{\sqrt{d}}{\pi^{1/4}} \exp \left[ -ikx_0 - \frac{d^2}{2}(k - k_0)^2 \right] \quad (3.4)$$

という関係があり、両者の表現は全く同じ波をそれぞれの空間で表現したもので、フーリエ変換

$$f(x) = \frac{1}{\sqrt{2\pi}} \int_{-\infty}^{\infty} F(k) \exp(ikx) dk \quad (3.5)$$

によってつながれている。

波束の幅 波束の広がりについて述べる。実空間で表現した波束の波動関数  $f(x)$  の絶対値の二乗（確率密度分布） $|f(x)|^2$  を計算すると

$$|f(x)|^2 = \sqrt{\frac{1}{\pi d^2}} \exp \left[ -\frac{(x - x_0)^2}{d^2} \right] \quad (3.6)$$

となるが、ここでその空間広がり幅を関数の最大値から  $1/e$  の点であると定義すると  $d$  が波束の幅をあらわすパラメーターであることがわかる。すなわち  $d$  が大きいほど実空間における波束の広がり幅は大きくなる。上で述べたように波束の実空間表現と  $k$  空間表現はフーリエ変換によって結ばれておりこれに対応して、 $k$  空間における波束の広がり幅は  $1/d$  になる。このことから、実空間幅が狭いほど  $k$  空間における波束の幅は大きくなることがわかる。これは局在した波を表現するためにはより多くの平面波成分を重畳する必要があるということに対応している（図 3.1）

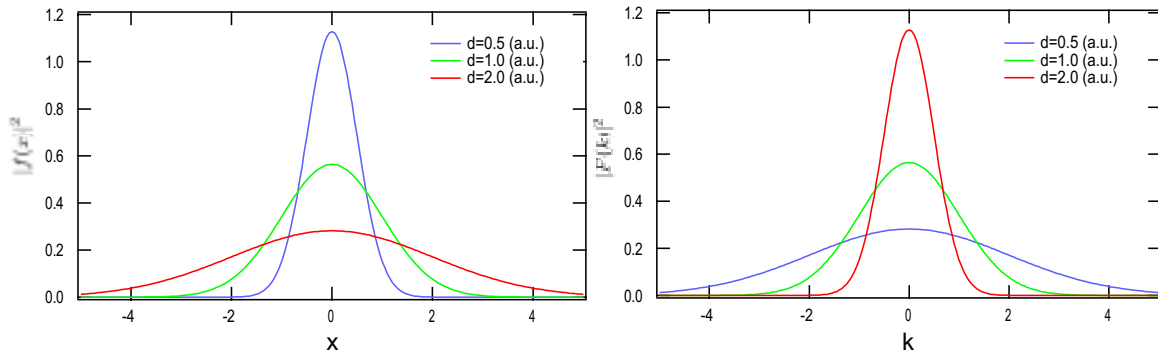


図 3.1  $d=0.5, 1.0, 2.0$  a.u. の波束を実空間、 $k$  空間で表示。

また幅  $d$  を持つ波束の密度分布は初期状態では全く同じものを与えるが、位相成分  $\exp(-ikx)$  に応じて、波動関数自身の振動は大きく異なる（図 3.2）。波束の中心波数  $k_0$  が大きいほど振動は激しくなり、そのような高い振動数を持つ波を計算機に乘せる際には注意が必要である（第 2 章参照）。

位置と運動量の不確定性 次に位置の期待値と運動量の期待値、および標準偏差  $(\Delta x)$ ,  $(\Delta p)$  を求め、ガウス波束の不確定性  $(\Delta x)(\Delta p)$  を調べた（ $x_0 = 0$ ,  $k_0 = 0$  とした）。標準偏差  $R$  は観測量を  $A$  として

$$R = \sqrt{\langle A^2 \rangle - \langle A \rangle^2} \quad (3.7)$$

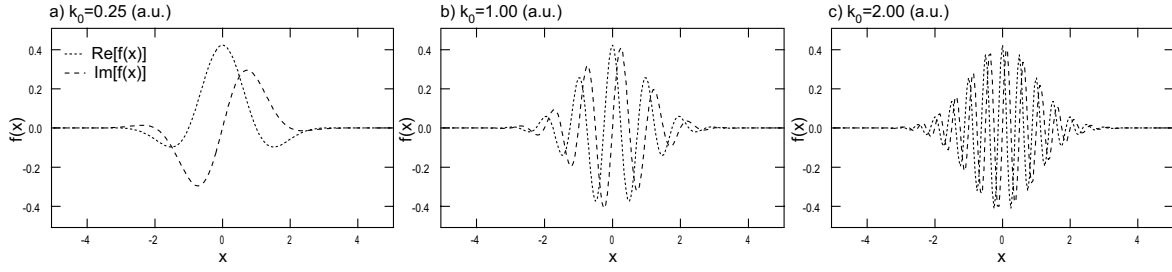


図 3.2  $d=2.0$  a.u. とした波束の実部と虚部を表示。a)  $k_0=0.25$  a.u., b)  $k_0=1.00$  a.u., c)  $k_0=2.00$  a.u.。確率密度分布は同等でも中心波数の違いによって波動関数の振動は大きく異なる。

と定義される。まず波束の位置の期待値  $\langle x \rangle$  と  $x^2$  の期待値  $\langle x^2 \rangle$  を求める。

$$\langle x \rangle = \sqrt{\frac{1}{\pi d^2}} \int_{-\infty}^{\infty} e^{-ik_0 x} e^{-\frac{x^2}{2d^2}} x e^{ik_0 x} e^{-\frac{x^2}{2d^2}} dx = 0 \quad (3.8)$$

$$\begin{aligned} \langle x^2 \rangle &= \sqrt{\frac{1}{\pi d^2}} \int_{-\infty}^{\infty} e^{-ik_0 x} e^{-\frac{x^2}{2d^2}} x^2 e^{ik_0 x} e^{-\frac{x^2}{2d^2}} dx \\ &= \sqrt{\frac{1}{\pi d^2}} \int_{-\infty}^{\infty} x^2 e^{-\frac{x^2}{d^2}} dx \end{aligned} \quad (3.9)$$

$$= \frac{d^2}{2} \quad (3.10)$$

同様にして運動量期待値  $\langle p \rangle$  と運動量の二乗の期待値  $\langle p^2 \rangle$  を求める。

$$\begin{aligned} \langle p \rangle &= \sqrt{\frac{1}{\pi d^2}} \int_{-\infty}^{\infty} e^{-ik_0 x} e^{-\frac{x^2}{2d^2}} (-i\hbar \frac{\partial}{\partial x}) e^{ik_0 x} e^{-\frac{x^2}{2d^2}} dx \\ &= -i\hbar \sqrt{\frac{1}{\pi d^2}} (ik_0) \int_{-\infty}^{\infty} e^{-\frac{1}{d^2} x^2} dx \\ &= \hbar k_0 = 0 \end{aligned} \quad (3.11)$$

$$\begin{aligned} \langle p^2 \rangle &= \sqrt{\frac{1}{\pi d^2}} \int_{-\infty}^{\infty} e^{-ik_0 x} e^{-\frac{x^2}{2d^2}} (-i\hbar \frac{\partial}{\partial x})^2 e^{ik_0 x} e^{-\frac{x^2}{2d^2}} dx \\ &= -\hbar^2 \sqrt{\frac{1}{\pi d^2}} \int_{-\infty}^{\infty} [(-k_0)^2 e^{-\frac{2}{d^2} x^2} - \frac{1}{d^2} e^{-\frac{1}{d^2} x^2} + \frac{1}{d^4} x^2 e^{-\frac{1}{d^2} x^2}] dx \\ &= \hbar^2 k_0^2 + \frac{\hbar^2}{2d^2} = \frac{\hbar^2}{2d^2} \end{aligned} \quad (3.12)$$

これらの量を用いて位置、運動量の標準偏差を求めると

$$(\Delta x) = \sqrt{\langle x^2 \rangle - \langle x \rangle^2} = \sqrt{\frac{d^2}{2}} \quad (3.13)$$

$$(\Delta p) = \sqrt{\langle p^2 \rangle - \langle p \rangle^2} = \sqrt{\frac{\hbar^2}{2d^2}} \quad (3.14)$$

となり、これらを用いるとガウス波束においては位置と運動量の不確定性が

$$(\Delta x)(\Delta p) = \sqrt{\frac{d^2}{2}} \sqrt{\frac{\hbar^2}{2d^2}} = \frac{\hbar}{2} \quad (3.15)$$

の関係にあることがわかる。

波束の運動に対する解析解 次に波束の時間発展を調べ、その運動の性質についてまとめる。自由空間を運動する波束の時間発展は解析的に解くことが出来る。波動関数の時間に依存する項をあらわに書き、各平面波成分の重ね合わせとして表示すると

$$\psi(x, t) = \frac{1}{\sqrt{2\pi}} \int_{-\infty}^{\infty} C(k) e^{ikx} e^{-i\frac{E}{\hbar}t} dk \quad (3.16)$$

である。ただし  $E = \frac{\hbar^2 k^2}{2m}$  である。この式に  $C(k)$  を代入し、積分を実行すれば波動関数の時間発展が得られる。

$$\begin{aligned} \psi(x, t) &= \frac{1}{\sqrt{2\pi}} \int_{-\infty}^{\infty} C(k) e^{ikx} e^{-i\frac{E}{\hbar}t} dk \\ &= \left(\frac{1}{2\pi}\right) \left(\frac{d^2}{\pi}\right)^{1/4} \int_{-\infty}^{\infty} e^{-\frac{d^2(k-k_0)^2}{2}} e^{-i\frac{\hbar k^2}{2m}t} e^{ikx} dk \\ &= \left(\frac{d^2}{4\pi^3}\right)^{1/4} \int_{-\infty}^{\infty} e^{-\frac{d^2\xi^2}{2}} e^{-i\frac{\hbar(\xi+k_0)^2}{2m}t} e^{i(\xi+k_0)x} d\xi \\ &= \left(\frac{d^2}{4\pi^3}\right)^{1/4} e^{ik_0(x-\frac{\hbar k_0}{2m}t)} \int_{-\infty}^{\infty} e^{-(\frac{d^2}{2}+i\frac{\hbar}{2m}t)\xi^2} e^{i(x-\frac{\hbar k_0}{m}t)\xi} d\xi \\ &= \left(\frac{d^2}{4\pi^3}\right)^{1/4} e^{ik_0(x-\frac{\hbar k_0}{2m}t)} \int_{-\infty}^{\infty} e^{-(\frac{d^2}{2}+i\frac{\hbar}{2m}t)\xi^2} \cos[(x-\frac{\hbar k_0}{m}t)\xi] d\xi \end{aligned} \quad (3.17)$$

ここまでの式変形には変数変換  $\xi = (k - k_0)$  および、 $\sin$  項に関する積分を奇関数であることから落とすという操作をしている。ここで

$$a = \frac{d^2}{2} + i\frac{\hbar}{2m}t, \quad b = x - \frac{\hbar k_0}{m}t \quad (3.18)$$

とおいてまとめ直すと、

$$\psi(x, t) = \left(\frac{d^2}{4\pi^3}\right)^{1/4} e^{ik_0(x-\frac{\hbar k_0}{2m}t)} \int_{-\infty}^{\infty} e^{-a\xi^2} \cos(b\xi) d\xi \quad (3.19)$$

であり、さらにここで公式

$$\int_{-\infty}^{\infty} e^{-a\xi^2} \cos(b\xi) d\xi = \left(\frac{\pi}{a}\right)^{1/2} e^{-\frac{b^2}{4a}} \quad (3.20)$$

を利用すると、結局波束の時間発展は

$$\psi(x, t) = \left(\frac{d^2}{4\pi^3}\right)^{1/4} \left(\frac{\pi}{a}\right)^{1/2} e^{ik_0(x-\frac{\hbar k_0}{2m}t)} e^{-\frac{b^2}{4a}} \quad (3.21)$$

であらわされることがわかる。

波束の速度 上で得た波束の時間発展の表式から波束の速度を求める。波束の群速度は位置期待値の単位時間あたりの変位量であることを踏まえて波束の位置期待値を求めると、

$$\begin{aligned} \langle x \rangle &= \langle \psi(t) | x | \psi(t) \rangle \\ &= \left[\frac{d^2}{4aa^*\pi}\right]^{1/2} \int_{-\infty}^{\infty} \exp\left(-\frac{b^2}{4a^*}\right) x \exp\left(-\frac{b^2}{4a}\right) dx \\ &= \left[\frac{d^2}{4aa^*\pi}\right]^{1/2} \int_{-\infty}^{\infty} \exp\left[-\frac{b^2}{4}\left(\frac{a+a^*}{aa^*}\right)\right] \left(b + \frac{\hbar k_0}{m}t\right) db \\ &= \left[\frac{d^2}{4aa^*\pi}\right]^{1/2} \frac{\hbar k_0}{m} t \left[\frac{4aa^*\pi}{a+a^*}\right]^{1/2} = \frac{\hbar k_0}{m} t \end{aligned} \quad (3.22)$$



であり、波束の位置の中心が  $\frac{\hbar k_0}{m}t$  で運動していることがわかる。ゆえに波束の群速度  $v_g$  が

$$v_g = \frac{\hbar k_0}{m} \quad (3.23)$$

であることが理解される。また、これは運動量  $\hbar k_0$  を持った古典的粒子の速度と一致する。

波束の分散の時間発展 また波束が時間と共に広がっていくこともわかる。波束の広がりの時間変化を分散  $\langle x^2 \rangle + \langle x \rangle^2$  の時間依存性を計算することで調べる。すでに  $\langle x \rangle = v_g t$  を得ているのであとは  $\langle x^2 \rangle$  を計算すればよい。

$$\begin{aligned} \langle x^2 \rangle &= \left[ \frac{d^2}{4aa^*\pi} \right]^{1/2} \int_{-\infty}^{\infty} \exp\left(-\frac{b^2}{4a^*}\right) x \exp\left(-\frac{b^2}{4a}\right) dx \\ &= \left[ \frac{d^2}{4aa^*\pi} \right]^{1/2} \int_{-\infty}^{\infty} (b + v_g t)^2 \exp\left(-\frac{b^2}{4}\left(\frac{a+a^*}{aa^*}\right)\right) db \\ &= \left[ \frac{d^2}{4aa^*\pi} \right]^{1/2} \int_{-\infty}^{\infty} b^2 \exp\left[-\frac{b^2}{4}\left(\frac{a+a^*}{aa^*}\right)\right] db + v_g^2 t^2 \\ &= \frac{2}{d^2} aa^* + v_g^2 t^2 \end{aligned} \quad (3.24)$$

ゆえに波束の分散は

$$\Delta x = \frac{d^2}{2} + \frac{\hbar^2 t^2}{2m^2 d^2} \quad (3.25)$$

で時間発展することがわかった。この式からわかることは波束の分散の広がりの速さは、時間に依存して増加し、質量に依存して減少するということである。また実空間での初期幅  $d$  が狭いほど波束の広がりは速くなることも同時にわかる。

初期幅と波数分布の関係 平面波は波数成分毎に位相速度が異なり、そのため時間と共に波束を構成する平面波の各成分の位相がずれは大きくなり、それに伴って波束の崩壊が起こる。初期幅が狭いほど広がりが速くなるのは、実空間で局在した波を表現するため、多くの波数成分にわたって平面波を重ね合わせる必要があるからである。 $k$  空間で広い分布を持つ波ほど位相のずれも速くなり、それに伴い波束の崩壊の速度も速くなるということが理解される。

### 3.1.2 波束の物理的意味

以上見てきたように波束は実空間、運動量空間の両方に分散を持った波でありそれに対応してどちらの空間においても局在した状態を持ち、これが時間と共に実空間では広がり、 $k$  空間では（散乱が起きなければ）一定の分布を保ち、時間発展していく。これらの性質を踏まえると、波束の運動を調べることは、粒子性と波動性を兼ね備えた状態に対する運動を調べるということであり、実際、自由空間における波束の群速度は古典粒子にの速度と一致している。以上のことから波束の運動を調べることは初期状態で空間的に局在した単電子の運動を検討することであるといえる。

## 3.2 透過率と透過波の波数分布

### 3.2.1 階段型ポテンシャル場における波束の運動

本節では階段型ポテンシャルに対する波束の時間発展を検討することを通して、時間発展を初期値問題として扱った結果に対する解析法を検討する。最初に、平面波の透過率に対する解析解を求め、それと数値計算の結果得られた波動関数および物理量を比較することで、初期値問題と固有状態からのアプローチの関係を議論する。続いてフーリエ変換を用いて各時刻毎の波動関数の  $k$  空間に対する分布を調べ、波束の  $k$  空間における時間発展に対する考察を行う。

## 平面波の透過率

図 3.3 に示したような階段型ポテンシャル場に対する電子の伝搬を考える。入射電子のエネルギーを  $E$  とし、また領域 I、II 各領域における電子の波数をそれぞれ  $k_1, k_2$  とし、まず  $E > V$  の場合を考える。領域 I、II それぞれの波動関数を進行波と後退波の重ね合わせで以下のように表現する。

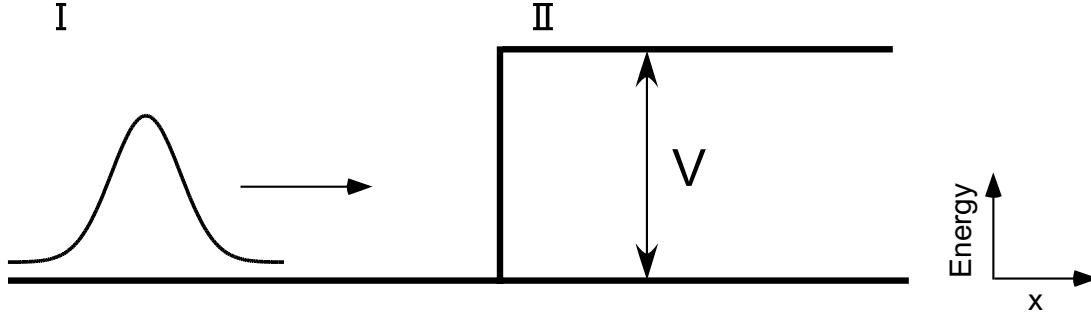


図 3.3 階段型ポテンシャルの模式図。数値計算は  $V = 1.0$  a.u. の条件で計算を行った。

$$\text{領域 I} \quad \psi_1(x) = Ae^{ik_1x} + Be^{-ik_1x} \quad (3.26)$$

$$\text{領域 II} \quad \psi_2(x) = Ce^{ik_2x} + De^{-ik_2x} \quad (3.27)$$

このとき、電子は系の左側より入射したと考え、領域 II では反射波は存在しないと考えられ、 $D = 0$  である。上の方程式を考えることでまず平面波が入射する場合の透過率、反射率を求める。ただし、

$$k_1 = \sqrt{2E} \quad (3.28)$$

$$k_2 = \sqrt{2(E - V)} \quad (3.29)$$

である。ポテンシャル界面の座標を  $x = 0$  とおくと、波動関数の接続と連続の条件から、

$$A + B = C \quad (3.30)$$

$$k_1 A - k_1 B = k_2 C \quad (3.31)$$

という二つの条件が得られ、これらから、反射率  $R = |B|^2/|A|^2$  が与えられる。さらに存在確率の保存から  $T + R = 1$  なので、透過率  $T$  も求めることができる。

$$R = \frac{(k_1 - k_2)^2}{(k_1 + k_2)^2} \quad (3.32)$$

$$T = \frac{4k_1 k_2}{(k_1 + k_2)^2} \quad (3.33)$$

$E < V$  の場合 次に  $E < V$  の場合を考える。このとき領域 I、II それぞれの波動関数を

$$\text{領域 I} \quad \psi_1(x) = Ae^{ik_1x} + Be^{-ik_1x} \quad (3.34)$$

$$\text{領域 II} \quad \psi_2(x) = Ce^{i\rho x} + De^{-i\rho x} \quad (3.35)$$

として上と同様の計算を行うと

$$T = 0, \quad R = 1 \quad (3.36)$$

を得る。ただし、 $\rho = \sqrt{2(V - E)}$  である。この条件下では領域 II へ透過は起こらないが、しみ出す成分は存在し、

$$\psi_2(x) = A \frac{2k_1}{(k_1 + i\rho)} \exp(-\rho x) \quad (3.37)$$

で与えられる。領域 II にしみこんだ波動関数は実数であり指数的に減衰する。以上をまとめると、階段型ポテンシャルに入射する電子は  $E > V$  の場合には透過波と反射に分かれ、 $E < V$  の場合には領域 II にしみこむ成分はあるものの、その透過率はゼロである。

#### 電子波束の透過率

ここでは電子波束の透過率を固有状態からと初期値問題からの両面から求め、比較を行うことで両者が同一の結果を与えることを明らかにする。

**固有状態の立場からの透過率** ガウス波束の階段型ポテンシャルに対する透過率を固有状態の立場から求める。上で求めた平面波に対する解析的透過率とガウス波束の平面波成分それぞれの強度分布  $|F(k)|^2$  とを掛け合わせて積分することで固有状態の立場からの透過率を求めることが出来る。

$$\text{ガウス波束の透過率} \quad T_g = \int_{-\infty}^{\infty} T(k) \times |F(k)|^2 dk \quad (3.38)$$

ただし、 $F(k)$  は

$$F(k) = \int f(x) e^{-ikx} dx \quad (3.39)$$

であり、 $k$  空間で表示した波束である。

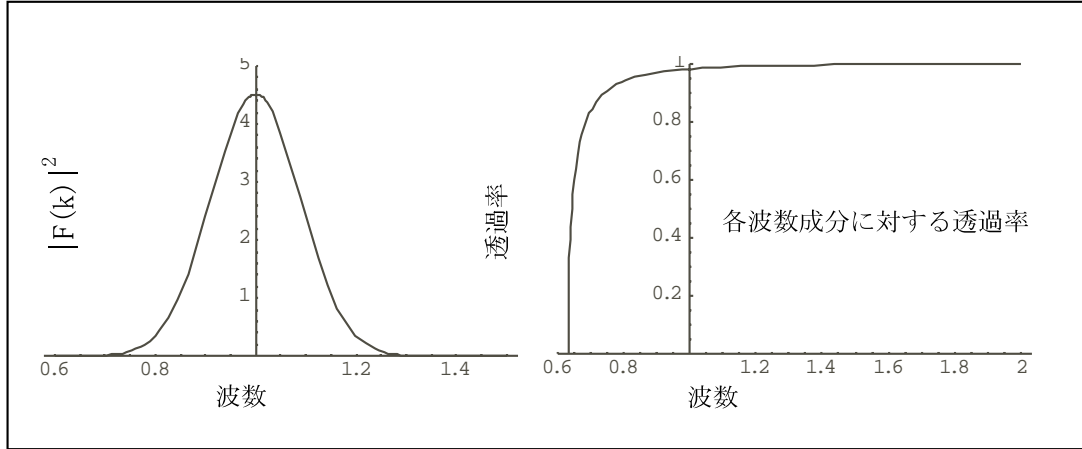


図 3.4  $k_0 = 1.0$  a.u.,  $d = 8$  a.u.,  $V = 0.4E_0$  における波動関数のフーリエ変換  $|F(k)|^2$  と透過率曲線

**初期値問題の立場からの透過率** 次に電子波束の時間発展を初期値問題として解いた結果を用いて波束の透過率を求める。数値計算における波束の透過率は、左から入射した電子波束が反射波と透過波に別れ、十分時間が経過したあとの透過波の電荷密度分布を領域 II において積分した値であるとした。

波束の初期幅を  $d = 8$  a.u. と固定し、空間刻み幅、時間刻み幅をそれぞれ  $\Delta x = 1/4$  a.u.,  $\Delta t = 1/32$  a.u. の条件で計算した。図 3.5 は、固有状態から求めたガウス波束の透過率と、波束の時間発展を初期値問題として扱った結果からの透過率とを比較したものである。実線が固有状態から求めた透過率、マーカーが初期値問題から求めた透過率をあらわす。また点線は単一の平面波に対する透過率をあらわす。ただし、横軸は波束のエネルギー  $E = \frac{\hbar^2 k_0^2}{2m}$  を

テンシャルの高さに対する比として取っている。結果を見ると全ての領域で両者が非常によく一致していることがわかる。このことから初期値問題の立場から透過率を議論することが十分可能であることが結論される。また階段型のような微分不連続なポテンシャルにおいても数値計算が定量的議論ができるほど十分良い精度を保つことがわかる。ただし波束の入射に対しては、たとえポテンシャルの高さをエネルギー期待値  $E = \hbar^2/(2m)k_0^2$  と等しくしたとしても、透過率はゼロにならないことに注意が必要である。これはガウス波束が  $k$  空間でその幅に応じた分布を持ち、必ず透過可能な高い波数成分を持つからである。電子波束が実空間で狭い幅であるほど多くの運動量成分を持つため、 $V = E_0$  における透過率は大きくなる。

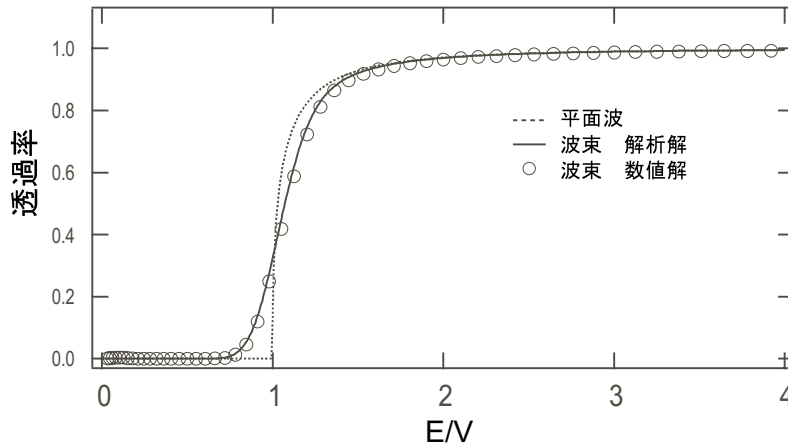


図 3.5 電子波束の階段型ポテンシャルに対する透過率。横軸は  $V/E_0$ 。点線は平面波の透過率。波束の初期幅  $d = 8$  a.u.,  $\Delta x = 1/4$  a.u. で計算

### 波動関数の動的挙動

図 3.6 は、波動関数の動的挙動を調べるために、電子の確率密度 ( $|\psi(x, t)|^2$ ) の分布を、 $V = 0.0, 0.4E_0, 0.8E_0, 1.0E_0$  の条件それぞれについて  $t=10.0$  a.u. ごとに実空間で書き出したものである。電子波束に初期値として  $k_0 = 1$  a.u.,  $d = 8$  a.u. を与え、左から入射させた。ポテンシャル障壁がない場合 ( $V = 0$ ) にはすでに見たように、波束は時間とともにその幅を広げながら進んでいく。これに対し、ポテンシャル障壁が存在する場合には、電子波束はポテンシャル界面で一部が反射し進行波との間に干渉を起こす。干渉はポテンシャルの高さが大きいほど顕著になる。これは反射波が大きくなるためである。また、ポテンシャルは有限であるために、電子波束はポテンシャルの高さに応じて領域 II へ透過し、再び波束の形を取り戻しながら進行していく。反射波も同様に波束の形を保ちつつ戻っていく。

### 運動量空間における波束の時間発展

ここで興味深いことに、領域 II での波束の振る舞いを見てみると、ポテンシャルの低い場合と比べて高い場合では、明らかに、波束の崩壊が速くなっている。このことはどのように説明できるであろうか。そもそも波束が時間とともに崩壊するのは、波束を構成する平面波の位相速度がそれぞれ異なるためであった。階段型ポテンシャルを通過することによって、波束の位相成分の分布が変化するために波束の崩壊が早まったと考えられる。波動関数をフーリエ変換することで、その波数成分の分布の変化を調べた。

図 3.7 はポテンシャル階段へ入射した波束が反射波と透過波に分かれた後に、フーリエ変換を行いそれをプロットしたものである。比較のために  $V = 0.0$  a.u. の場合も載せた。 $V = 0.0$  a.u. の場合には、波束は崩れながら進んでいくが、その波数成分はなんら変化を受けずその中心も 1 のままである。これに対して、ポテンシャル階段がある場合は、波数成分の分布は進行波（透過波）と反射波に分かれ二つのピークができることがわかる。より詳細に見るとま

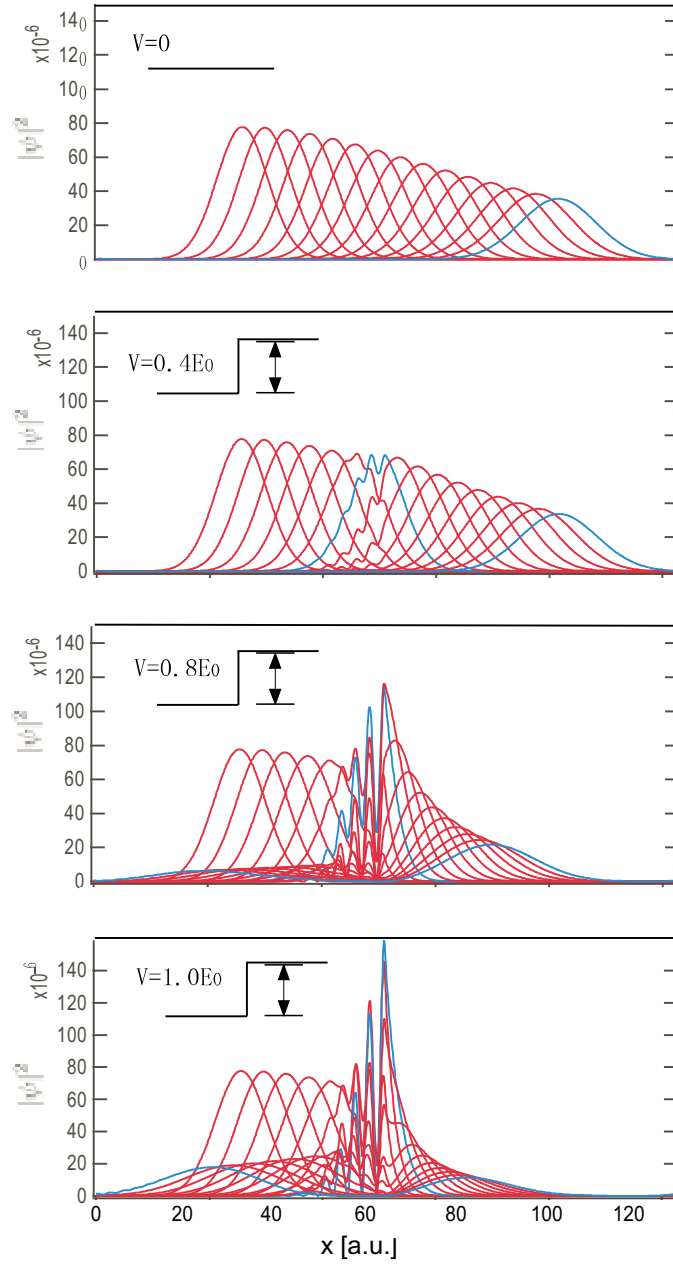


図 3.6 ポテンシャルの高さ  $V = 0.0, 0.4E_0, 0.8E_0, 1.0E_0$  における電子波束の確率密度分布の実空間における時間発展を  $t = 10$  a.u. ごとに表示。

ず、反射波の波数分布の中心は波数の大きい成分の多くが透過波になることに対応して-1 よりも幾分高くなる。これに対して、透過波では速い成分の透過量が多いことに対応して、波数分布の中心は幾分速いほうにシフトし、またその分布の形も非対称になる。ただし透過波の波数分布はここでは横軸を  $k_2$  として表示しているが、実際に透過波が運動するのは階段領域であるのでもとの波束の波数分布を反映した結果を見るためには横軸を  $k_1$  として表示すべきことに注意が必要である。

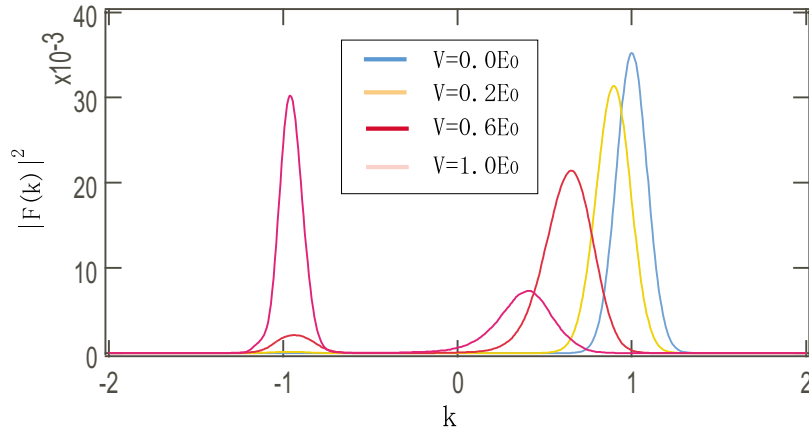


図 3.7  $V = 0.0, 0.4E, 0.8E, 1.0E$  の条件で入射した電子波束の散乱後の波数分布。計算条件は空間の刻み数 (フーリエ変換の標本点数) 2048 点,  $\Delta x = 1/16$  a.u.,  $\Delta t = 1/512$  a.u.,  $d = 8$  a.u.

### 3.2.2 箱形ポテンシャル場における波束の運動

次に箱形ポテンシャル場に対する電子波束の入射を考える。目的は階段型ポテンシャル場と同様、固有状態と初期値問題からのアプローチとの比較および計算結果の解析法の検討である。階段型と異なるのは箱形系においては電子のトンネリングおよび共鳴透過があるという点である。これらの現象の解析法を検討することが本小節の課題である。

#### 平面波の透過率

先ほどと同様、まず平面波の透過率に対する解析解を調べることから始める。下の図のような系に左側から電子が入射すると考える。

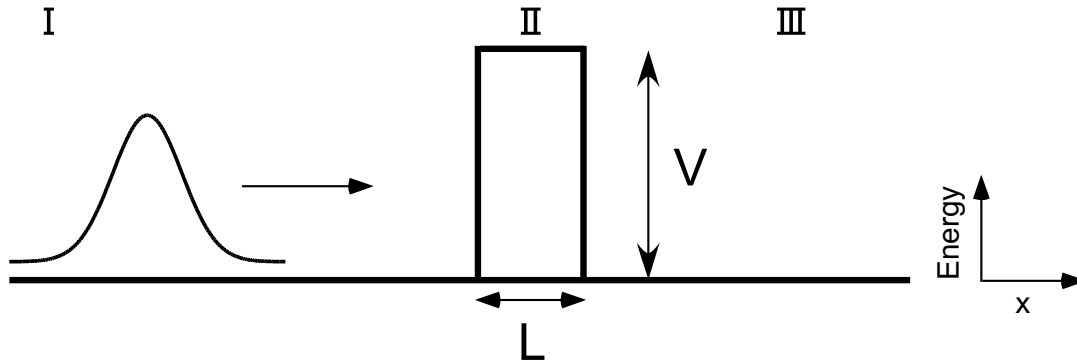


図 3.8 箱形ポテンシャルの模式図。障壁の幅を  $L = 5$  a.u.、高さを  $V = 1.0$  a.u. として計算を行った。

$E > V$  の場合 初期波動関数を

$$\text{領域 I } \psi_1(x) = Ae^{ik_1x} + Be^{-ik_1x} \quad (3.40)$$

$$\text{領域 II } \psi_2(x) = Ce^{ik_2x} + De^{-ik_2x} \quad (3.41)$$

$$\text{領域 III } \psi_3(x) = Fe^{ik_1x} \quad (3.42)$$

とおき、透過率、反射率を考える。ただし  $E > V$  であるので、 $k_2 = \sqrt{2(E - V)}/\hbar$  である。階段の場合と同様にポテンシャル界面で波動関数は微分連続でなければならないので、 $x = 0$  で

$$A + B = C + D, \quad (3.43)$$

$$k_1 A - k_1 B = k_2 C - k_2 D \quad (3.44)$$

同様に  $x = L$  で

$$C e^{ik_2 L} + D e^{-ik_2 L} = F e^{ik_1 L}, \quad (3.45)$$

$$k_2 (C e^{ik_2 L} - D e^{-ik_2 L}) = k_1 F e^{ik_1 L} \quad (3.46)$$

という、条件が成り立つ。上の式を用いると

$$C = \frac{k_1 + k_2}{2k_2} e^{i(k_1 - k_2)L} F, \quad (3.47)$$

$$D = \frac{k_1 - k_2}{2k_2} e^{i(k_1 + k_2)L} F \quad (3.48)$$

出来、また

$$A = \frac{(k_1 + k_2)C + (k_1 - k_2)D}{2k_1} \quad (3.49)$$

$$B = \frac{(k_1 - k_2)C + (k_1 + k_2)D}{2k_1} \quad (3.50)$$

と解けるので、これに C, D を代入すると

$$A = [\cos(k_2 L) - i \frac{(k_1^2 + k_2^2)}{2k_1 k_2} \sin(k_2 L)] e^{ik_1 L} F \quad (3.51)$$

$$B = i \frac{(k_1^2 - k_2^2)}{2k_1 k_2} \sin(k_2 L) e^{ik_1 L} F \quad (3.52)$$

を与える。よって反射率、透過率は

$$\text{反射率 } R = \frac{|B|^2}{|A|^2} = \frac{(k_1^2 - k_2^2)^2 \sin^2(k_2 L)}{4k_1^2 k_2^2 + (k_1^2 - k_2^2)^2 \sin^2(k_2 L)} \quad (3.53)$$

$$\text{透過率 } T = \frac{|F|^2}{|A|^2} = \frac{4k_1^2 k_2^2}{4k_1^2 k_2^2 + (k_1^2 - k_2^2)^2 \sin^2(k_2 L)} \quad (3.54)$$

となる。これを電子の入射エネルギー  $E$  及び箱形ポテンシャルの高さ  $V$  で表すと

$$\text{反射率 } R = \frac{V^2 \sin^2(k_2 L)}{4E(E - V) + V^2 \sin^2(k_2 L)} \quad (3.55)$$

$$\text{透過率 } T = \frac{4E(E - V)}{4E(E - V) + V^2 \sin^2(k_2 L)} \quad (3.56)$$

を得る。

$E > V$  における共鳴現象 透過率  $T$  の式を、見るとわかるように、 $k_2 L = n\pi$  という条件が満たされる場合には平面波は全透過する。この条件式の  $k_2$  をエネルギーで表示し直すと共鳴条件は電子のエネルギーが

$$E = \frac{\hbar^2}{2m} \frac{n^2 \pi^2}{L^2} \quad (3.57)$$

を満たす場合であることがわかり、これは幅  $L$  の無限井戸型ポテンシャル場に対するエネルギー固有値と同じである。電子波が箱形ポテンシャル場の両端に節を持つような条件で入射したときに共鳴的透過が起こることが理解される。また、障壁の幅が大きいほど共鳴状態が密に詰まっていくことも同時にわかる。

$E < V$  の場合 階段型ポテンシャルのところで見たように、一般に  $E < V$  の場合には電子波はポテンシャル障壁を越えることができず全反射する。しかし、今考えている系のように、ポテンシャルの厚さが有限の場合には、ポテンシャル障壁へしみこんだ波動関数の成分が障壁の反対側まで達し、透過波となる。初期波動関数を

$$\text{領域 I } \psi_1(x) = Ae^{ik_1x} + Be^{-ik_1x} \quad (3.58)$$

$$\text{領域 II } \psi_2(x) = Ce^{\rho x} + De^{-\rho x} \quad (3.59)$$

$$\text{領域 III } \psi_3(x) = Fe^{ik_1x} \quad (3.60)$$

とおき、透過率、反射率を考える。ただしこの場合は、 $E < V$  であるので、 $\rho = \sqrt{2(V-E)}/\hbar$  である。 $E > V$  の場合と全く同様に解くと、透過率および反射率は以下のように与えられる。

$$\begin{aligned} \text{透過率} \quad T &= \frac{4k_1^2\rho^2}{4k_1^2\rho^2 + (k_1^2 + \rho^2)^2 \sinh^2(\rho l)} \\ &= \frac{4E(V_0 - E)}{4E(V_0 - E) + V_0^2 \sinh^2(\rho l)} \end{aligned} \quad (3.61)$$

透過率  $T$  の式からわかるように、 $E < V$  の場合でもトンネル効果により、透過率がゼロではないことがわかる。ただし  $E \ll V$  の極限では透過率はゼロに収束する。

$V < 0$  の場合 ポテンシャルの高さ  $V$  がゼロよりも低い場合、全ての進行波に対して領域 II での波数は  $k_2 = \sqrt{E + |V|}$  で表される。透過率の表式自体には変化はなく、 $E > V$  における透過率に  $V$  をそのまま代入することによって透過率を見積もることが可能である。

#### 電子波束の透過率

固有状態の立場から 平面波に対する透過率が明らかになったので、それをもとに再び固有状態の立場からガウス波束の透過率を考える。計算方法は階段型ポテンシャルの章で行ったのと全く同じである。ガウス波束を平面波の重ね合わせで表し、波数空間での強度分布を求める。これに各平面波に対する透過率  $T$  を乗じて積分することで、ガウス波束の透過率を求めることができる。ここで一つ注意すべきことは、箱形ポテンシャルの場合には、 $E > V$  の領域における透過に加え、 $E < V$  領域におけるトンネル透過という、二つのモードが存在することである。すでに述べたようにガウス波束は無限に裾野を引くために、必ず二つのモードにまたがった波数分布を持つ。透過率を計算する際にはそれぞれの効果による寄与を別々に計算して足し合わせるが必要となる。式で表すと以下ようになる。

$$T_{gauss} = \int_0^{k'} |F(k)|^2 \times T_{E < V}(k) dk + \int_{k'}^\infty |F(k)|^2 \times T_{E > V}(k) dk \quad (3.62)$$

ただし  $k'$  は  $E = V$  を満たす波数  $k' = \sqrt{\frac{2mV}{\hbar^2}}$  をあらわす。

初期値問題からの箱形ポテンシャルに対する電子波束の透過率 再び初期値問題の立場から箱形ポテンシャルに対する電子波束の透過率を解析する。ここでの目的は、我々の手法（初期値問題からのアプローチ）によってトンネル現象や共鳴現象を定量的に扱えることを示し、また基礎的な描像に対してデータを所得することによって、より複雑な現象を扱う際の道具とすることである。

計算条件と比較結果 電子波束の波数の中心を  $k_0 = 1.0$  a.u、幅を  $d = 8.0$  a.u、箱形ポテンシャルの幅を  $L = 5$  a.u に固定し、ポテンシャルの高さのみを変化させた場合の透過率を数値計算によって調べた。（図 3.2.2）透過率の計算方法は前節と同様、入射した電子波束が透過波と反射波にわかれ十分な時間が経ったあとの透過領域における存在確率を透過率であるとした。結果、上に挙げた方法で求めた透過率の値と、数値計算による値が非常によく一致することが示された。固有状態の立場から求めたガウス波束の透過率はすでに述べたように、 $E > V$ 、 $E < V$  それぞれの領



域における透過確率を足し合わせた形で表された。数値計算の結果がこれと一致したことで共鳴現象、トンネル現象を初期値問題の立場からも定性的、定量的に扱うことが出来ることが明らかとなった。

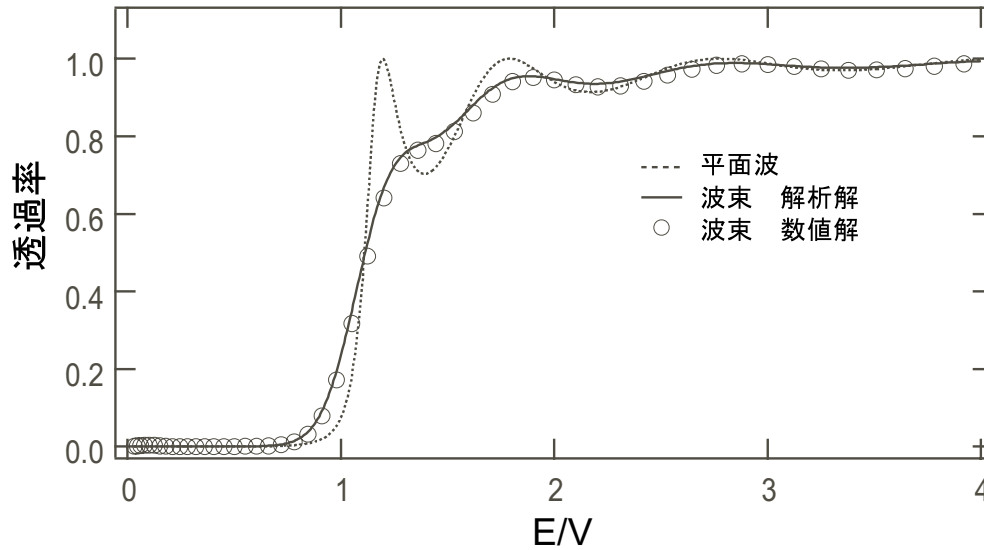


図 3.9 箱形ポテンシャルに対する電子波束の透過率 ( $L=5$  a.u.). 実線は固有状態から求めた波束の透過率、マーカーは初期値問題から求めた波束の透過率をあらわす。点線は平面波の透過率。波束の初期幅  $d = 8$  a.u.、 $\Delta x = 0.25$  a.u. で計算。

**波束の幅と透過率** 今までの議論から波束の幅によって、電子波束の透過率に変化が生じることも明らかである。実空間での波束の幅が異なることで、それに応じて  $k$  空間での波数成分の分布も異なり、結果として全体の透過率にも変化が表れる。実空間における波束の幅が広いほどよく共鳴状態を反映した透過率曲線が得られる。

### 3.3 古典軌道との対比

ここでは一様磁場の下での電子波束のサイクロトロン運動を、電子波束の重心位置の軌跡と荷電粒子の古典軌道との対比を行うことで解析し、さらに楕円型ポテンシャル場における電子波束の動力学の検討へと発展させる。

#### 3.3.1 一様磁場下における荷電粒子の古典軌道

電子を質点と考えた場合の磁場  $\mathbf{B}$  の下での古典軌道を導出する。この粒子が速度  $\mathbf{v}$  で動いているときに磁場から受ける力は SI 単位系では

$$\mathbf{F} = -e(\mathbf{v} \times \mathbf{B}) \quad (3.63)$$

とあらわされニュートンの運動方程式は

$$m \frac{d^2}{dt^2} \mathbf{x} = -e(\mathbf{v} \times \mathbf{B}) \quad (3.64)$$

で与えられる。磁場として、二次元平面内で  $z$  方向に平行な磁場  $\mathbf{B} = (0, 0, B_z)$  を考える。各方向について成分表示すると

$$\begin{aligned} m \frac{d^2}{dt^2} x &= -ev_y B_z \\ m \frac{d^2}{dt^2} y &= ev_x B_z \end{aligned} \quad (3.65)$$

となり、これを  $x$  方向,  $y$  方向それぞれについて解けば磁場の下での電子の軌道は容易に導出できる。

サイクロトロン半径

$$\begin{aligned} v_x &= v_0 \cos \omega t \\ v_y &= v_0 \sin \omega t \end{aligned} \quad (3.66)$$

とおき、代入すると

$$\begin{aligned} m \frac{d}{dt} \left( \frac{dx}{dt} \right) &= -ev_y B_z \\ m \frac{d}{dt} (v_0 \cos \omega t) &= -ev_0 \sin \omega t B_z \end{aligned} \quad (3.67)$$

を得る。ただしここで、

$$\omega = \frac{eB_z}{m} \quad (3.68)$$

はサイクロトロン振動数を表し、これを用いてサイクロトロン半径  $r_c$  は

$$r_c = \frac{mv_0}{eB_z} \quad (3.69)$$

と表される。また、サイクロトロン周期  $T_c$  が

$$T_c = \frac{2\pi r}{v} = \frac{2\pi m}{eB_z} \quad (3.70)$$

であることも同時にわかる。サイクロトロン半径は  $v_0$  と  $B_z$  に依存し、サイクロトロン周期は  $B_z$  のみに依存する。

軌道 次に一様磁場の下での電子の軌道を求める。上で見たように  $x$  方向に対する電子の運動方程式は

$$m \frac{d^2}{dt^2} x = -ev_0 \sin \omega t B_z \quad (3.71)$$

である。両辺を積分すると

$$\frac{d}{dt} x = \frac{ev_0 B_z}{\omega} \cos \omega t \quad (3.72)$$

さらに両辺を積分し、

$$x(t) = \frac{v_0}{\omega} \sin \omega t + X \quad (3.73)$$

を得る。 $y$  方向についても同様にして

$$y(t) = -\frac{v_0}{\omega} \cos \omega t + Y \quad (3.74)$$

を得る。これらから電子の軌道は円運動となり、この運動をサイクロトロン運動と呼ぶ。ただし、 $X, Y$  はサイクロトロン運動の中心座標である。

### 3.3.2 一様磁場下における電子波束の運動

本節では時間依存シュレディンガー方程式を数値的に解くことで一様磁場中における電子波束の時間発展を検討し、上で求めた古典軌道との対比を行う。

計算条件 磁場  $B_z = 2.0$  a.u. 速度  $v_0 = 2.0$  a.u. の条件で数値計算を行い、波束の重心位置の運動を求めた。ただし計算には原子単位を用いた。この条件におけるサイクロトロン半径  $r_c$  及び周期  $T_c$  は

$$r_c = \frac{mv}{eB_z} = 2 \text{ a.u.} \quad (3.75)$$

$$T_c = \frac{2\pi m}{eB_z} = \pi \text{ a.u.} \quad (3.76)$$

である。期待される電子の古典軌道を、図 3.13 (左) に示す。

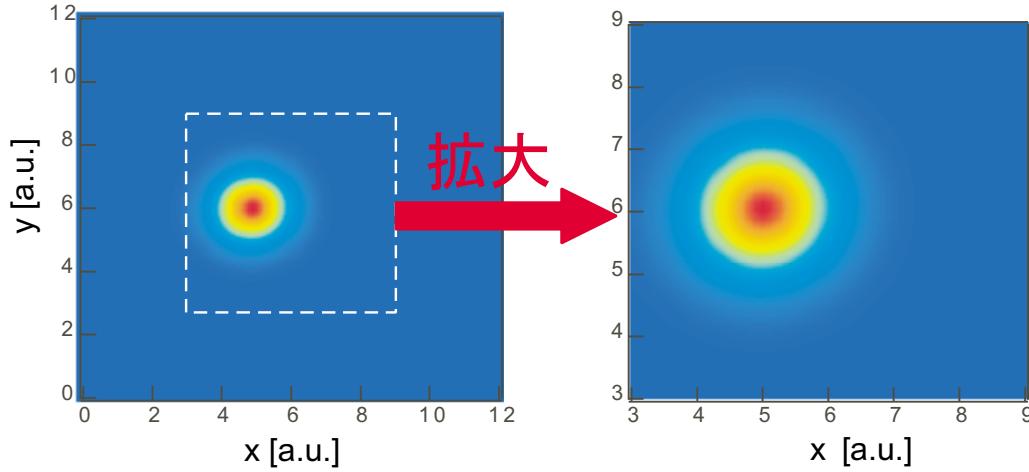


図 3.10 二次元平面における電子波束の密度分布の平面図。時間発展計算を一方向へのメッシュ点として 96 点とり、空間刻み・時間刻みをそれぞれ  $\Delta x = 1/8$  a.u.,  $\Delta t = 1/64$  a.u.、初期中心座標  $(x_0, y_0) = (5, 6)$ ,  $(k_x, k_y) = (0, 2)$  で行った。

次に、量子系での電子の軌道を求める。初期波動関数としてはこれまでと同様、ガウス波束を考える。 $z$  方向に垂直な一様磁場をあらわすベクトルポテンシャルとして、

$$\mathbf{A}(x) = (-By, 0, 0) \quad (3.77)$$

を選ぶ。このベクトルポテンシャルの下での波動関数は

$$\phi(\mathbf{r}, t) = \frac{1}{\pi^{1/4} \sqrt{d}} \exp \left[ -\frac{(\mathbf{r} - \mathbf{r}_0)^2}{2d^2} \right] \times \exp \left[ \frac{ieB}{\hbar} (x - x_0)(y - y_0) \right] \quad (3.78)$$

とあらわされる（ただし系の中心を  $(x_0, y_0)$  とした）。この初期波動関数の確率密度を二次元平面であらわした図を 3.10 で示す。

計算結果 計算の結果得られた、波動関数の時間発展を電荷密度分布の一定時刻毎のスナップショットとして図 3.11 に示した。二次元平面上の矢印は各位置での運動量ベクトルを書き出したものである。電子波束は一様磁場からの力を受けてサイクロトロン運動をする。その際、電子波束はサイクロトロンの半周期までは拡がりながら時間発展するが、半周期を境に拡がりを減じていき最終的に一周を終えたところではもとの状態へ戻ることがスナップショットを見ることで理解される。

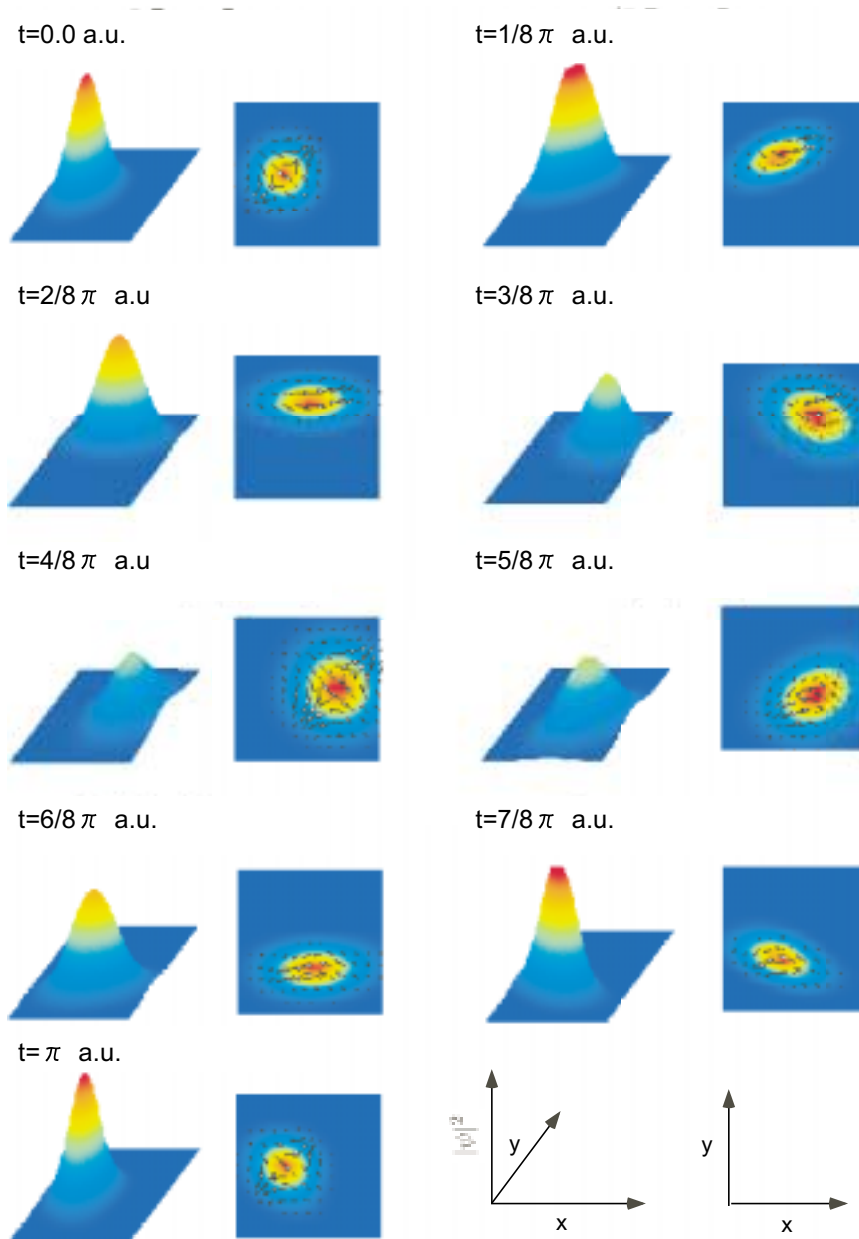


図 3.11 各時刻における電子波束の確率密度分布。二次元平面上の矢印は各位置での運動量ベクトルを示す

一周期で元の形に戻る理由 第2章で論じたように外場のない自由空間を運動する電子波束は時間の経過とともに空間的に広がるという性質を持つ。これに対して、一様磁場の下での電子波束の挙動を見るとサイクロトロン運動の一周期ごとに元の形に戻っていることがわかる。この理由を考えてみよう。初期波動関数としておいたガウス波束は、様々な波数成分の重ね合わせで表現できる。このとき、波数成分 (位相速度) に応じてサイクロトロン半径が決定され、それぞれの成分毎に異なった半径を持つが、これに対してその周期は全て同一となる。このため一周期が経過するとガウス波束の各成分の位相が再びそろることになり、元のガウス波束の形状に戻る。図 3.12 で、そのイメージを模式的にあらわした。赤線は位置の期待値、白の点線がそれぞれの波数成分のもつサイクロトロン半径を示す。

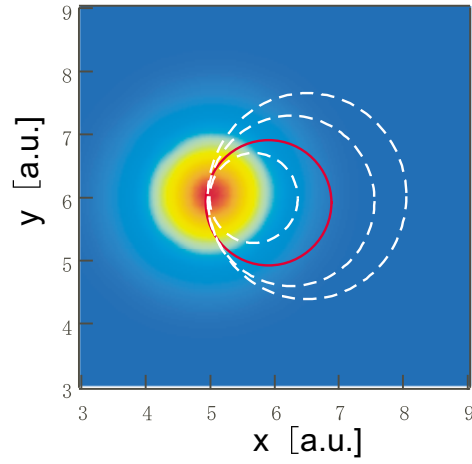


図 3.12 電子波束のサイクロトロン運動の模式図。赤線が位置の期待値。白の点線がそれぞれの波数成分のもつサイクロトロン半径を示す。

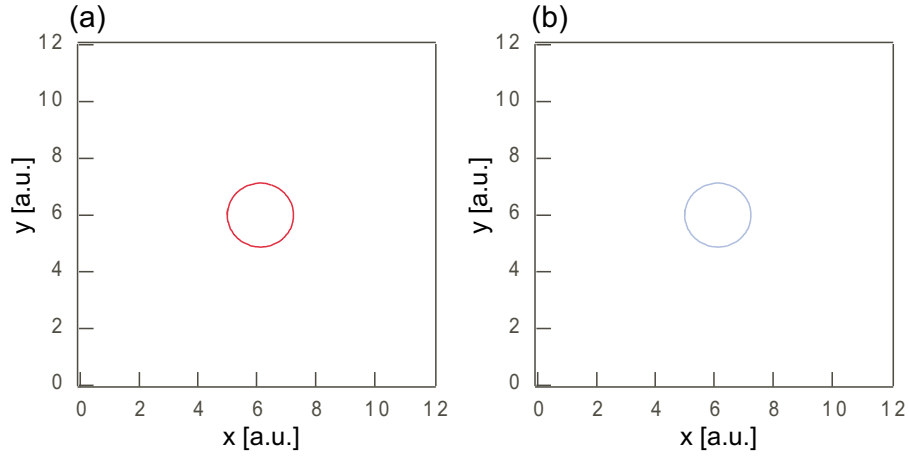


図 3.13 (a) サイクロトロン運動の古典軌道。(b) 電子波束の位置期待値の軌跡

電子波束の位置期待値の軌跡 時間ステップ毎の位置期待値  $\langle \mathbf{r} \rangle$  の軌跡を、図 3.13(b) に示す。古典軌道と比較すると電子波束の位置の期待値は古典軌道と同じ円軌道を描いていることが分かる。このことから一様磁場の下での電子波束の運動は、古典軌道との比較を通して解析可能であることが明らかになった。このような良い一致は閉じこめ場のサイズが比較的大きく多くの固有状態で波動関数を展開できることに起因する。これに対して、小数の固有状態で展開されるような閉じ込めの強い系においては古典軌道からのずれが顕著になることが考えられる。

### 3.3.3 楕円型ポテンシャル場における電子波束の動力学

本小節では、前節で導入した古典軌道からの解析を用いて、楕円型ポテンシャル場中を運動する電子波束の動力学的な検討を行う。楕円は一つの焦点から打ち出した光線がもう一つの焦点へ収束するという特徴を有し、この性質を利用して電子波の運動を制御することが Heremans らによって試みられている<sup>33)</sup>。彼らは楕円型ポテンシャル場を AlGaAs/GaAs ヘテロ構造中に作製し、一様磁場と組み合わせることで楕円を用いた電流制御に成功している。しかしながら、彼らは一連の実験の中で電子の軌道を簡単な幾何光学からの対比からのみ考慮しており、実際に電子の収束がどのような機構によってなされたのかについては、電子の波動性を踏まえた定量的解析が待たれていた。これに対して、本節では電子波束の運動を通して、楕円型ポテンシャル場における電子の収束性を検討することでこれらの問題を検討する。

## 系の設定

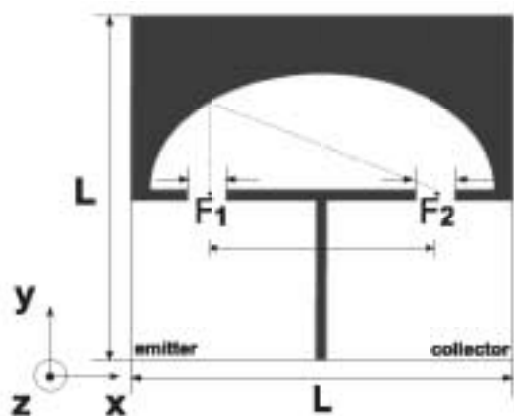


図 3.14 楕円型ポテンシャル場の模式図。ポテンシャル障壁の高さを無限に高いとし、実験との対応を考えて、系のサイズ  $L$ 、焦点間の光学距離  $2a$  ( $a$  は楕円の長軸の長さ)、焦点間の距離 ( $F_1$  と  $F_2$  の直線距離) および焦点の開口部の長さの比を  $10:9:6:1$  とした。ただし  $L = 128$  a.u. (1267.2 nm) と設定した。また、電子波束を焦点  $F_1$  から初期運動量  $(0.0, 2.0)$  a.u. で打ち出す。

図 3.14 のような楕円型ポテンシャル場を考える。GaAs 中の電子の運動を仮定し、GaAs の有効質量及び誘電率を用いて有効原子単位系を構成した (付録 F 参照)。Heremans らによる実験との対応を考えて、系のサイズを  $L$ 、焦点間の光学距離を  $2a$  (ただし  $a$  は楕円の長軸の長さをあらわす) とし、これらと焦点間の距離および焦点位置にけた開口部との比を  $10:9:6:1$  とした。ただし  $L = 128$  a.u. (1267.2 nm) である。また、焦点  $F_1$  から打ち出す電子波束の初期運動量を  $(0.0, 2.0)$  a.u.、初期幅を  $d = 6$  a.u. であると設定した。これらの条件の下で片方の焦点  $F_1$  から打ち出した電子波束のもう一方の焦点  $F_2$  への収束とその動力学的検討を行った。

## 楕円型ポテンシャル場における荷電粒子の古典軌道

まず、電子波束の運動を考える前に楕円型ポテンシャル場における荷電粒子の古典軌道を求めた。図 3.15(a) は磁場がゼロの場合における荷電粒子の古典軌道をあらわす。古典軌道は Newton 方程式を数値的に解くことで求めた。楕円の幾何的性質からどの角度へ打ち出した場合においても、粒子は楕円型障壁に対する反射によってもう一方の焦点へ到達することがわかる。これに対して、 $z$  方向へ一様磁場を印加すると荷電粒子の軌道はローレンツ力によって曲げられ、必ずしも焦点へ到達するとは限らなくなる。様々な磁場に対して荷電粒子の古典軌道を計算し、焦点への

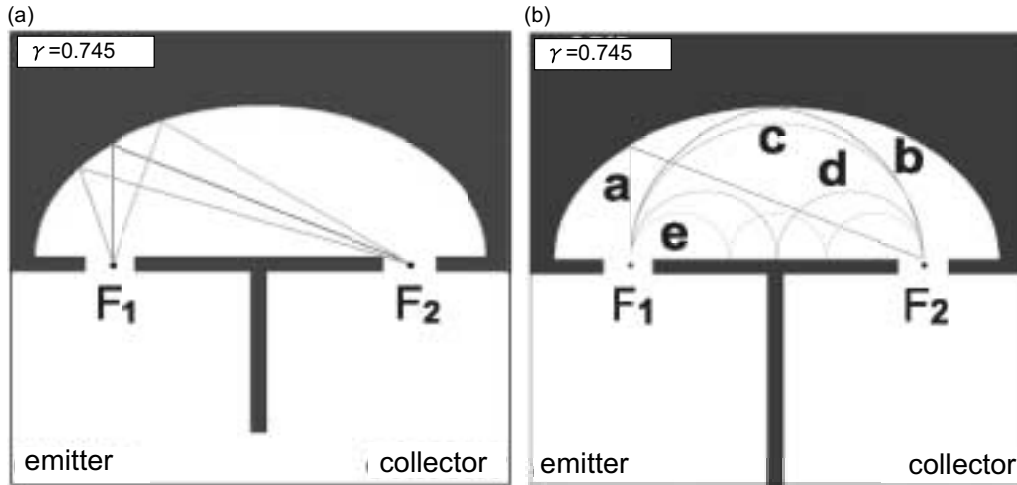


図 3.15 (a) Newton 方程式を数値的に解くことで求めたゼロ磁場における荷電粒子の古典軌道と、(b)  $z$  軸に平行な一様磁場下における荷電粒子の古典軌道。軌道 a はゼロ磁場の場合の軌道を、b~e はそれぞれ一様磁場下において焦点への収束が起こる軌道をあらわし、順に  $B = 0.0462, 0.0521, 0.1042, 0.1563$  a.u. である。

到達が実現される軌道を示したのが図 3.15(b) である。その結果、楕円の効果を受けずサイクロトロン運動で到達する場合に加えて、楕円とサイクロトロン運動の組み合わせにより焦点への到達が起きることが明らかとなった。

#### 楕円ポテンシャル場の形状と電子波束の運動

古典軌道の解析結果を踏まえて電子波束の時間発展の解析を行った。まずゼロ磁場において、電子波束を楕円の一つの焦点  $F_1$  から前述の条件で楕円領域へ打ち出し、もう一つの焦点  $F_2$  への収束性を調べた。図 3.16 に電荷密度分布の時間発展を  $t = 0 \sim 80$  a.u. まで 20 a.u. ごとに切り出したスナップショットを示した。焦点  $F_1$  から打ち出された波束は  $t = 20$  a.u. においては楕円型障壁へ到達して反射し干渉を示す。続いて  $t = 40$  a.u. においては楕円の幾何学的特徴から壁面で反射した波束はもうひとつの焦点  $F_2$  へ向けて進行し、 $t = 60$  a.u. では電子波束の中心は焦点  $F_2$  へ到達する。ただし、波束の時間と共に広がるという性質から、全ての成分はコレクター領域へは流入せず一部は焦点を外れ楕円領域へと反射していくという結果となった。これは古典軌道における到達確率 1 とは大きく異なる描像であり、電子の波動性を考えることで初めて理解される結果である。

波束の時間発展に伴う重心位置の軌跡と古典軌道とを比較した結果を図 3.16 の右下に示す。電子波束が楕円の幾何学的特徴をよく反映した運動をすることが理解出来る。ただし、上で述べたように波束の広がりによる反射のために焦点付近における波束の位置期待値の軌跡は古典軌道とは異なるものとなった。

**楕円の形状と電子波束の収束性の関係** 楕円の形状が電子波束の運動に与える影響を検討した。楕円形状を特徴づける量として長軸  $a$  と短軸  $b$  の比  $\gamma = b/a$  を定義し、 $\gamma = 0.45 \sim 1.00$  の楕円型ポテンシャル場における電子波束の収束率を調べた。収束率は電子波束が焦点  $F_2$  を通過した後の、コレクター領域における電子の存在確率であるとし、また焦点間距離  $2a$  を保存するため長軸の長さを固定した。結果を図 3.17 に示す。横軸を  $\gamma$ 、縦軸に収束率を取った。興味深いことに波束の収束率は  $\gamma = 0.722$  付近で極小をとるが、楕円が真円に近い  $\gamma \sim 1$  および扁平になる  $\gamma \sim 0.45$  付近においては高まるという結果が得られた。

このような楕円の形状による顕著な収束性の違いを理解するために、 $\gamma = 0.500, 0.722, 0.903$  における電子波束の電荷密度分布の時間発展を示したのが図 3.18、3.19、3.20 である。それぞれに対して、古典軌道と波束の軌跡を比較した結果を右下の図において示している。まず、楕円が真円に近い  $\gamma = 0.903$  におけるスナップショット (図 3.20) を

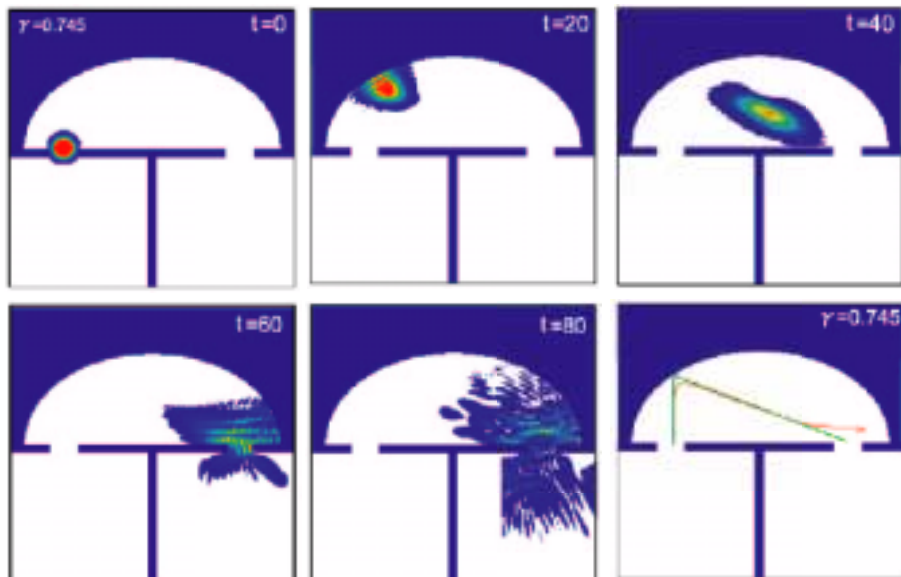


図 3.16 数値計算により得られた電荷密度分布の時間発展を  $t = 0 \sim 80$  a.u. まで 20 a.u. ごとに切り出したスナップショット。最後の図は古典軌道と電子波束の重心位置の期待値の軌跡を重ねて表示している。楕円の形状は  $\gamma = 0.745$  とした。

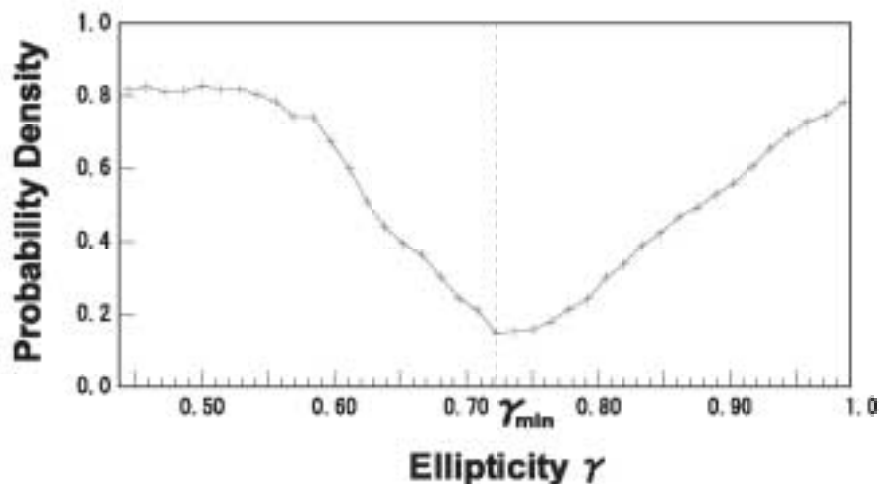


図 3.17 楕円性  $\gamma = b/a$  と焦点への収束率の関係。収束率は電子のコレクター領域における存在確率が一定値となった値であると定義している。

見てみると、電子波束は楕円の壁面で反射し、もう一つの焦点へきれいに収束しているのが見て取れる。これは古典軌道から予測された運動であり、電子波束の重心位置の軌跡と古典軌道との比較を行った結果からもそれがよく成り立っていることが理解できる (図 3.20 右下)。これに対して、収束性の高かった  $\gamma = 0.500$  におけるスナップショットを見ると、電子波束の運動は真円に近い場合 ( $\gamma = 0.903$ ) とは大きく異なっている (図 3.18)。電子波束は楕円壁面で反射した後もう一方の焦点へ向かうが、自らの拡がりによって  $T$  型部分のポテンシャル障壁にも反射され、それが繰り返されることで複雑な干渉縞を作りながら運動していく。このときもはや電子は局在した状態ではなく、古典軌道とは異なる軌道を通して焦点へ収束していることも同時に理解される (図 3.18 右下)。最後に、収束率の極小を与えた  $\gamma = 0.722$  における電子波束の時間発展を見てみると、上で見た二つの領域に対して中間的な運動であること



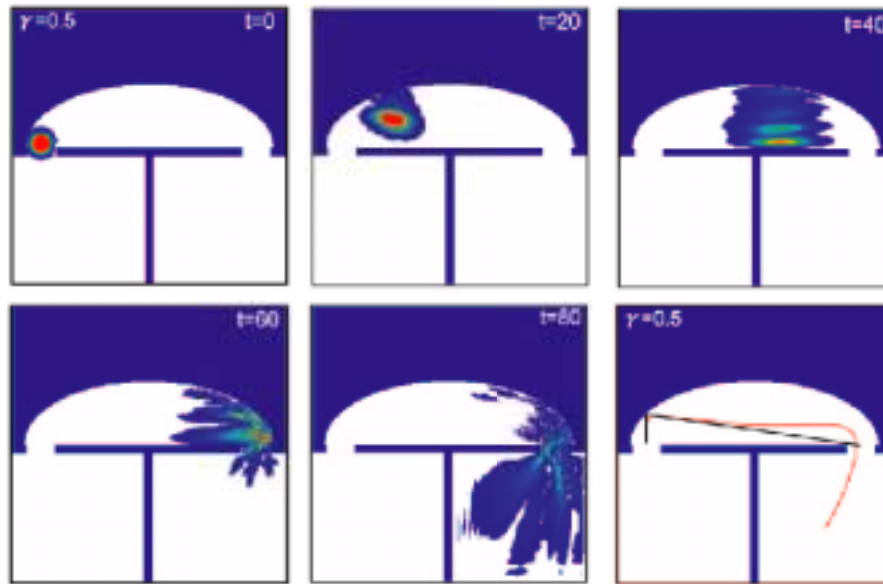


図 3.18  $\gamma = 0.500$  の楕円型ポテンシャル場における電荷密度分布の時間発展。 $t = 0 \sim 80$  a.u. まで 20 a.u. ごとに切り出した。最後の図は古典軌道と電子波束の重心位置の期待値の軌跡を重ねて表示している。

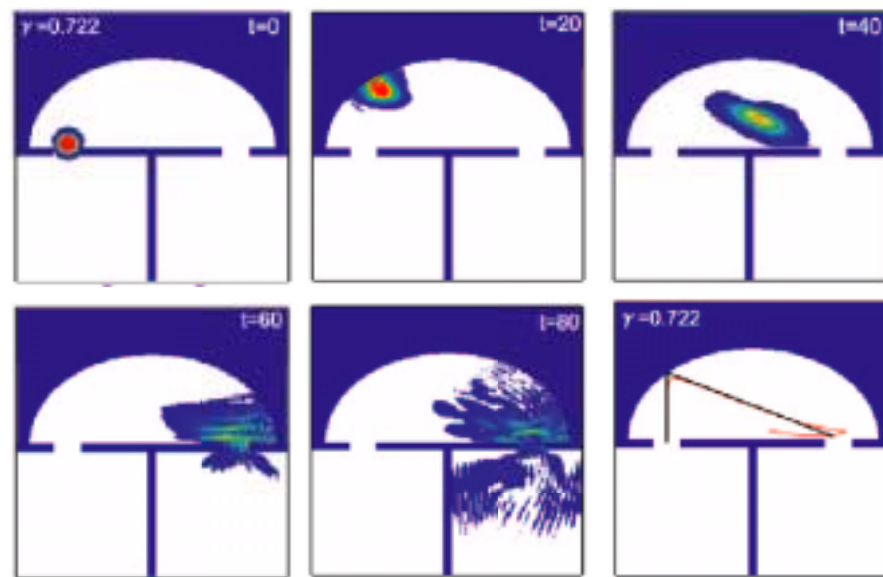


図 3.19  $\gamma = 0.722$  の楕円型ポテンシャル場における電荷密度分布の時間発展。 $t = 0 \sim 80$  a.u. まで 20 a.u. ごとに切り出した。最後の図は古典軌道と電子波束の重心位置の期待値の軌跡を重ねて表示している。

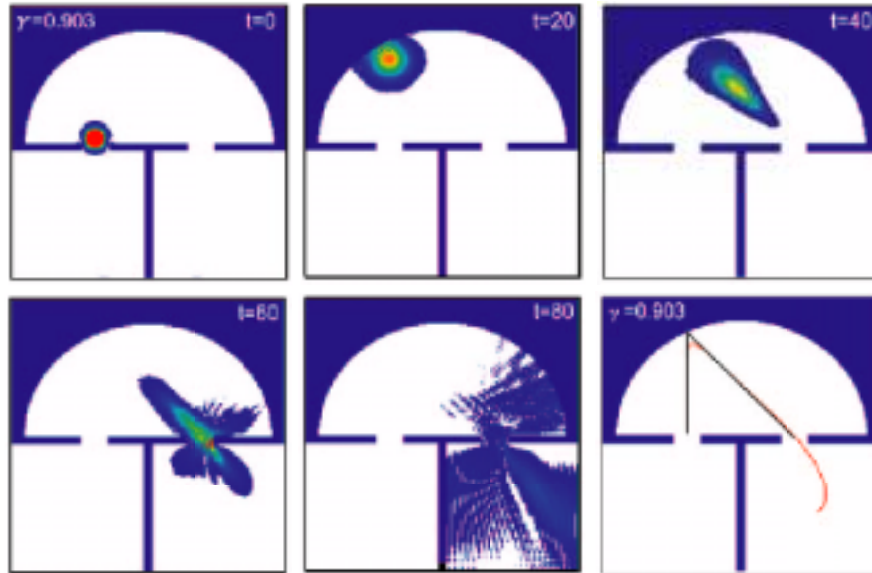


図 3.20  $\gamma = 0.903$  の楕円型ポテンシャル場における電荷密度分布の時間発展。 $t = 0 \sim 80$  a.u. まで 20 a.u. ごとに切り出した。最後の図は古典軌道と電子波束の重心位置の期待値の軌跡を重ねて表示している。

がわかる (図 3.19)。電子波束は楕円壁面で反射し、もう一方の焦点へ向かうが、焦点付近で T 型部分の壁および楕円壁面と干渉を起こし、結果として低い収束性を示すことが明らかとなった。

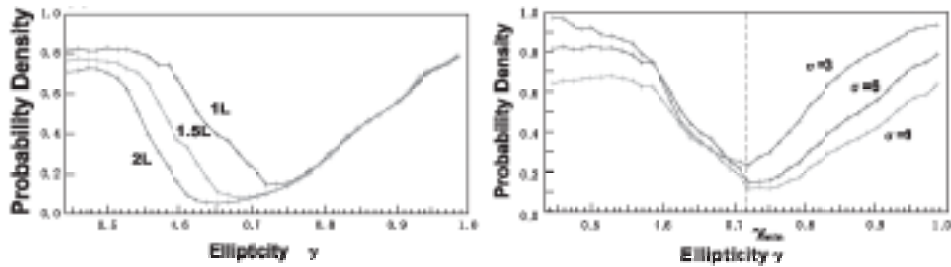


図 3.21 楕円のサイズの違いによる楕円性  $\gamma$  と収束率の関係 (左) および電子波束の初期幅の違いによる楕円性  $\gamma$  と収束率の関係 (右)

さらに、楕円のサイズと収束性の関係および電子波束の初期幅と収束性の関係を調べた結果を図 3.21 に示す。初期条件によって結果に違いがあらわれるが、基本的には楕円領域が広く古典軌道との対応が明瞭である領域、および波の干渉効果が顕著になる領域で収束性が高まり、その中間領域で収束性の極小を持つという結果が得られた。

これらの結果から、楕円型ポテンシャル場において電子の収束性が高まる機構が二つあることが明らかとなった。ひとつは楕円が比較的真円に近く楕円領域が広い場合であり、このとき電子波束の運動は古典的軌道とよく対応したものとなり、高い収束性が得られる。これに対して楕円が扁平になり比較的狭い場合には、電子波の拡がりに伴う壁面との反射による干渉によって、その運動は古典軌道を外れたものとなり、電子波束はもはや局在した状態ではなくなった状態で焦点への流入が起こる。以上の結果から電子波の運動を古典軌道とよく対応する形で制御するためには初期条件の選び方が非常に大切であり、制御の実現を評価するためには系のサイズや構造を含めた慎重な判断が必要であることが明らかとなった。

一様磁場の印可された楕円ポテンシャル場における電子波束の運動

次に、 $z$  方向に一様な磁場を与え、電子波束の収束性を調べた [図 3.22(a)]。ただし、実験との対応を考慮して  $\gamma = 0.745$  の楕円を用いた。

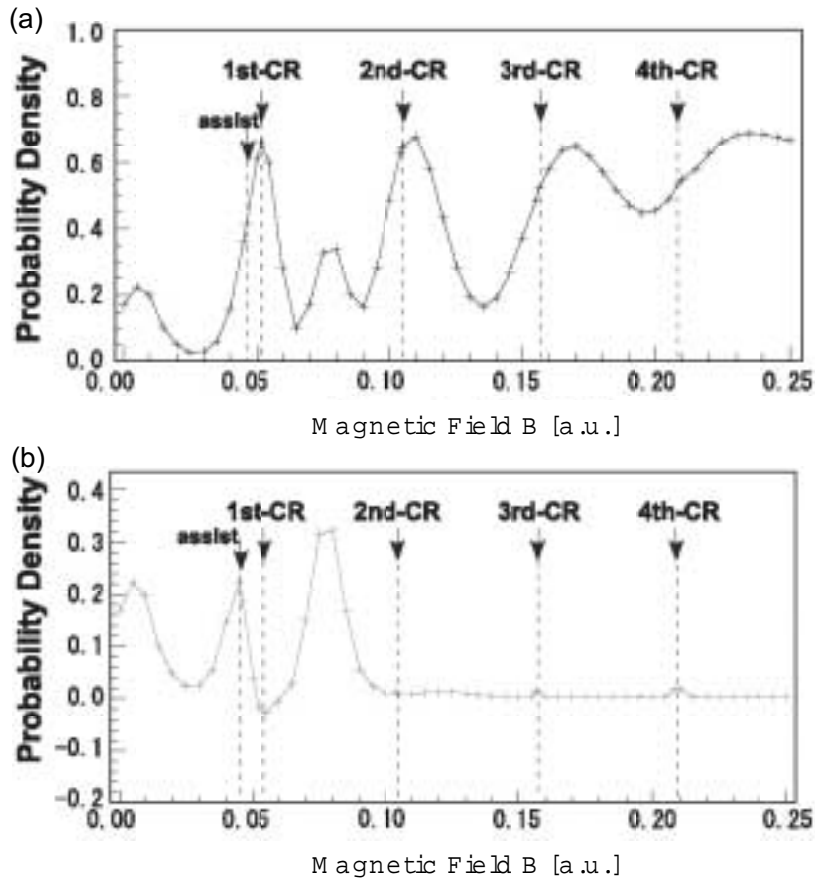


図 3.22 (a) 一様磁場を印加した楕円型ポテンシャル場における磁場  $B$  と電子波束の収束率の関係。(b) 楕円型ポテンシャル場のない場合の収束率と図 (a) との差を取った結果。

$B = 0$  付近および、0.0521, 0.080, 0.1042 a.u. において収束性の高まるピークがあらわれた。このうち  $B = 0.0521$ , 0.1042 a.u. のピークは楕円の影響を受けないサイクロトロン運動によるものであることは古典軌道との対比から明らかである。これに対して、 $B = 0.080$  a.u. におけるピークは古典軌道からは予測されなかったものである。また、古典軌道からの予測では  $B = 0.0462$  a.u. において楕円と磁場の組み合わせによるピークが見られるはずであるが、図 3.22(a) からはよく見ることが出来ない。(  $B = 0.17, 0.23$  a.u. 付近においてもピークが見られるが、これは本来は古典軌道から予測される  $B = 0.1563, 0.2084$  a.u. に現れるべきピークである。このような結果が得られた原因は計算精度の不足による誤差のためと考えられる。空間刻みが足りなかったために、磁場の強い領域のサイクロトロン運動をうまく表現出来なかったことに起因してピークがシフトしたと考えられる。)

より詳細に楕円型ポテンシャル場が電子の運動に及ぼす影響を解析するために、図 3.22(a) において得られた結果から、楕円のない場合 (T 型ポテンシャルのみ) の電子波束の収束率との差を取ることで、楕円による影響をあらわにしたのが図 3.22(b) である。その結果、図 3.22(a) ではよく見えなかった  $B = 0.0462$  a.u. 付近のピークが明瞭にあらわれた。ただし、電子波束の軌道を古典軌道と比較した結果を見ると、基本的には両者は良い一致を示すが電子波束の軌道は前述した波の拡がりによる干渉によって内側へ曲がりながら入射しており、そのため明瞭なピークにな

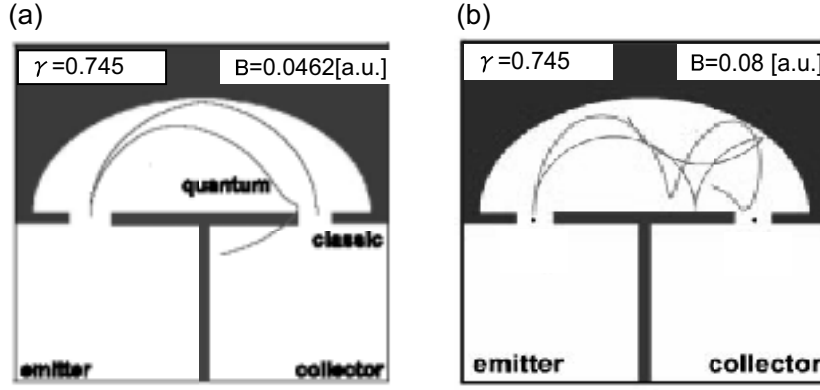


図 3.23 (a)  $B = 0.0462$  a.u. における古典軌道と電子波束の軌跡の比較。(b)  $B = 0.080$  a.u. における古典軌道と電子波束の軌跡の比較。 $\gamma = 0.745$  とした。

らなかったことが明らかとなった (3.23(a))。また、古典軌道からは予測されなかった  $B = 0.080$  a.u. のピークにおいても、電子の波動性が重要な役割を果たしていることが明らかである。これは磁場がゼロの場合における電子波の干渉による収束性の高まりと同様に理解出来る (図 3.23(b))。すなわち電子波束の拡がりによる壁面との反射により、電子は局在した状態ではなくなり、古典軌道からの逸脱が大きくなった結果、この磁場強度において電子波束に与えた初期条件が収束性の高まる条件となったと考えられる。このような古典軌道からは予測出来ないピークを与える磁場は具体的に系に初期条件を与えることで初めて決定されるものであり、初期条件に応じて異なる位置に現れることが期待される。

### 3.4 波束の共鳴トンネリングと共鳴状態寿命

本節では少数個の固有状態を介した電子波の透過の代表例である共鳴トンネリングの検討を行う。共鳴トンネリングは古典的粒子の運動からは予測できない量子論的現象であると同時に、量子ナノ構造を透過する電子波の輸送特性 (電流-電圧特性) を論じる際に不可欠であるという意味でも非常に重要な現象である。本節では特に共鳴トンネリングする電子波束の共鳴状態寿命に着目して議論を行う。空間的に局在した波である電子波束の共鳴状態寿命と、固有状態の立場から求めた平面波に対する透過率曲線からの共鳴状態寿命との関係を明らかにし、初期値問題の立場からの共鳴状態寿命の解析法を提案する。

#### 3.4.1 二重障壁ポテンシャル場における波束の透過率

解析解

$T$  行列を用いる。図のような二重障壁を考える。右側の障壁を原点においてそれ単独での透過振幅を  $t_R$ 、反射振幅を  $r_R$  とすると  $T$  行列は

$$T_R = \begin{pmatrix} 1/t_R^* & -r_R^*/t_R^* \\ -r_R/t_R & 1/t_R \end{pmatrix} \quad (3.79)$$

で与えられる。次に左側の障壁の  $T$  行列を逆方向から見ると

$$T_L = \begin{pmatrix} 1/t_L^* & r_L^*/t_L^* \\ r_L/t_L & 1/t_L \end{pmatrix} \quad (3.80)$$

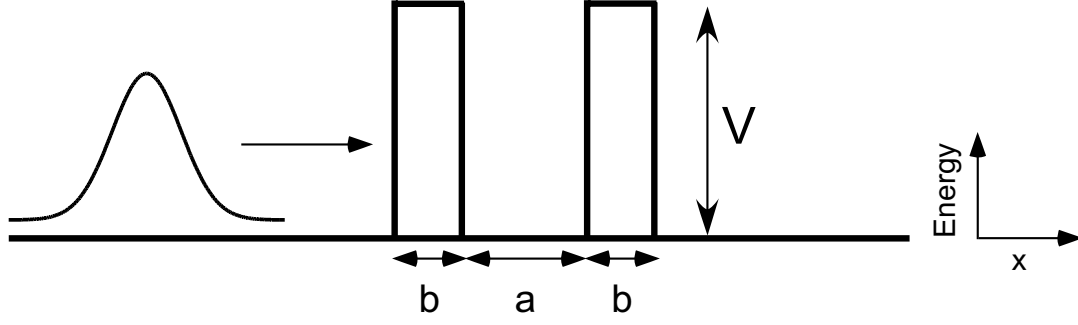


図 3.24 二重障壁の模式図。 $b$  が障壁の幅、 $a$  が障壁間の幅、 $V$  が障壁の高さをあらわす。

である。これらを用いて共鳴トンネルを記述する行列  $T$  を組み立てる。障壁の位置が  $-\frac{1}{2}a$ 、右側の障壁を  $\frac{1}{2}a$  であるとする、 $T$  行列は以下のように与えられる。

$$\begin{aligned}
 T &= \begin{pmatrix} e^{-ika/2} & 0 \\ 0 & e^{ika/2} \end{pmatrix} \begin{pmatrix} 1/t_R^* & -r_R^*/t_R^* \\ -r_R/t_R & 1/t_R \end{pmatrix} \begin{pmatrix} e^{ika/2} & 0 \\ 0 & e^{-ika/2} \end{pmatrix} \\
 &\quad \times \begin{pmatrix} e^{ika/2} & 0 \\ 0 & e^{-ika/2} \end{pmatrix} \begin{pmatrix} 1/t_L^* & r_L^*/t_L^* \\ r_L/t_L & 1/t_L \end{pmatrix} \begin{pmatrix} e^{-ika/2} & 0 \\ 0 & e^{ika/2} \end{pmatrix} \\
 &= \begin{pmatrix} (1 - r_L^* r_R^* e^{-2ika})/t_L^* t_R^* & (r_L e^{ika} - r_R^* e^{-ika})/t_L t_R^* \\ (r_L^* e^{-ika} - r_R e^{ika})/t_L^* t_R & (1 - r_L r_R e^{2ika})/t_L t_R \end{pmatrix} \quad (3.81)
 \end{aligned}$$

この行列の右下の要素の逆数から透過振幅が与えられる。

$$t = \frac{t_L t_R}{1 - r_L r_R \exp(2ika)} \quad (3.82)$$

複素反射振幅を極座標成分を用いて  $r_L = |r_L| \exp(i\rho_L)$  と書くと  $t$  の挙動がさらにわかりやすくなる。以上の議論から結局、透過率  $T$  は

$$T = |t|^2 = \frac{T_L T_R}{1 + R_L R_R - 2\sqrt{R_L R_R} \cos(2ka + \rho_L + \rho_R)} \quad (3.83)$$

$$= \frac{T_L T_R}{(1 - \sqrt{R_L R_R})^2 + 4\sqrt{R_L R_R} \sin^2 \frac{1}{2}\phi} \quad (3.84)$$

と与えられる。ただし、 $R_i = |r_i|^2$ 、 $T_i = |t_i|^2$  は左右の障壁それぞれに対する反射率と透過率を表す。また  $\phi = 2ka + \rho_L + \rho_R$  で、共鳴条件は  $\phi = 2n\pi$  である。

#### 波束の透過率

再び前節までと同様の方法を用いて固有状態の立場から電子波束の透過率を求めたのが図 3.25 である。ただし波束の幅を  $d = 8$  a.u.、障壁の幅  $b$  および障壁間の幅  $a$  をそれぞれ  $a = 0.25$  a.u.,  $b = 4$  a.u. であるとした。横軸には電子波束の波数分布の中心を取っている。波束の  $k$  空間での分布に対応して共鳴ピークにおいても透過率は 1 にはならない。電子のエネルギーがあがるにつれ、共鳴ピークの幅は広くなるため、それに応じて電子波束の透過率も上昇する。

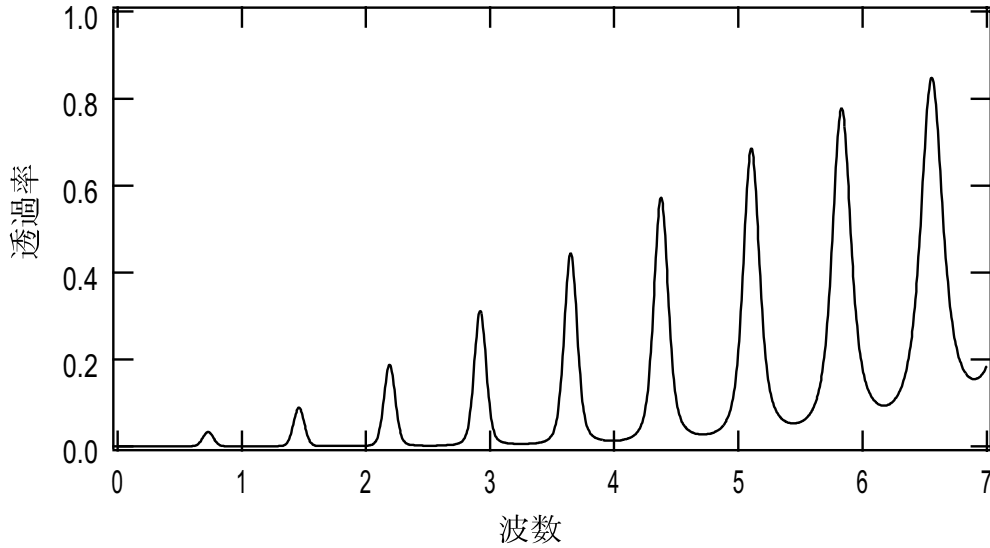


図 3.25 二重障壁解析解から求めた波束の透過率。波束の幅を  $d = 8$  a.u.、障壁の幅  $b$  および障壁間の幅  $a$  をそれぞれ  $a = 0.25$  a.u.,  $b = 4$  a.u.、障壁の高さを  $25.8$  a.u. とした。

### 3.4.2 二重障壁ポテンシャル場における電子の共鳴状態寿命

#### 寿命と透過率曲線のピーク幅の関係

コヒーレントな共鳴トンネリングの場合、電子波の滞在時間は電子の障壁内での往復頻度とトンネル確率によって決まる。二重障壁を透過する電子波の透過率は共鳴ピーク付近では近似的に

$$\begin{aligned} T(E) &= \frac{\Gamma_1 \Gamma_2}{(E - E_r)^2 + (\Gamma_1 + \Gamma_2)^2/4} \\ &= \frac{\Gamma_1 \Gamma_2}{(E - E_r)^2} F_L(E - E_r) \end{aligned} \quad (3.85)$$

と表される。ただし  $E_r$  は共鳴エネルギー、 $F_L$  はローレンツ曲線で

$$F_L(E - E_r) = \frac{(\Gamma_1 + \Gamma_2)^2/4}{(E - E_r)^2 + (\Gamma/2)^2} \quad (3.86)$$

である。

ここで  $\Gamma_1, \Gamma_2$  はトンネルによって生じる準位の幅を決める。これは時間とエネルギーの不確定性による寿命幅と言い換えることもでき、

$$\Gamma_1 = \frac{dE}{d\theta} T_1 = \frac{1}{2b} \left( \frac{dE}{dk} \right) T_1 = \frac{\hbar v}{2b} = \hbar f T_1 = \frac{\hbar}{\tau_1} \quad (3.87)$$

という関係を考えればよく理解できる。ただしここで  $b$  は閉じこめの幅、 $f$  は障壁に挟まれた電子が往復運動によって障壁 1 に達する頻度、 $\tau_1$  は電子波が障壁 1 からトンネルによって外部に出てしまうまでの平均時間を表す。単純な古典描像から理解しようとするれば往復頻度が多いほど電子は透過する機会が多くなり、またトンネル確率が高いほど一回の衝突における透過量は多くなるということである。これを反映して電子波の共鳴状態の寿命は高いエネルギー準位を通過する場合ほど短くなるということが理解できる。実際に障壁の幅と高さおよび障壁間の距離の値を入れて寿命を計算した結果が表 3.1 である。

表 3.1  $a = 0.25$  a.u.,  $b = 4$  a.u.,  $V_0 = 25.8$  a.u. の二重障壁に対する共鳴状態寿命

$k$	$T_i$	$\Gamma_i$	$\tau_i$	$\Gamma$	$\tau$
0.74	0.00497	0.000460	2175.29	0.000919	1087.64
1.48	0.02015	0.00373	268.318	0.007458	134.16
2.20	0.0454	0.0125	80.04	0.02500	40.02
2.92	0.0822	0.0300	33.35	0.0600	16.67
3.65	0.132	0.0604	16.57	0.121	8.28
4.38	0.196	0.108	9.30	0.215	4.65
5.62	0.337	0.237	4.22	0.474	2.11

### 波束の共鳴状態寿命

ここでは波束の時間発展を初期値問題として扱った場合の共鳴状態寿命を求める方法の提案を行う。電子波束の透過過程を調べ、その時間発展に対して有効共鳴状態寿命を定義し、それを上で求めた固有状態からの共鳴状態寿命との比較を行うことで定義の妥当性を検討した。その中で、共鳴構造への波束の入射時間が波束の初期幅（エネルギー分散）に大きく依存するのに対して、減衰時間は波束の条件によらずほぼ一定値となり、またそれが透過率曲線から求まる寿命とよく対応した量であることを明らかにする。固有状態の計算などの複雑な計算を用いることなく初期値問題として波束の運動を取り扱うことで共鳴寿命を見積もることが出来るのは魅力的である。

### 有効寿命の定義

図 3.26 は  $k = 2.92$  a.u. のピークに入射した電子波束の二重障壁内部における存在確率の時間変化をプロットしたものである。電子波束の入射によって、障壁内での存在確率が高まり、共鳴状態が形成され、それがまた時間と共に流出していく様子がよくわかる。ここで電子波束の共鳴状態寿命をこの電子の存在確率の時間変化から見積もることを考えた。共鳴状態の寿命を流入と流出にわけそれぞれを電子波束の二重障壁内部における存在確率が最大になる点から  $1/e$  になる点までの時間であると定義した。流入までの時間を  $\tau_{\text{in}}$ 、流出までの時間を  $\tau_{\text{out}}$  とし、合計時間を  $\tau_{\text{eff}}$  とした。以下ではここで定義した、有効共鳴状態寿命を固有状態の立場から求めた共鳴状態寿命と比較することで、初期値問題からの共鳴状態寿命の解析法について論じる。

$k_0 = 2.20$  a.u. の共鳴ピークについて上で定義した共鳴状態寿命を計算した。

### 有効寿命の初期位置依存性

電子波束の初期位置  $x_0$  の変化に対する共鳴状態寿命を調べた。波束の幅は 16 a.u. に固定し、波束の初期位置  $x_0$  を 40 a.u. ~ 140 a.u. まで変化させ計算を行った。図 3.27 を見るとわかるように流入時間  $\tau_{\text{in}}$  は初期位置にほぼ比例して変化した。これは初期位置が遠いことで、障壁への到達時間が長くなるため波束の実空間での拡がりが大きくなっていくからであると考えられる。端的に言えば広がった波束が入射するので流入に時間がかかるということである。これに対して流出までの時間に変化はあらわれなかった。初期位置を変えても運動量空間における波数分布自体は変わらないため、状態が形成されてからの寿命に変化があらわれなかったと解釈することが出来る。

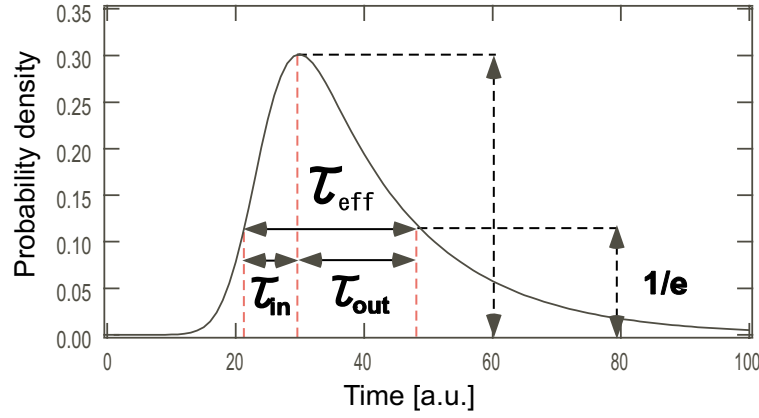


図 3.26  $k_0 = 2.92$  a.u. の条件で入射した電子波束の二重障壁内における存在確率の時間変化。最大値から  $1/e$  となる点間を有効共鳴状態寿命  $\tau_{\text{eff}}$  と定義した。また最大値までの幅を  $\tau_{\text{in}}$ 、最大値から  $1/e$  までの幅を  $\tau_{\text{out}}$  と定義した。

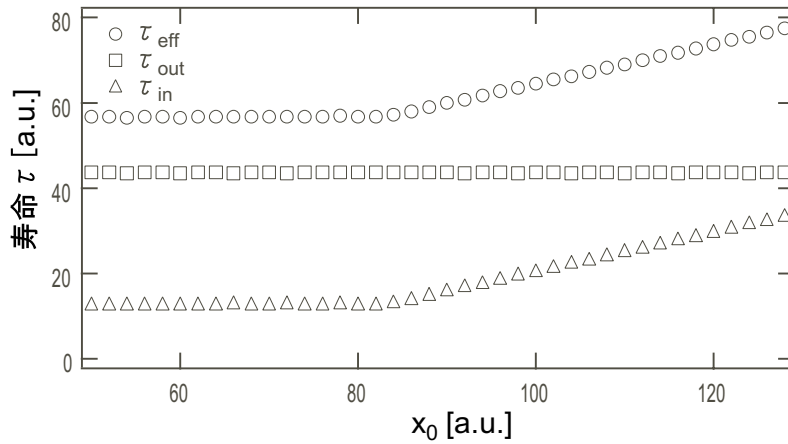


図 3.27  $k_0 = 2.20, d = 16$  a.u. で固定し、波束の初期位置  $x_0$  を変化させた場合の共鳴状態寿命。

#### 有効寿命の波束の幅依存性

次に有効共鳴状態寿命の初期波束幅に対する依存性を調べた。 $k_0 = 2.20, 2.92$  a.u. の 2 つの共鳴ピークについて計算を行った。各共鳴状態ごとの寿命を波束の幅に対してプロットしたのが図 3.28 である。図を見るとわかるように電子波束の初期幅（つまり  $k$  空間での分布幅）に応じて流入時間  $\tau_{\text{in}}$  および減衰時間  $\tau_{\text{out}}$  は変動するが流出までの時間が大きく変動するのに対して減衰時間はそれほど変化しない。この結果についてもう少し考察を進める。

電子波束の幅と準位幅との関係 すでに見たように固有状態から求まる透過率曲線の共鳴ピークの幅  $\Gamma$  の逆数から電子の共鳴状態寿命が決定される。この幅と入射電子波束の  $k$  空間における幅 ( $d_k = 1/d$ ) との関係で、波束の振る舞いが決定されると考えられる。ただし  $d$  は波束の実空間における幅をあらわす。波束のエネルギー的拡がりを

$$d_E = \frac{1}{2}[(k_0 + d_k)^2 - (k_0 - d_k)^2] \quad (3.88)$$

と定義する。ただし波束のエネルギー幅は波数に対して対称であるので強度に対して均等ではないことに注意が必要である。



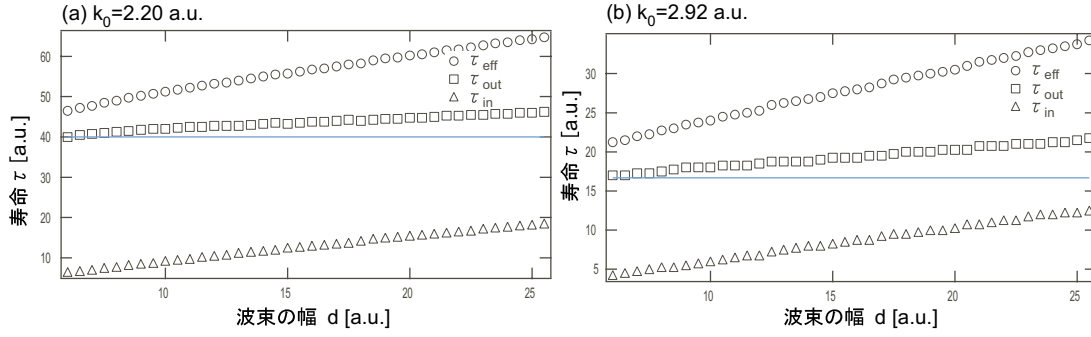


図 3.28  $k_0 = 2.20, 2.92$  a.u. それぞれの条件で、波束の幅を変えて電子波束を入射した場合の共鳴状態寿命。青い線は平面波の透過率曲線から求まる共鳴状態寿命をあらわす。

$d_E < \Gamma$  と  $d_E > \Gamma$  の場合でそれぞれ波束の共鳴状態寿命の振る舞いに大きな違いがあらわれることが予想される。 $d_E < \Gamma$  の領域では波束の拡がりのほうが準位幅よりも大きいために波束の流出寿命が  $\tau$  に近くなり、ほぼ一定値になると予想されるが、これに対して  $d_E > \Gamma$  の領域では波束のエネルギー幅が準位幅  $\Gamma$  に比べて小さくなるため寿命が長くなっていくと考えられる（拡がりゼロになる極限では入射波が平面波になり、寿命は無限大ということになる）。実際に得られた結果がどのような条件下のもとであったか調べるために上の図の横軸を実空間幅から  $k$  空間幅に変えてプロットし直した（図 3.29）。

結果を見ると傾向はあっているが定量性という点に疑問が残った。 $k_0 = 2.20, 2.92$  a.u. それぞれに対する  $\Gamma$  は  $0.025$  a.u.,  $0.060$  a.u. であり、今回の計算条件では波束は  $\Gamma$  よりも比較的大きな拡がりを持っていたことがわかる。それにもかかわらず波束の幅の減少に応じて有効共鳴状態寿命は上昇している。一つ考えられるのは計算誤差であるが、空間刻みを変えて同様の計算を行った結果にも違いは表れなかったことから、計算誤差の可能性は低いと思われる。このような結果となった原因は恐らく波束のガウス分布の肩が寿命幅に匹敵してきたことにより、定義した幅よりも実効的には狭いエネルギー拡がりを拾ってくるということである。より詳細な議論のためには他の条件においても検討を行う必要があるが、基本的には波束の幅を共鳴ピークの幅に対して適切に選ぶことにより、初期値問題から共鳴状態を検討可能であることが明らかとなった。

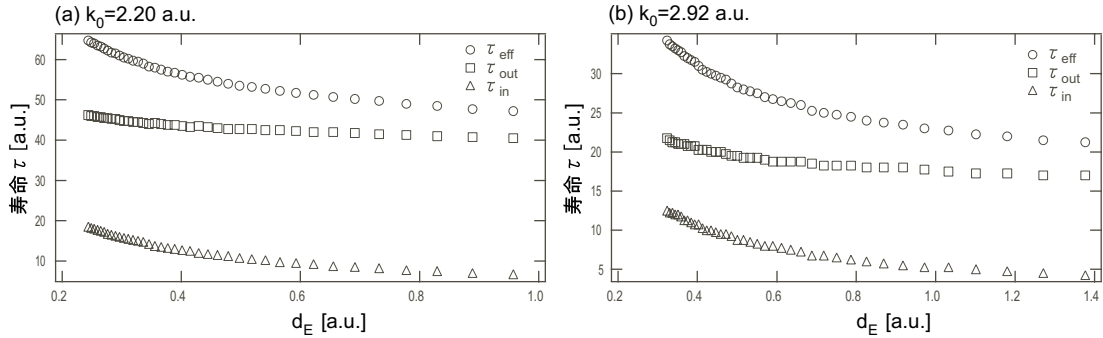


図 3.29 図 3.28 の横軸を  $d_E$  として取り直した結果をあらわす。

### 3.5 結論

本章では量子ナノ構造を構成する基本要素である静的ポテンシャル場中における電子波束の運動を検討した。電子波束のポテンシャル場に対する入射と透過を透過率、 $k$  空間における波数分布、古典軌道との対比、共鳴状態寿命を

通して解析する方法論を導入し、時間発展を初期値問題として扱う際の解析手法の確立を行った。

一次元階段型及び箱形ポテンシャル場における電子波束の運動に対して時間発展計算により、その透過率および透過波の波数分布を求め、さらに固有状態からの結果と比較することで初期値問題からのアプローチの特徴および物理量の解析法を明確化することに成功した。また一様磁場中における電子波束の運動に対しては古典軌道との対比から電子波束のサイクロトロン運動の検討を行った。また、電子波束の時間発展の特徴として、波数成分ごとにサイクロトロン半径が異なることに起因してサイクロトロン運動の間に波束の拡張と収れんが繰り返されることを指摘した。さらにこれらの知見を踏まえて、楕円型ポテンシャル場中を運動する電子波束の動力学の検討を行った。楕円の形状と電子波束の焦点への収束率の関係に焦点を当てて定量的解析を行い、その結果、比較的楕円が比較的大きく真円に近い構造である場合にはポテンシャル場を運動する電子波は連続に近い固有状態で展開可能であることに起因して古典軌道からの解析が有効であるのに対し、楕円が扁平で比較的狭い場合には、電子波束の拡がりに伴う壁面との反射による干渉によってその軌道は古典軌道からのずれが無視出来なくなることを見出した。これらの結果から、古典的軌道との対応で実験的に電子の運動を制御する場合には、電子の収束が実際にどのような機構によって生じたのか詳細に検討する必要があることが明らかとなった。最後に電子波の共鳴トンネリングに対して、初期値問題の立場から、透過率および共鳴状態寿命の解析を行うための方法論を検討した。その結果、透過率については階段及び箱形ポテンシャルと同様に共鳴トンネリングに対しても定量的な議論が可能であることを示した。また波束の共鳴状態寿命を「電子の障壁間における存在確率が最大値から  $1/e$  になる時間である」と定義することで解析を行った。その結果、状態が形成されてからの共鳴状態の減衰時間 ( $\tau_{\text{out}}$ ) が共鳴状態寿命に相当することが透過率曲線から求められる共鳴状態寿命との比較により明らかとなった。この共鳴状態寿命を用いて解析を行うことで、固有状態を求めるのが難しい複雑な形状の共鳴構造に対しても共鳴状態寿命を容易に求められることが期待される。一方、波束の条件によって電子の流入過程には大きな変化があらわれた。このことから振動電場などによる電子波の変調を考える際には電子の流入過程と相互作用の時間スケールが同じ程度であると電場による変調効果に大きな違いがあらわれることが期待される。本節で提案した共鳴状態寿命に対する解析法を用いることで電子波の流入過程、透過過程に新たな洞察が得られることが見出された。

## 第 4 章

# 動的ポテンシャル場における量子的に閉じ込められた電子の動力学

本章では動的なポテンシャル場における量子的に閉じ込められた電子の動力学について議論する。まず、量子的に閉じこめられた電子と外部から印加された電磁波との相互作用に対する一般的描像を半古典近似の観点から俯瞰する。次に、二準位系を仮定し、電気双極子近似の下での電子の時間発展を非摂動固有状態および Floquet 状態からそれぞれ検討する。回転波近似の成立を一つの基準として電子の時間発展の電場強度依存性を議論し、その中で共鳴的遷移に伴う Rabi 振動に注目して理論的定式化、数値計算の両面からその特徴を明らかにする。最後に、これらを踏まえて、電磁場の印加された量子井戸に対して、実空間格子を用いた時間発展計算を行い、得られた結果を二準位近似との整合性およびその限界点に焦点を当てて検討する。序論においても述べたように、系の時間発展を初期値問題として評価する場合には計算の結果得られる各時刻の波動関数およびそれに伴う物理量の時間変化に対するデータは膨大なものとなる。この問題に対して、本章では物理量の時間変化を逐次的に評価するのに加えて、各時刻に得られた波動関数を系の特徴的な状態へ射影する方法論を提案する。特徴的な状態として量子閉じこめ場の非摂動固有状態および周期的な外場によって生じた時間方向への結晶状態 (Floquet 状態) を取り上げ各状態への射影を行い、電磁場と相互作用した電子がどのような内部状態の変化を伴って時間発展していくのか、それがまた物理量や現象にどのように寄与していくのか検討を行う。その中で、初期値問題としてのシュレディンガー方程式の数値解法は、一光子過程などの低次の相互作用のみならず、多準位の関与した種々の高次の相互作用が取り込まれた結果を与えること、さらに射影法による解析がそれら複雑な時間発展の時系列を追った解析に有効であることも明らかにする。

### 4.1 電子-光子相互作用と二準位系の時間発展

本節では、電気双極子近似の下での離散化固有状態を持つ電子の動力学を、主に二準位近似の立場から検討する。非摂動固有状態、Floquet 状態で波動関数を展開し、そのそれぞれにおいてどのような物理描像を見ることが出来るのか考察する。最初に電気双極子近似を適用した場合の電子-光子相互作用項について述べる。次に、非摂動固有状態で波動関数を展開し、二準位回転波近似のもとでの電磁波による電子の共鳴遷移について論じ、続いて回転波近似の条件を除いた場合に電子の運動にあらわれる高周波成分について、二準位の各係数の時間発展を数値的に解くことで考察する。最後に Floquet 状態の理論について述べ、二準位 Floquet 状態の立場から電子の光学過程を検討する。その中で、非摂動固有状態の場合と同様、回転波近似の有無による電磁波に対する電子の運動について論じる。

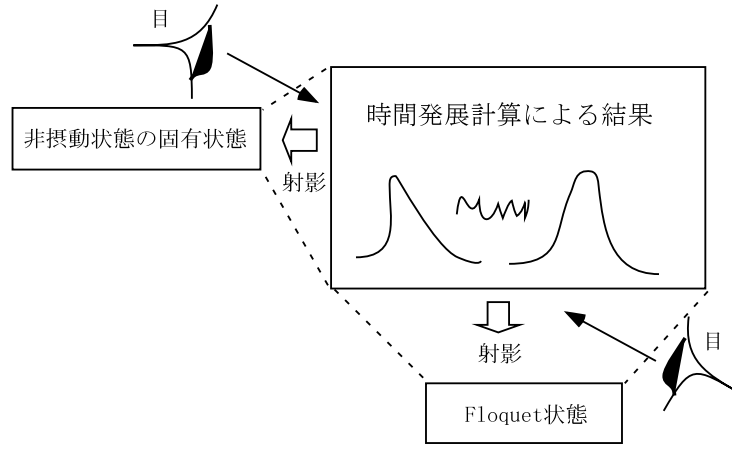
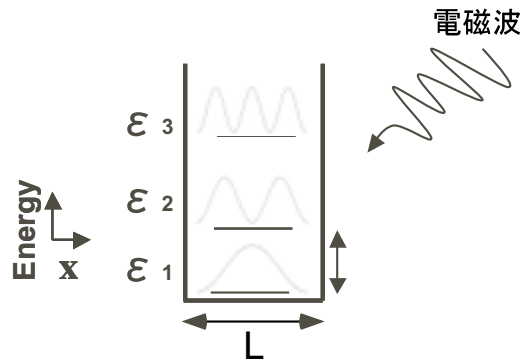


図 4.1 射影の模式図

図 4.2 無限井戸型ポテンシャル場へ入射する電磁場の模式図。各準位のエネルギーを  $\epsilon_i$ 、井戸の幅を  $L$  としている。

#### 4.1.1 電気双極子近似の下でのハミルトニアン

電磁場中において荷電粒子の従う運動方程式は

$$m \frac{d^2 \mathbf{r}}{dt^2} = e(\mathbf{E} + \frac{1}{c} \mathbf{v} \times \mathbf{B}) \quad (4.1)$$

である。このような系に対して、電場  $\mathbf{E}$ 、磁場  $\mathbf{B}$  を電磁ポテンシャル  $\phi, \mathbf{A}$  を用いて、

$$\mathbf{E} = -\text{grad}\phi - \frac{\partial}{\partial t} \mathbf{A}(\mathbf{r}, t) \quad (4.2)$$

$$\mathbf{B} = \text{rot}\mathbf{A}(\mathbf{r}, t) \quad (4.3)$$

とあらわし、ハミルトニアンを書くと

$$H = \frac{1}{2} (\mathbf{p} - \frac{e}{c} \mathbf{A}(x, t))^2 + e\phi(x, t) \quad (4.4)$$

を得る。ただし  $\phi, \mathbf{A}$  の取り方には任意性がある（ゲージの取り方についてを参照）。これが半古典近似の立場から記述した電磁場のもとでのハミルトニアンの一般的表式である。以下では、電気双極子近似の下での具体的な表式を与える。

さてここで電磁場を電磁ポテンシャルで表すことを考える。まず電磁場をあらわすベクトルポテンシャルを

$$\mathbf{A}(\mathbf{R}, t) = (2eE_0/\omega) \sin(\mathbf{Q} \cdot \mathbf{R} - \omega t) \quad (4.5)$$

$$\phi = 0 \quad (4.6)$$

とおく。ここで  $Q$  は波数、 $R$  は座標、 $\omega$  は振動数、 $E_0$  は電磁場の振幅、 $\mathbf{e}$  は電磁場の単位ベクトルをそれぞれあらわす。そうすると電場は

$$\mathbf{E} = -\frac{\partial \mathbf{A}}{\partial t} = 2eE_0 \cos(\mathbf{Q} \cdot \mathbf{R} - \omega t) \quad (4.7)$$

磁場は

$$\mathbf{B} = \text{rot} \mathbf{A} = 2\mathbf{Q} \times \mathbf{e} E_0 \cos(\mathbf{Q} \cdot \mathbf{R} - \omega t) \quad (4.8)$$

であり、互いに垂直な偏光面を持って振動していることがわかる。

次に電磁ポテンシャルの下でのハミルトニアン

$$H = \frac{1}{2m} \left( \mathbf{p} - \frac{e}{c} \mathbf{A} \right)^2 \quad (4.9)$$

と電磁ポテンシャルの印加されていない場合のハミルトニアン

$$H = \frac{1}{2m} \mathbf{p}^2 \quad (4.10)$$

とを比較することで、電磁場と電子との相互作用項がどのような形を持つのか調べる。両者の差を取ると

$$V' = \frac{e}{2m} (\mathbf{A} \cdot \mathbf{p} + \mathbf{p} \cdot \mathbf{A} + e\mathbf{A}^2) \quad (4.11)$$

であるがこのうち  $\mathbf{A}^2$  の項は高次であるので無視する。また  $\mathbf{p} \cdot \mathbf{A}$  の項も半分消えて結局残るのは2倍の  $\mathbf{A} \cdot \mathbf{p}$  の項だけとなり、

$$V' = (e/m) \mathbf{A} \cdot \mathbf{p} \quad (4.12)$$

である（これは表式  $\mathbf{E} \cdot \mathbf{J}$  と密接な関係があり、電流に対しても重要である）。 $\mathbf{A}$  を代入し、上の表式を書き直すと

$$V'(R, t) = eE_0/im\omega (e^{i(\mathbf{Q} \cdot \mathbf{R} - \omega t)} - e^{-i(\mathbf{Q} \cdot \mathbf{R} - \omega t)})(\mathbf{e} \cdot \mathbf{p}) \quad (4.13)$$

を得る。ただし、第一項は電子が光子を吸収してエネルギーが  $\hbar\omega$ 、運動量が  $\hbar Q$  増加する過程を表し、第二項は電子が光子を放出してエネルギーと運動量を失う過程を表す。

ここで今考えている系の大きさが光の波長よりも十分小さいと考えると光子の運動量が無視して  $Q = 0$  と置くことが出来、静電的な状態に対して電場が一様に作用すると見なすことが出来る。これが電気双極子近似である。そうすると摂動ポテンシャルは単純化され、

$$V'(R, t) = eE_0/im\omega (e^{-i(\omega t)} - e^{i(\omega t)})(\mathbf{e} \cdot \mathbf{p}) \quad (4.14)$$

となる。さらに、このポテンシャルを遷移前と遷移後の波動関数で挟んで積分することを考えると

$$\langle \psi_f | \mathbf{e} \cdot \mathbf{p} | \psi_i \rangle \quad (4.15)$$

という項があらわれる。

$\mathbf{r}$  とハミルトニアンとの交換関係を調べてみると、例えば  $x$  方向に対しては

$$\begin{aligned}
 [H, x] &= Hx - xH \\
 &= \frac{1}{2m}(p^2 x - x p^2) \\
 &= -\frac{\hbar^2}{2m} \left( \frac{\partial^2}{\partial x^2} x - x \frac{\partial^2}{\partial x^2} \right) \\
 &= -i \frac{\hbar}{m} p_x
 \end{aligned} \tag{4.16}$$

であり、他の成分もまとめると

$$\mathbf{p} = i \frac{m}{\hbar} (H\mathbf{r} - \mathbf{r}H) \tag{4.17}$$

となることがわかる。故に、

$$\begin{aligned}
 \langle \psi_f | \mathbf{p} | \psi_i \rangle &= \frac{im}{\hbar} \langle \psi_f | H\mathbf{r} - \mathbf{r}H | \psi_i \rangle \\
 &= \frac{im}{\hbar} (\epsilon_f - \epsilon_i) \langle \psi_f | \mathbf{r} | \psi_i \rangle
 \end{aligned} \tag{4.18}$$

である。ただし  $\epsilon_i, \epsilon_f$  はそれぞれ  $\psi_i, \psi_f$  に対応した固有値である。これを踏まえると  $V'$  は

$$\begin{aligned}
 V' &= eE_0/im\omega(e^{-i(\omega t)} - e^{i(\omega t)}) \frac{im}{\hbar} (\epsilon_f - \epsilon_i)(\mathbf{r} \cdot \mathbf{e}) \\
 &= eE_0 \frac{(\epsilon_f - \epsilon_i)}{\omega} (e^{-i(\omega t)} - e^{i(\omega t)})(\mathbf{r} \cdot \mathbf{e})
 \end{aligned} \tag{4.19}$$

となる。

$$E'_0 = -2ieE_0 \frac{\epsilon_f - \epsilon_i}{\omega} \tag{4.20}$$

とくと、結局、電気双極子近似の下での電子-光子相互作用項は

$$\begin{aligned}
 eV' &= E'_0 \sin \omega t (\mathbf{r} \cdot \mathbf{e}) \\
 &= \frac{E'_0}{2i} (e^{i(\omega t)} - e^{-i(\omega t)}) (\mathbf{r} \cdot \mathbf{e})
 \end{aligned} \tag{4.21}$$

として表現できることが示された。

ゲージの取り方について

ゲージの取り方はいろいろあるが、物理的結果はゲージの取り方によらず不変である。ゲージ不変性が数値計算においても保たれることを後に示す。ここではゲージ不変性を簡単な電場を例にとって述べる。電磁ポテンシャルを含むハミルトニアンを一般的に書くと  $\mathbf{A}$  をベクトルポテンシャル、 $\phi$  をスカラーポテンシャルとして

$$H = \frac{1}{2m} \left( \mathbf{p} - \frac{e}{c} \mathbf{A} \right)^2 + e\phi \tag{4.22}$$

で与えられた。これらの電磁ポテンシャルは、一般的に

$$\mathbf{A}'(\mathbf{r}, t) = \mathbf{A}(\mathbf{r}, t) + \text{gradu}(\mathbf{r}, t) \tag{4.23}$$

$$\phi'(\mathbf{r}, t) = \phi(\mathbf{r}, t) - \frac{\partial u(\mathbf{r}, t)}{\partial t} \tag{4.24}$$

という変換に対しては物理的結果を保存する。ここで  $u$  は任意の関数である。

例えば、電場を例にとると、

$$\mathbf{E} = -\frac{\partial \mathbf{A}}{\partial t} - \text{grad}\phi \quad (4.25)$$

であるが、上の変換を施した電磁ポテンシャルを代入すると

$$\begin{aligned} \mathbf{E} &= -\frac{\partial \mathbf{A}}{\partial t} - \text{grad}\phi \\ &= -\frac{\partial}{\partial t}(\mathbf{A}' - \text{grad}u) - \text{grad}(\phi' + \frac{\partial u}{\partial t}) \\ &= -\frac{\partial \mathbf{A}'}{\partial t} - \text{grad}\phi' \end{aligned} \quad (4.26)$$

となり、ゲージ変換に対して物理的結果が保存されることがわかる。一般的な証明については例えば参考文献 [21] を参照のこと。

#### 4.1.2 電気双極子近似の下での二準位系の時間発展

ここからは周期的外場のもとでの電子系の時間発展を主に二準位近似のもとで取り扱い、共鳴遷移に伴う Rabi 振動について議論する。回転波近似における解析解を求め、そこから各準位に対する波動関数の持つ振動成分およびそれに付随して決まる物理量のもつ振動成分について考察する。続いて、回転波近似なしの二準位系の係数に対する微分方程式を数值的に解くことで、回転波近似で落とした高周波数成分について議論する。これらの結果を踏まえ、次の節で実空間表現における時間発展との比較を行い、二準位近似の成立する範囲、およびその適用限界について考察する。

離散準位系へ印加された周期的外場に対する波動関数の時間発展

まず時間に依存するシュレディンガー方程式を

$$i\hbar \frac{\partial}{\partial t} \psi(\mathbf{r}, t) = (H + H') \psi(\mathbf{r}, t) \quad (4.27)$$

とする。ただしここで  $H'$  は上で考察した、電気双極子近似のもとでの単色電磁場との相互作用項であり、

$$H' = \frac{E_0}{2i} (\mathbf{r} \cdot \mathbf{e})(e^{-i\omega_0 t} + e^{i\omega_0 t}) \quad (4.28)$$

とした。電磁波が離散準位系へ入射する場合を考え、波動関数を

$$\psi(\mathbf{r}, t) = \sum_n C_n(t) \phi_n(\mathbf{r}) \exp(-\frac{i\epsilon_n t}{\hbar}) \quad (4.29)$$

と展開する。ただし、 $C_n$  は準位  $n$  の係数、 $\epsilon_n$  は準位  $n$  のエネルギーであり、この展開した波動関数を時間依存シュレディンガー方程式に代入して、左から  $\langle n|$  を作用し整理すると、各準位の係数の時間発展を表す方程式

$$\frac{d}{dt} C_m(t) = -\frac{i}{\hbar} \sum_n \langle n|H'|m \rangle e^{i(\omega_n - \omega_m)t} C_m(t) \quad (4.30)$$

を得る。ただし、ここでは表記を簡略化するためブラケット記号を用いた。

$$\langle n|H'|m \rangle = \int \phi_n^* H' \phi_m d\mathbf{r} \quad (4.31)$$

である。ここではまず  $n = 2$  として、二準位近似の下での共鳴遷移について述べる。

## 4.1.3 二準位系への回転波近似の適用

系に照射される電磁波の周波数が共鳴に近い条件における電子系の時間発展を二準位近似の下で考える。まず共鳴に関係のある準位を  $a, b$  の二準位であると仮定し、これらの状態の対称性はそれぞれ対称、反対称であるとした。このような二準位系における時間発展を求めると

$$\begin{aligned}\frac{d}{dt}C_a(t) &= -\frac{i}{\hbar}(C_a\langle a|H'|a\rangle + C_b e^{i(\omega_a - \omega_b)t}\langle a|H'|b\rangle) \\ \frac{d}{dt}C_b(t) &= -\frac{i}{\hbar}(C_b\langle b|H'|b\rangle + C_a e^{-i(\omega_a - \omega_b)t}\langle b|H'|a\rangle)\end{aligned}\quad (4.32)$$

を得る。次に  $H'$  を具体的に代入し、高周波成分  $\omega_0 + \omega_{ab}$  を含む項を回転波近似を適用して除くと、

$$\begin{aligned}i\frac{d}{dt}C_a(t) &= \frac{1}{2}R_{ab}e^{-i\Delta\omega t}C_b(t) \\ i\frac{d}{dt}C_b(t) &= \frac{1}{2}R_{ab}^*e^{i\Delta\omega t}C_a(t)\end{aligned}\quad (4.33)$$

と与えられる。ただし  $\epsilon_b > \epsilon_a > 0$  を仮定して  $\omega_{ab} = \omega_b - \omega_a$  と置き、さらに  $\Delta\omega = \omega_{ab} - \omega_0$  とした。また

$$R_{ab} = R_{ab}^* = -\frac{E_0}{i\hbar}\langle\phi_a^*|\mathbf{e} \cdot \mathbf{r}|\phi_b\rangle\quad (4.34)$$

である。同じ準位同士の双極子モーメントの項は対称性からゼロとなる。ここでは波動関数の時間発展に対する高周波数成分  $\omega_{ab} + \omega_0$  の項を時間発展への寄与が小さいとして落として計算するが、これを回転波近似という。量子論的立場からいえば、高い周波数成分は電子系が光子を吸収して励起され、かつ光子数が一つ増大するという物理的意味を与え、非常に起こりにくい過程であると考えるのは電場強度の弱い領域では自然である。(量子論の立場から見た回転波近似については付録 C を参照のこと。)

さて次のステップとして上の微分方程式の解がほしい。

$$\begin{aligned}C_a(t) &= \exp(-i\frac{\Delta\omega}{2}t)b_a(t) \\ C_b(t) &= \exp(i\frac{\Delta\omega}{2}t)b_b(t)\end{aligned}\quad (4.35)$$

とおいて代入しまとめると

$$i\frac{d}{dt}\begin{pmatrix} b_a(t) \\ b_b(t) \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} -\frac{\Delta\omega}{2} & R_{ab} \\ R_{ab} & \frac{\Delta\omega}{2} \end{pmatrix} \begin{pmatrix} b_a(t) \\ b_b(t) \end{pmatrix}\quad (4.36)$$

となる。この方程式は右辺を対角化することで解け、

$$\begin{pmatrix} b_a(t) \\ b_b(t) \end{pmatrix} = \alpha e^{i\lambda t} \begin{pmatrix} v_1^{(1)} \\ v_2^{(1)} \end{pmatrix} + \beta e^{-i\lambda t} \begin{pmatrix} v_1^{(2)} \\ v_2^{(2)} \end{pmatrix}\quad (4.37)$$

を得る。ここで  $-\lambda, \lambda$  は右辺の行列の固有値であり

$$\lambda = \sqrt{\frac{\Delta\omega^2}{4} + R_{ab}R_{ab}^*}\quad (4.38)$$

で、それぞれに対応する固有ベクトルは

$$\begin{aligned}\begin{pmatrix} v_1^{(1)} \\ v_2^{(1)} \end{pmatrix} &= N \begin{pmatrix} \frac{\Delta\omega}{2} + \sqrt{\frac{\Delta\omega^2}{4} + R_{ab}R_{ab}^*} \\ -R_{ab} \end{pmatrix} \\ \begin{pmatrix} v_1^{(2)} \\ v_2^{(2)} \end{pmatrix} &= N \begin{pmatrix} R_{ab}^* \\ \frac{\Delta\omega}{2} + \sqrt{\frac{\Delta\omega^2}{4} + R_{ab}R_{ab}^*} \end{pmatrix}\end{aligned}\quad (4.39)$$



である。これを規格化すると規格化因子は

$$N = \left[ R_{ab}R_{ab}^* + \left( \frac{\Delta\omega}{2} + \sqrt{\frac{\Delta\omega^2}{4} + R_{ab}R_{ab}^*} \right)^2 \right]^{-1/2} \quad (4.40)$$

となる。初期条件を  $C_a(0) = 1, C_b(0) = 0$  とすると、解として

$$\begin{aligned} b_a(t) &= \cos(\lambda t) + i(|v_1^{(1)}|^2 - |v_1^{(2)}|^2) \sin(\lambda t) \\ b_b(t) &= 2i(v_1^{(1)*} v_2^{(1)}) \sin(\lambda t) \end{aligned} \quad (4.41)$$

が得られ、結局、係数  $C_b$  の時間発展は

$$\begin{aligned} |C_b|^2 &= |b_b(t)|^2 = 4|v_1^{(1)*}|^2 |v_2^{(1)*}|^2 \sin^2(\lambda t) \\ &= \frac{4R_{ab}R_{ab}^* \left( \frac{\Delta\omega}{2} + \sqrt{\frac{\Delta\omega^2}{4} + R_{ab}R_{ab}^*} \right)^2}{[R_{ab}R_{ab}^* + \left( \frac{\Delta\omega}{2} + \sqrt{\frac{\Delta\omega^2}{4} + R_{ab}R_{ab}^*} \right)^2]^2} \sin^2(\lambda t) \end{aligned} \quad (4.42)$$

で与えられることがわかる。特に、共鳴条件が満たされる  $\Delta\omega = 0$  の条件においては、上の式は

$$|C_b|^2 = \sin^2(|R_{ab}|t) \quad (4.43)$$

となり、非常に簡単に書くことが出来る。

以下ではこれらの結果を踏まえて、係数の時間発展とそれに付随して定まる物理量の期待値のもつ振動について論じる。

各準位の係数が持つ振動数 回転波近似

係数の振動について考える。上で示したとおり二準位回転波近似の元では各準位に対する係数の振動は一般的に、

$$\begin{aligned} C_a(t) &= \exp(-i\frac{\Delta\omega}{2}t) b_a(t) \\ C_b(t) &= \exp(i\frac{\Delta\omega}{2}t) b_b(t) \end{aligned} \quad (4.44)$$

であり、これらに具体的な表式を入れて変形すると、

$$\begin{aligned} C_a(t) &= \exp(-i\frac{\Delta\omega}{2}t) b_a(t) \\ &= \exp(-i\frac{\Delta\omega}{2}t) \left[ \cos(\lambda t) + i(|v_1^{(1)}|^2 - |v_1^{(2)}|^2) \sin(\lambda t) \right] \\ &= \frac{1}{2} \left[ \left\{ \cos\left(\frac{\Delta\omega}{2} + \lambda\right)t + \cos\left(\frac{\Delta\omega}{2} - \lambda\right)t \right\} \right. \\ &\quad + i\alpha \left\{ \sin\left(\frac{\Delta\omega}{2} + \lambda\right)t - \sin\left(\frac{\Delta\omega}{2} - \lambda\right)t \right\} \\ &\quad - i \left\{ \sin\left(\frac{\Delta\omega}{2} + \lambda\right)t + \sin\left(\frac{\Delta\omega}{2} - \lambda\right)t \right\} \\ &\quad \left. + \alpha \left\{ \cos\left(\frac{\Delta\omega}{2} - \lambda\right)t - \cos\left(\frac{\Delta\omega}{2} + \lambda\right)t \right\} \right] \end{aligned} \quad (4.45)$$

$$\begin{aligned}
C_b(t) &= \exp(i\frac{\Delta\omega}{2}t)b_b(t) \\
&= \exp(i\frac{\Delta\omega}{2}t)[2i(v_1^{(1)*}v_2^{(1)})\sin(\lambda t)] \\
&= i(v_1^{(1)*}v_2^{(1)})\left[\left\{\sin(\lambda - \frac{\Delta\omega}{2})t + \sin(\lambda + \frac{\Delta\omega}{2})t\right\}\right. \\
&\quad \left.+ i\left\{\cos(\lambda - \frac{\Delta\omega}{2}) - \cos(\lambda + \frac{\Delta\omega}{2})\right\}t\right] \tag{4.46}
\end{aligned}$$

を得る。ただし  $\alpha = |v_1^{(1)}|^2 - |v_2^{(1)}|^2$  としてまとめた。このことから係数の時間発展は  $\lambda \pm \frac{\Delta\omega}{2}$  の周波数を持つ振動であることがわかる。

位置の期待値（電気双極子モーメント）

次に電気双極子モーメントの時間変化について考える。電気双極子モーメントは第2章でも述べたが

$$\mathbf{P} = e\langle \mathbf{r} \rangle \tag{4.47}$$

で与えられ、位置の期待値と電荷の積としてあらわされる。位置の期待値  $\langle \mathbf{r} \rangle$  は

$$\langle \mathbf{r} \rangle = \langle \psi^* | \mathbf{r} | \psi \rangle \tag{4.48}$$

で与えられるが、これに二準位近似のもとでの波動関数

$$\psi(\mathbf{r}, t) = C_a(t)e^{-i\omega_a t}\phi_a(\mathbf{r}) + C_b(t)e^{-i\omega_b t}\phi_b(\mathbf{r}) \tag{4.49}$$

を代入すると

$$\begin{aligned}
\langle \mathbf{r} \rangle &= \int (C_a^* e^{i\omega_a t} \phi_a^*(\mathbf{r}) + C_b^* e^{i\omega_b t} \phi_b^*(\mathbf{r})) \\
&\quad \mathbf{r} (C_a e^{-i\omega_a t} \phi_a(\mathbf{r}) + C_b e^{-i\omega_b t} \phi_b(\mathbf{r})) d\mathbf{r} \\
&= C_a^* C_a e^{i(\omega_a - \omega_a)t} \langle \phi_a | \mathbf{r} | \phi_a \rangle + C_a^* C_b e^{i(\omega_a - \omega_b)t} \langle \phi_a | \mathbf{r} | \phi_b \rangle + \\
&\quad C_b^* C_a e^{i(\omega_b - \omega_a)t} \langle \phi_b | \mathbf{r} | \phi_a \rangle + C_b^* C_b e^{i(\omega_b - \omega_b)t} \langle \phi_b | \mathbf{r} | \phi_b \rangle \tag{4.50}
\end{aligned}$$

を得る。ここで  $aa$  と  $bb$  の項は空間部分の積分で消えるので

$$\begin{aligned}
\langle \mathbf{r} \rangle &= C_a C_b e^{i(\omega_a - \omega_b)t} \langle \phi_a | \mathbf{r} | \phi_b \rangle + \\
&\quad C_b^* C_a e^{i(\omega_b - \omega_a)t} \langle \phi_b | \mathbf{r} | \phi_a \rangle \tag{4.51}
\end{aligned}$$

と簡単化され、さらに上式の第二項は第一項の複素共役であることを踏まえると結局

$$\langle \mathbf{r} \rangle = 2\text{Re}[C_a^* C_b e^{i(\omega_a - \omega_b)t} \langle \phi_a | \mathbf{r} | \phi_b \rangle] \tag{4.52}$$

という表式を得る。

以上を踏まえて実際に二準位回転波近似の下での電気双極子モーメントの時間変化を考える。ここで先ほど求めた係数を上の表式に代入すると

$$\begin{aligned}
C_a^* C_b e^{i(\omega_a - \omega_b)t} \langle \phi_a | \mathbf{r} | \phi_b \rangle &= e^{i\frac{\Delta\omega}{2}t} (\cos(\lambda t) - i\alpha \sin(\lambda t)) \\
&\quad e^{i\frac{\Delta\omega}{2}t} 2i\beta \sin(\lambda t) e^{-i\omega_{ab}t} \langle \phi_a | \mathbf{r} | \phi_b \rangle \\
&= [2i\beta e^{\Delta i\omega t} \cos(\lambda t) \sin(\lambda t) + 2\alpha\beta e^{i\Delta\omega t} \sin(\lambda t) \sin(\lambda t)] \\
&\quad e^{-i\omega_{ab}t} \langle \phi_a | \mathbf{r} | \phi_b \rangle \\
&= [2i\beta e^{i(\Delta\omega - \omega_{ab})t} \cos(\lambda t) \sin(\lambda t) \\
&\quad + 2\alpha\beta e^{i(\Delta\omega - \omega_{ab})t} \sin(\lambda t) \sin(\lambda t)] \langle \phi_a | \mathbf{r} | \phi_b \rangle \tag{4.53}
\end{aligned}$$

を与え、この式から実部を取ると指数のうちの第一項は  $\sin$  部、第二項は  $\cos$  部分が残る。記述を簡略化するため  $\xi = \langle \phi_a^* | \mathbf{r} | \phi_b \rangle$  において上の式をさらに展開すると

$$\begin{aligned}
 & \operatorname{Re} \left[ C_a^* C_b e^{i(\omega_a - \omega_b)t} \right] \xi \\
 &= \operatorname{Re} [e^{i(\Delta\omega - \omega_0)t} (2i\beta \cos(\lambda t) \sin(\lambda t) + 2\alpha\beta \sin(\lambda t) \sin(\lambda t))] \xi \\
 &= 2(\cos(\Delta\omega - \omega_0)t + i \sin(\Delta\omega - \omega_0)t)(i\beta \cos(\lambda t) \sin(\lambda t) + \alpha\beta \sin(\lambda t) \sin(\lambda t)) \xi \\
 &= 2(\alpha\beta \cos(\Delta\omega - \omega_0)t \sin^2(\lambda t) - \beta \sin(\Delta\omega - \omega_0)t \cos(\lambda t) \sin(\lambda t) \xi \\
 &= 2 \sin(\lambda t) \left( \frac{1}{2} \alpha\beta [\sin(\lambda - \Delta\omega + \omega_0)t + \sin(\lambda + \Delta\omega - \omega_0)t] \right. \\
 &\quad \left. - \frac{1}{2} \beta [\sin(\Delta\omega + \omega_0 - \lambda)t + \sin(\Delta\omega - \omega_0 + \lambda)t] \right) \xi \\
 &= \alpha\beta [\sin(\lambda t) \sin(\lambda - \Delta\omega + \omega_0)t + \sin(\lambda t) \sin(\lambda + \Delta\omega - \omega_0)t] \\
 &\quad - \beta [\sin(\lambda t) \sin(\Delta\omega - \omega_0 - \lambda)t + \sin(\lambda t) \sin(\Delta\omega - \omega_0 + \lambda)t] \xi \\
 &= \left\{ \frac{1}{2} \alpha\beta [\cos(\lambda - (\lambda - \Delta\omega + \omega_0))t - \cos(\lambda + (\lambda - \Delta\omega + \omega_0))t] \right. \\
 &\quad \left. \cos(\lambda - (\lambda + \Delta\omega - \omega_0))t - \cos(\lambda + (\lambda + \Delta\omega - \omega_0))t] \right. \\
 &\quad \left. - \beta \frac{1}{2} [\cos(\lambda - (\Delta\omega - \omega_0 - \lambda))t - \cos(\lambda + (\Delta\omega - \omega_0 - \lambda))t] \right. \\
 &\quad \left. \cos(\lambda - (\Delta\omega - \omega_0 + \lambda))t - \cos(\lambda + (\Delta\omega - \omega_0 + \lambda))t] \right\} \xi \\
 &= \left( \frac{1}{2} \alpha\beta [\cos(\Delta\omega - \omega_0)t - \cos(2\lambda - \Delta\omega + \omega_0)t + \cos(\omega_0 - \Delta\omega)t - \cos(2\lambda + \Delta\omega - \omega_0)t] \right. \\
 &\quad \left. - \frac{1}{2} \beta [-\cos(\Delta\omega - \omega_0)t - \cos(2\lambda - \Delta\omega + \omega_0)t + \right. \\
 &\quad \left. \cos(\omega_0 - \Delta\omega)t - \cos(2\lambda + \Delta\omega - \omega_0)t] \right) \xi
 \end{aligned} \tag{4.54}$$

を得る。ここで

$$\begin{aligned}
 \cos(A - B)t &= \cos(-(A - B))t \\
 \Delta\omega &= \omega_{ab} - \omega_0
 \end{aligned} \tag{4.55}$$

を踏まえると最終的に

$$\begin{aligned}
 \operatorname{Re} \left[ C_a^* C_b e^{i(\omega_a - \omega_b)t} \right] \xi &= \left( \frac{1}{2} \alpha\beta [2 \cos(\omega_0)t - \cos(2\lambda + \omega_0)t - \cos(2\lambda - \omega_0)t] \right. \\
 &\quad \left. - \frac{1}{2} \beta [\cos(2\lambda + \omega_0)t - \cos(2\lambda - \omega_0)t] \right) \xi \\
 &= \frac{1}{2} \beta [2\alpha \cos(\omega_0)t - (\alpha + 1) \cos(\omega_0 + 2\lambda)t - (\alpha - 1) \cos(\omega_0 - 2\lambda)t]
 \end{aligned} \tag{4.56}$$

を得る。この結果から回転波近似の範囲では位置の期待値は  $\omega_0, \omega_0 \pm 2\lambda$  の三つの振動数を持つことがわかった。また特に共鳴条件下では  $\Delta\omega = 0$  から、 $\alpha = 0$  となり  $\omega_0 \pm 2\lambda$  という二つ振動数を持つことも明らかになった。

振動ピークの分裂について

位置の期待値の持つ振動ピークの分裂をプロットしたのが図 4.3 である。ピークの分裂幅は  $2\lambda$  であり、

$$\lambda = \sqrt{\frac{\Delta\omega^2}{4} + R_{ab}R_{ab}^*} \tag{4.57}$$

であった。上の式のうち  $R_{ab}$  は  $E_0$  に比例する項であり、また  $\Delta\omega$  は共鳴点からのずれをあらわす。この式からわかるように電場の振動数の共鳴点からのずれは、低い電場強度において顕著にあらわれる。なぜなら共鳴点からのずれ  $\Delta\omega$  の効果は電場強度の増加に伴い、相対的に小さくなり  $\lambda$  への寄与も小さくなるからである。よって、電場強度の強い領域では共鳴点からのずれの効果がほとんどなくなり、近共鳴点においても共鳴との違いはほとんどなくなると考えられる。

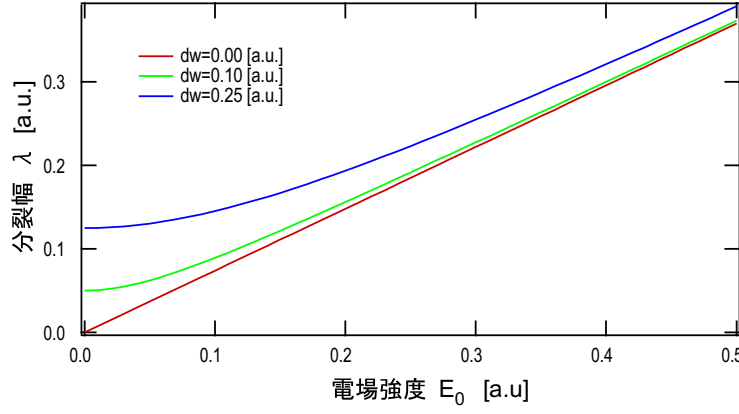


図 4.3 回転波近似における位置の期待値のピークの分裂幅と電場強度の関係

#### エネルギー期待値を持つ振動数

相互作用によるエネルギー期待値の振動を考える。再び二準位近似を適用するとエネルギー期待値は

$$\begin{aligned}
 \langle E \rangle &= \langle \psi | H | \psi \rangle \\
 &= \int \psi^* H \psi dr \\
 &= \int (C_a^* e^{i\omega_a t} \phi_a^* + C_b^* e^{i\omega_b t} \phi_b^*) H (C_a e^{-i\omega_a t} \phi_a + C_b e^{-i\omega_b t} \phi_b) dr \\
 &= |C_a|^2 \langle \phi_a | H | \phi_a \rangle + C_a^* C_b e^{i(\omega_a - \omega_b)t} \langle \phi_a | H | \phi_b \rangle \\
 &\quad + C_b^* C_a e^{i(\omega_b - \omega_a)t} \langle \phi_b | H | \phi_a \rangle + |C_b|^2 \langle \phi_b | H | \phi_b \rangle
 \end{aligned} \tag{4.58}$$

で与えられる。

ここで再び扱っている二準位が異なる対称性を持つ一方ハミルトニアンが偶の対称性を持ち、かつ  $\epsilon_b > \epsilon_a$  であることを踏まえると異なる状態間の行列要素はゼロになり、エネルギー期待値の時間変化は

$$\langle E \rangle = |C_a|^2 \langle \phi_a | H | \phi_a \rangle + |C_b|^2 \langle \phi_b | H | \phi_b \rangle \tag{4.59}$$

とあらわされる。二準位近似における係数の時間発展が

$$\begin{aligned}
 |C_a|^2 &= \cos^2 \lambda t + F_a \sin^2 \lambda t \\
 |C_b|^2 &= F_b \sin^2 \lambda t
 \end{aligned} \tag{4.60}$$

と振動的に変化し、また

$$F_b = \frac{4R_{ab}R_{ab}^* \left( \frac{\Delta\omega}{2} + \sqrt{\frac{\Delta\omega^2}{4} + R_{ab}R_{ab}^*} \right)^2}{[R_{ab}R_{ab}^* + \left( \frac{\Delta\omega}{2} + \sqrt{\frac{\Delta\omega^2}{4} + R_{ab}R_{ab}^*} \right)^2]^2} \tag{4.61}$$

$$F_a = 1 - F_b \tag{4.62}$$

であったことを踏まえると二準位回転波近似の下でのエネルギー期待値の振動は

$$\begin{aligned}
 \langle E \rangle &= |C_a|^2 \langle \phi_a | H | \phi_a \rangle + |C_b|^2 \langle \phi_b | H | \phi_b \rangle \\
 &= [\cos^2(\lambda t) + F_a \sin^2(\lambda t)] \langle \phi_a | H | \phi_a \rangle + F_b \sin^2(\lambda t) \langle \phi_b | H | \phi_b \rangle \\
 &= \frac{1}{2} [\{ (1 + \cos(2\lambda t) + F_a(1 - \cos(2\lambda t))) \langle \phi_a | H | \phi_a \rangle \\
 &\quad + F_b(1 - \cos(2\lambda t)) \langle \phi_b | H | \phi_b \rangle \} \\
 &= \frac{1}{2} [(1 + F_a) \langle \phi_a | H | \phi_a \rangle + F_b \langle \phi_b | H | \phi_b \rangle \\
 &\quad + \{ \cos(2\lambda t) - F_a \cos(2\lambda t) \} \langle \phi_a | H | \phi_a \rangle - F_b \langle \phi_b | H | \phi_b \rangle \cos(2\lambda t)] \quad (4.63)
 \end{aligned}$$

と与えられることがわかる。ところで  $\langle \phi_i | H | \phi_i \rangle$  は準位 a, b のエネルギー  $\epsilon_a, \epsilon_b$  である。これらを代入して上の式をまとめ直すと結局

$$\begin{aligned}
 \langle E \rangle &= \frac{1}{2} [(1 + F_a) \epsilon_a + F_b \epsilon_b \\
 &\quad + \{ \cos(2\lambda t) - F_a \cos(2\lambda t) \} \epsilon_a - F_b \epsilon_b \cos(2\lambda t)] \\
 &= \frac{1}{2} [(2 - F_b) \epsilon_a + F_b \epsilon_b \\
 &\quad + \{ \cos(2\lambda t) - (1 - F_b) \cos(2\lambda t) \} \epsilon_a - F_b \epsilon_b \cos(2\lambda t)] \\
 &= \frac{1}{2} [2\epsilon_a - F_b(\epsilon_a - \epsilon_b) + F_b \cos(2\lambda t)(\epsilon_a - \epsilon_b)] \quad (4.64)
 \end{aligned}$$

となり、エネルギー期待値の時間発展は  $2\lambda$  の振動を持つということがわかった。またこのときエネルギー期待値の振幅範囲は

$$\epsilon_a \leq \langle E \rangle \leq F_a \epsilon_a + F_b \epsilon_b \quad (4.65)$$

となり、共鳴の場合には  $F_a = 0, F_b = 1$  となって、 $\epsilon_a, \epsilon_b$  の間を行き来することが期待される。

#### 物理量の時間発展の具体例

二準位回転波近似における、共鳴周波数を持つ電磁場に対するエネルギー期待値、位置期待値の時間発展を  $E_0 = 0.05, 0.50$  a.u. の条件で計算した結果を、図 4.4 に示した。位置の期待値が振動数の近い 2 つの周波数成分を持って振動することに対応してうなりを生じていることがわかる。二つの準位間を行き来するエネルギーの振動の周期は電場強度に比例することを前節で示したが、実際に図に示すように  $E_0 = 0.05$  a.u. と  $0.50$  a.u. では 10 倍振動周期が異なっている。以下ではこれらの描像が回転波近似で除いた高周波成分を含めた時間発展を扱うことでどのように変化するかを検討する。

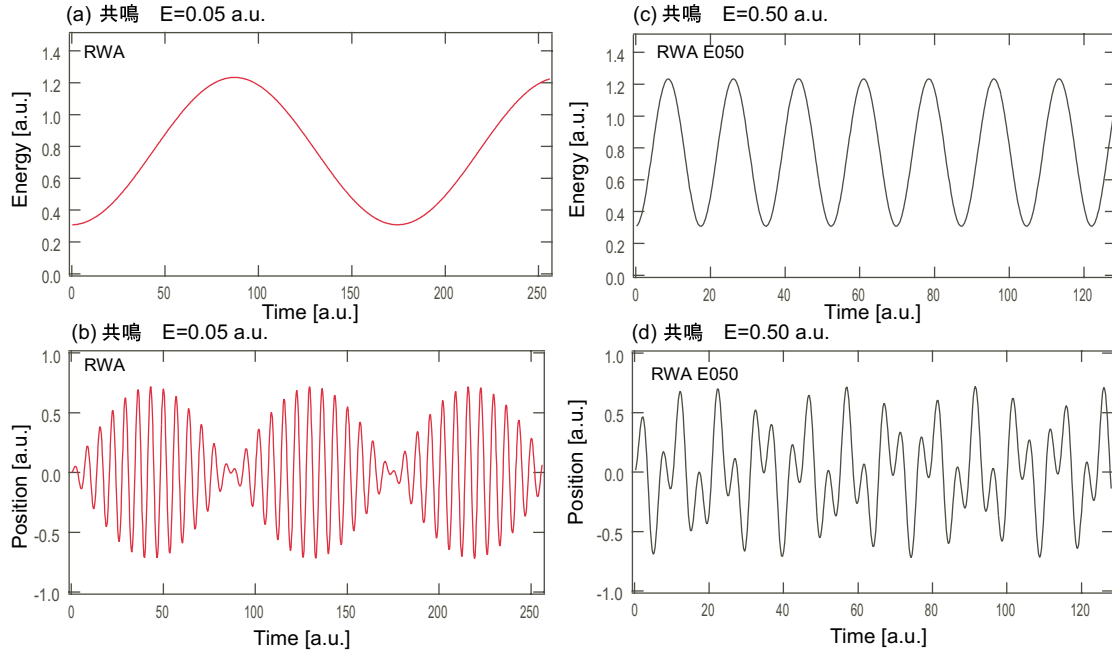


図 4.4 二準位回転波近似における、共鳴周波数を持って入射した電磁場に対するエネルギー期待値 (a),(c) と位置期待値の時間変化 (b),(d)。 $E_0 = 0.05, 0.50$  a.u. の条件で計算。

#### 4.1.4 数値解による二準位系の時間発展解析

ここからは回転波近似なしの二準位系の時間発展について述べる。回転波近似なしの二準位近似の解を解析的に求めることは係数の時間発展に高周波数成分が含まれるため非常に難しい。そこで本節では各種物理量が持つ振動を、係数に対する微分方程式を数値的に解くことで論じる。回転波近似の有無による物理量の時間発展の違いを明らかにすることで、電子の光学過程におよぼす高周波数成分の意味を考察する。この後の実空間差分を用いた数値計算との比較を行う為、一次元系における時間発展を検討する。次元が増えた場合でも基本的な描像に変化はないことを付け加えておく。

##### 二準位近似を用いた係数の時間発展数値計算

係数の時間発展に対する微分方程式は、式 (4.32) で与えられた。ここではこれらの式を差分法を用いて数値的に解くことを考える。時間微分に対しては中心差分

$$\frac{d}{dt}C_i(t) \rightarrow \frac{C_i(t + \Delta t) - C_i(t - \Delta t)}{2\Delta t} \quad (4.66)$$

を適用し、二次精度での計算を行った。次の節における実空間差分法との比較のため、一次元の離散エネルギーを持つポテンシャル場を考え、電子-光子相互作用の項を電気双極子近似の下で

$$\begin{aligned} \hat{V} &= \frac{E_0}{2i} x (e^{i\omega_0 t} + e^{-i\omega_0 t}) \\ &= E_0 x \sin(\omega_0 t) \end{aligned} \quad (4.67)$$

として考え、数値計算のための差分表式を以下のように与えた。

$$\begin{aligned} C_a(t + \Delta t) &= C_a(t - \Delta t) + \frac{2\Delta t}{i\hbar} (\exp[-i(\omega_b - \omega_a)]t) \langle \phi_b^0 | E_0 x | \phi_a^0 \rangle \sin(\omega_0 t) C_b(t) \\ C_b(t + \Delta t) &= C_b(t - \Delta t) + \frac{2\Delta t}{i\hbar} (\exp[-i(\omega_a - \omega_b)]t) \langle \phi_a^0 | E_0 x | \phi_b^0 \rangle \sin(\omega_0 t) C_b(t) \end{aligned} \quad (4.68)$$

また  $V_{11}, V_{22}$  は空間積分がゼロになるため落とすことができる。具体的には  $L = 4.0$  a.u. の無限に深い井戸型ポテンシャルに電子が閉じ込められているとし、そこへ電磁波が外部から印加された場合を考えた。ただし前節と同様、系の初期状態を

$$\begin{aligned} C_a(0) &= 1 \\ C_b(0) &= 0 \end{aligned} \quad (4.69)$$

であるとした。また計算は原子単位 (補遺 F 参照) で行い、 $\hbar = 1, m = 1$  としている。

#### 各準位の係数、物理量の時間変化と振動数

図 4.5 は回転波近似なし二準位近似でのエネルギー期待値と双極子モーメントの期待値 (位置の期待値) を電場強度  $E_0 = 0.05, 0.50$  a.u. について図示したものである。どの結果にも回転波近似の下では見られなかった細かな振動成分が乗っていることがわかる。これは回転波近似で落とした高次の振動項に由来する。また電場強度の比較的弱い  $E_0 = 0.05$  a.u. では回転波近似の有無で細かな振動成分以外に大きな違いは現れないが、電場強度が  $E_0 = 0.50$  a.u. においては回転波近似の場合とはかなり異なる時間発展となることがわかる。これは電場強度  $E_0$  が大きくなったことで、摂動項を挟んだ行列間要素の値が相対的に大きくなったことにより、高周波数成分の効果がより効きやすくなったことに対応している。物理的には電場強度の増大により、高次の光学過程 (例えば光子数増大と電子励起が同時に起こるような場合) が起きやすくなったともいうことができる。

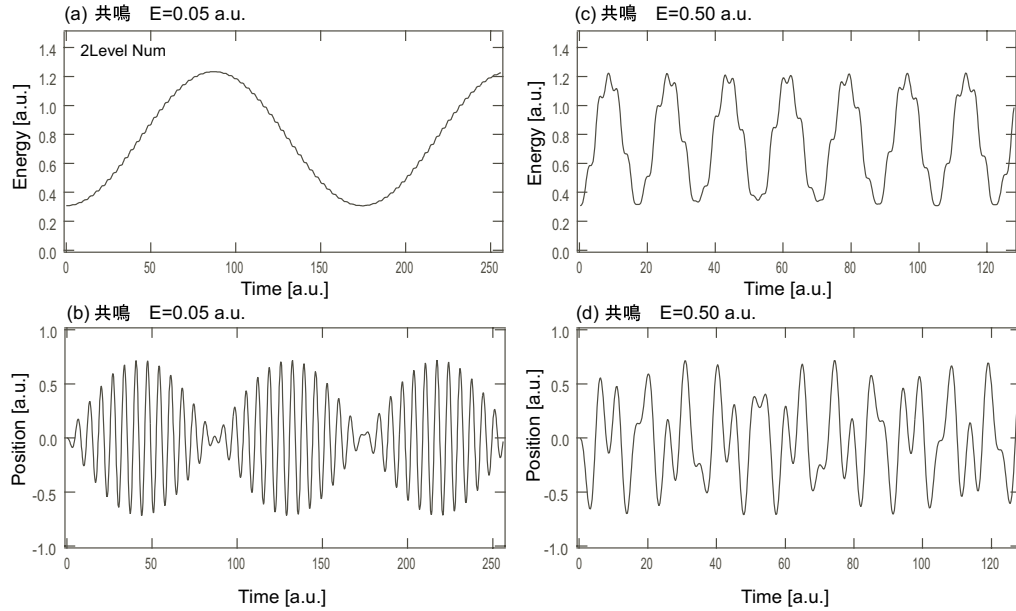


図 4.5 回転波近似なし二準位系における、共鳴点での電気双極子モーメントとエネルギー期待値の時間変化。電場強度  $E_0 = 0.05, 0.50$  a.u. の場合。

## フーリエ変換による振動数解析

上で得られた物理量の時間変化に対してフーリエ変換を施すことでその振動数成分を解析した (図 4.6)。前節で考察した回転波近似において現れる振動数成分に加えて、回転波近似では無視した高周波数成分が係数およびそれに付随した物理量に与える効果を検討した。まずエネルギーの期待値に着目すると、 $E_0 = 0.05, 0.50$  a.u. のどちらの条件においても回転波近似から予想された  $2\lambda$  の振動ピークに加えて、 $2\omega, 4\omega, 6\omega$  付近に分裂した振動ピークがあることが確認された。またこれらの新たに付け加わった振動ピークの強度は、電場強度の強い  $E_0 = 0.50$  a.u. においてより大きくなった。同様に、位置期待値の波数分布においても回転波近似から予測された  $\omega + \pm 2\lambda$  のピークに加えて  $3\omega, 5\omega$  において分裂ピークが存在する。これらの高い周波数成分は係数の時間発展が持つ振動によって生じたと考えられる。今仮に、係数の振動に  $2\omega$  の振動数が乗っていると考えると、前節と同様の手続きにより、エネルギー期待値の時間発展には  $\omega$  の偶数倍の周波数成分が、位置期待値の時間発展には  $\omega$  の奇数倍の周波数成分がそれぞれ付加されることがわかる。これらの振動の物理的意味については Floquet 状態の項で述べる。

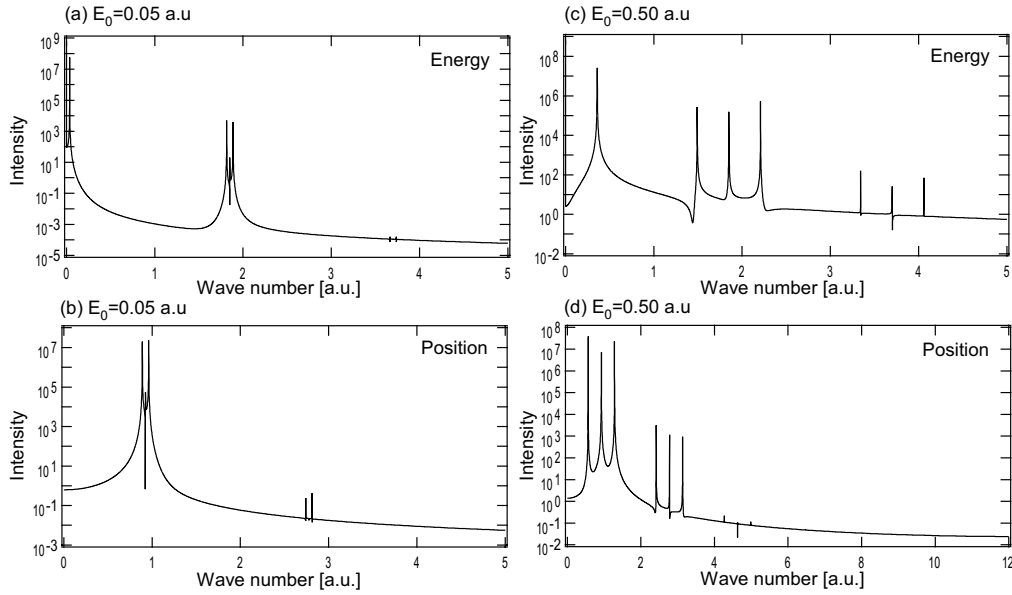


図 4.6 共鳴周波数に対する電気双極子モーメントおよびエネルギー期待値の時間変化のフーリエ変換。計算条件は a)  $E_0 = 0.05$  a.u.、b)  $E_0 = 0.50$  a.u. でどちらに対しても、データのサンプリング間隔は  $0.25$  a.u. で合計  $32768$  点のデータを使用。

近共鳴点 物理量の変化 同じく、図 4.7 は近共鳴点における物理量の時間変化をあらわしたものである。電場強度もそれぞれ  $E_0 = 0.05, 0.50$  a.u. としている。共鳴点におけるのと同様に細かい振動が現れ、電場強度が強い場合にはより複雑な振動があらわれた。また、回転波近似の節で予想したとおり、電場強度  $E_0$  の大きい領域では物理量の時間発展はほとんど共鳴点における時間発展と見分けがつかないほど似通ったものとなった。

4.1.5 三準位の定式化と  $N$  準位への拡張

さらに一步進めて、三準位系の定式化を行う。三つの準位それぞれの係数の時間発展は二準位系よりも一つ項が増えて 3 つずつになる。



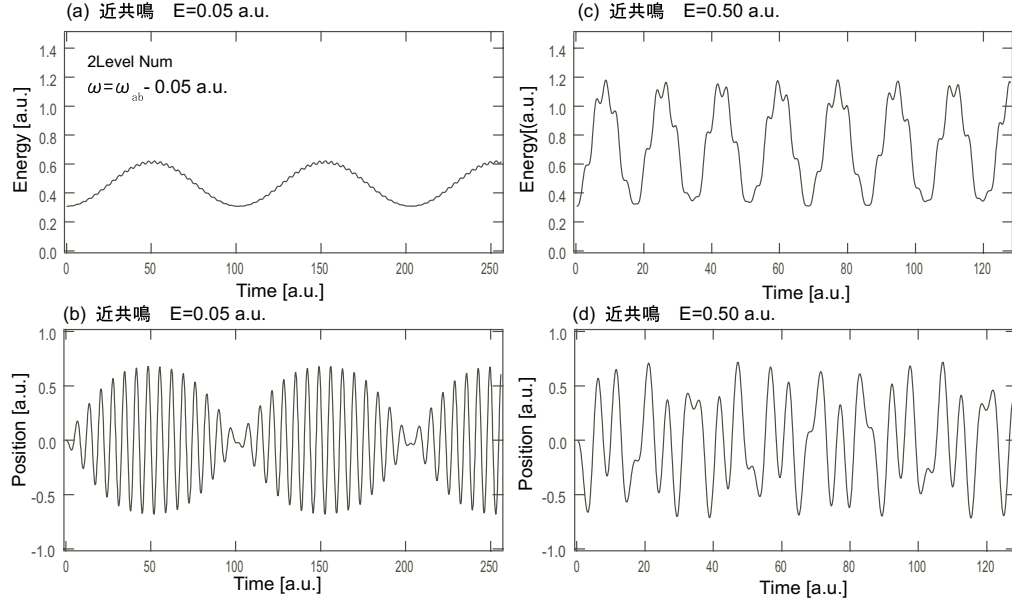


図 4.7 回転波近似なし二準位系に対する、近共鳴点での電気双極子モーメントとエネルギー期待値の時間変化。電場強度  $E_0 = 0.05, 0.50$  a.u. の場合。

$$\begin{aligned}
 i\hbar \frac{d}{dt} C_a(t) &= V_{aa} C_a(t) + V_{ab} C_b(t) + V_{ac} C_c(t) \\
 i\hbar \frac{d}{dt} C_b(t) &= V_{ba} C_a(t) + V_{bb} C_b(t) + V_{bc} C_c(t) \\
 i\hbar \frac{d}{dt} C_c(t) &= V_{ca} C_a(t) + V_{cb} C_b(t) + V_{cc} C_c(t)
 \end{aligned} \tag{4.70}$$

ただし  $V_{ij}$  は先に定義したとおりである。また外場  $V(t)$  の空間分布は奇の対称性を持つため  $V_{aa}, V_{ac}, V_{bb}, V_{bc}, V_{cc}$  の項は消える。よって結局上の式は

$$i\hbar \frac{d}{dt} C_a(t) = V_{ab} C_b(t) \tag{4.71}$$

$$i\hbar \frac{d}{dt} C_b(t) = V_{ba} C_a(t) + V_{bc} C_c(t) \tag{4.72}$$

$$i\hbar \frac{d}{dt} C_c(t) = V_{cb} C_b(t) \tag{4.73}$$

と出来、二番目の準位を介して三番目の準位への励起が可能であることがわかる。ここでは示さないが、数値計算も二準位近似と全く同様にして行うことが出来る。これによってより多くの準位の寄与を取り込んだ時間発展計算が可能になる。原理的には同じ手続きを踏んで  $N$  準位まで拡張が可能であるが、それに付随して計算すべき非対角行列間要素が非常に増大し、場合によっては実空間基底計算よりも煩雑な計算となる。

#### 4.1.6 Floquet 状態から見た電子-光子相互作用

本節では時間に対して周期的な場に対する固有状態である Floquet 状態について述べる。Floquet 状態を理解し、それを二準位系へ適用することを通して、二準位近似の下での電子の共鳴的励起を統一的に理解する手がかりとする。

## Floquet 状態理論の概略

本節では Floquet 状態に対する理論の概略を述べるが、基本的な部分は参考文献 [39] の記述に負うところが大きい。ハミルトニアンが時間に対して周期的に変動するような場合を考える。その周期を  $T$  とすると、このとき時間推進演算子  $U$  は

$$U(t+T) = U(t) \quad (4.74)$$

と与えられ、周期  $T$  で同じ時間発展演算子が作用し続けるということになる。これが出発点である。このことから、最初の周期における時間発展を理解すれば全ての時刻の時間発展を理解することが可能になる。

ベクトル  $Z(t)$  に対して次に示すような  $N$  個の常微分方程式を含む動的な系を考える。

$$\frac{d}{dt}Z(t) = -i\hat{W}(t)Z(t) \quad (4.75)$$

ただし  $\hat{W}$  は  $N \times N$  の係数行列で周期  $T = \frac{2\pi}{\omega}$  である。解を  $\nu$  でラベルして書くと

$$Z_\nu = \exp(-i\epsilon_\nu t)z_\nu \quad (4.76)$$

と出来、ここで  $z_\nu$  は周期  $T$  を持つ [ $z_\nu(t+T) = z_\nu(t)$ ]。ここで  $z_\nu$  が周期的であることを利用してフーリエ級数で

$$z_\nu(t) = \sum_{m=-\infty}^{\infty} z_{\nu m} \exp(im\omega t) \quad (4.77)$$

と展開する。Floquet 理論が主張するのは動的な系に対するベクトル解が存在して、それが

$$Z_\nu = \exp(-i\epsilon_\nu t) \sum_{m=-\infty}^{\infty} z_{\nu m} \exp(im\omega t) \quad (4.78)$$

で与えられるということである。ここで  $\epsilon_\nu$  は Floquet 理論では特性指数と呼ばれ、 $0 \leq \epsilon_\nu \leq \omega$  の周期のなかに最大で  $N$  個ある。これらのそれぞれの  $\epsilon_\nu$  に対して解  $Z_\nu$  が対応しており、最初に提示した動的系に対する最も一般的な解の形は

$$\begin{aligned} Z_n &= \sum_{\nu}^N a_{n\nu} Z_{\nu n}(t) \\ &= \sum_{\nu}^N a_{n\nu} \sum_{m=-\infty}^{\infty} z_{\nu m} a_{n\nu} \exp(-i\epsilon_\nu t + im\omega t) z_{\nu m} \end{aligned} \quad (4.79)$$

で与えられることがわかる。以上をもとにして、時間依存シュレディンガー方程式への適用を行う。

## 時間依存シュレディンガー方程式へ適用

## 時間依存シュレディンガー方程式

$$i\hbar \frac{\partial}{\partial t} \psi(\mathbf{r}, t) = H(t) \psi(\mathbf{r}, t) \quad (4.80)$$

において、今考えている周期的外場の下でハミルトニアンの時間に対する周期性を考えると、時間推進演算子も時間に対する周期性を持つ。このとき、解が

$$\psi_{\epsilon_\nu}(\mathbf{r}, t) = \phi_{\epsilon_\nu}(\mathbf{r}, t) \exp(-i\frac{\epsilon_\nu}{\hbar} t) \quad (4.81)$$

$$\phi_{\epsilon_\nu}(\mathbf{r}, t+T) = \phi_{\epsilon_\nu}(\mathbf{r}, t) \quad (4.82)$$

の形を持つとして、この波動関数を上の時間依存シュレディンガー方程式に代入すると周期関数 (Floquet 状態) の満たすべき方程式

$$[H(t) - \epsilon_\nu] \phi_{\epsilon_\nu} = i\hbar \frac{\partial}{\partial t} \phi_{\epsilon_\nu} \quad (4.83)$$

が求まる。この式から明瞭に  $\phi_{\epsilon_\nu}$  の周期性が要求されていることがわかる。これを移項して整理すると、

$$[H(t) - i\hbar \frac{\partial}{\partial t}] \phi_{\epsilon_\nu} = \epsilon_\nu \phi_{\epsilon_\nu} \quad (4.84)$$

を得る。この式から Floquet 状態がこの系の固有状態であることがよくわかる。以下では、もう少し Floquet 状態に対する理解を深めることを目的としてこれらの方程式を構成する位相空間について簡単に述べる。

拡張位相空間 時間周期系を扱う際には時間自体を位相空間の変数として含める。正準ハミルトン形式を考える、 $t$  は共役な運動量  $p_2$  を持たなくてはならない。位相空間は形式的に  $[q, p; t, p_2 \equiv -H(q, p, t)]$  となり、新しくハミルトニアンを

$$K(q, p; t, p_2) \equiv H(q, p, t) + p_2 = 0 \quad (4.85)$$

と定義する。ハミルトニアンがゼロというのは一見奇妙であるが、このハミルトニアンは拡張されたハミルトン方程式を満たす拡張された位相空間の変数を持つ関数である。拡張されたハミルトン方程式は今までのハミルトン方程式に  $t$  と  $p_2$  についての 2 つの方程式を付け加えたものとなる。ここでもし変数  $t^*$  で系の古典軌道をパラメタライズすると

$$\frac{dt}{dt^*} = \frac{\partial K}{\partial p_2} = 1 \quad (4.86)$$

となる。 $t = t^* + \text{constant}$  と考えてもよい。この結果からもとのハミルトン方程式是不変であることがわかる。また

$$\frac{dp_2}{dt^*} = -\frac{\partial K}{\partial t} = -\frac{\partial H}{\partial t} \quad (4.87)$$

となることもわかり、この式から  $p_2$  がこの系のエネルギーに相当するような変数であることも見て取れる。以上のようにして位相空間の拡張を行うことで、時間に依存した相互作用項を含めた独立系を生成することが出来た。次に  $x, p$  と同じ要領で、 $t, p_2$  を量子化する。

$$p_2 = -i\hbar \frac{\partial}{\partial t} \quad (4.88)$$

$$(t\psi(t)) \equiv t\psi(t) \quad (4.89)$$

ここで  $[p_2, t] = i\hbar$  である。これらの結果から、

$$K \equiv H(t) - i\hbar \frac{\partial}{\partial t}, \quad K\psi = i\hbar \frac{\partial \psi}{\partial t^*} \quad (4.90)$$

を得る。このようにして補助的時間変数  $t^*$  のもとで拡張された時間依存シュレディンガー方程式の形式解

$$\psi(t^*) \equiv U(t^*, 0)\psi(0) \equiv \exp(-it^* \frac{K}{\hbar})\psi(0) \quad (4.91)$$

が得られた。

Quasienergy 演算子とその固有状態 ここで拡張した位相空間を用いて作った演算子の観点から、Floquet 状態についてもう一度考え、演算子  $K$  と  $\epsilon$  との関係が明らかにする。まず、時間を一周期分進める演算子  $U_T$  を

$$U_T = \exp(iTp_2/\hbar) \quad (4.92)$$

とする。この演算子は  $K$  と可換で  $[K, U_T] = 0$  であるので同時固有関数が存在する。ここで  $U_T$  の固有状態は Floquet 状態と呼ばれる。

$$K[\exp(i\lambda t)\phi_\lambda(\mathbf{r}, t)] \equiv \epsilon[\exp(i\lambda t)\phi_\lambda(\mathbf{r}, t)] \quad (4.93)$$

もしくは

$$(H(t) - i\hbar \frac{\partial}{\partial t})[\exp(i\lambda t)\phi_\lambda(\mathbf{r}, t)] = \epsilon[\exp(i\lambda t)\phi_\lambda(\mathbf{r}, t)] \quad (4.94)$$

である。時間に対する微分を行い整理すると

$$K\psi_\lambda(\mathbf{r}, t) = (\epsilon_\nu - \hbar\lambda)\psi_\lambda(\mathbf{r}, t) \quad (4.95)$$

を得る。ここで  $K$  を  $\psi(T) = \psi(0)$  という周期関数の部分空間への演算であると制限して  $K_T$  とし、 $\lambda$  をその縮退性から消去する。この操作によって作られた演算子  $K_T$  が満たす固有値方程式

$$K_T\psi_\nu(q, t) = \epsilon_\nu\psi_\nu(q, t) \quad (4.96)$$

を得る。 $K_T$  は quasienergy 演算子、その固有値  $\epsilon_\nu$  は quasienergy と呼ばれ、またこの方程式の解は Floquet 状態を与える。

#### Bloch 状態との比較

本節では結晶場における Bloch 状態と時間に周期的な外場に対する Floquet 状態とを対比することでその類似性と相異性を考え、時間に周期的な Floquet 状態の特徴を明らかにする。

Bloch 状態 解くべき方程式は

$$H\psi = \epsilon\psi \quad (4.97)$$

であり、空間の周期を  $a$  とすると固有状態は Bloch 状態

$$\psi(x) = u(x) \exp(ikx) \quad (4.98)$$

$$u(x+a) = u(x) \quad (4.99)$$

で与えられる。等価な表式として

$$\psi(x+a) = \exp(i\theta)\psi(x) \quad (4.100)$$

がある。

Floquet 状態 解くべき方程式は

$$K_T\psi_\nu = \epsilon_\nu\psi_\nu, \quad K_T = H - i\hbar \frac{\partial}{\partial t} \quad (4.101)$$

であり、時間の周期を  $T$  とすると、固有状態は Floquet 状態

$$\psi_\nu(\mathbf{r}, t) = u_f(\mathbf{r}, t) \exp(-i\frac{\epsilon_\nu}{\hbar}t) \quad (4.102)$$

$$u_f(\mathbf{r}, t+T) = u_f(\mathbf{r}, t) \quad (4.103)$$

で与えられる。等価な表式として

$$\psi_\nu(\mathbf{r}, t + T) = \exp(-i\frac{\epsilon_\nu}{\hbar}T)\psi_\nu(\mathbf{r}, t) \quad (4.104)$$

がある。

比較 両者はともに周期的外場に対する固有状態であり、周期関数部分と周期境界条件に対応した位相項を持つという点で全く同じ形を備えている。しかし、Bloch 状態が空間方向への周期性によって生じ、位置と運動量を変数とするのに対して Floquet 状態は時間方向への周期性によって、時間と周波数 (エネルギー) を変数として持つ点で違いがある。この違いによって Floquet 状態においては周期関数と quasienergy の間の関係が線形となり、Bloch 状態における結晶運動量とエネルギーとの関係のようなバンド図を書くことが出来ない。これは quasienergy に関与する外場の周波数自身が系の周期性を生み出すためであるということもできる。代わりに Floquet 状態に対しては電場強度を横軸にとったバンド図を書くことが出来る。その解釈については次節以降で論じる。

二準位近似における Quasienergy 演算子の行列表示

ここからは二準位近似における Floquet 状態について検討を行う。前節までとの比較を行うために一次元系を考える。最初に二準位近似のもとでの quasienergy 演算子の行列表示を求め、続いて回転波近似を適用し、二準位 Floquet 状態を求める。さらに Floquet 状態の物理を明確にするため、Floquet 状態と Rabi 振動および電磁場を量子化した結果得られる Dressed 状態との関係について考察する。

二準位系の時間部分をフーリエ級数で展開して行列表示 まず波動関数  $\psi(x, t)$  が二準位で展開出来るとして

$$\psi(x, t) = T_a(t)\phi_a(x) + T_b(t)\phi_b(x) \quad (4.105)$$

とかく。ここで時間に依存する項を  $T_a, T_b$  とまとめてかいた。次にこれを時間依存シュレディンガー方程式に代入する。ただし、ハミルトニアンは先ほどと同じで

$$H = H_0 + xE_0 \sin \omega_0 t \quad (4.106)$$

である。代入の結果

$$\begin{aligned} i\hbar\dot{T}_a &= \epsilon_a T_a + 2\hbar\beta_{ab} \sin \omega_0 t T_b \\ i\hbar\dot{T}_b &= \epsilon_b T_b + 2\hbar\beta_{ba} \sin \omega_0 t T_a \end{aligned} \quad (4.107)$$

を得る。ただし

$$\beta_{ab} = \frac{\langle \phi_a | x E_0 | \phi_b \rangle}{2i\hbar}, \quad \beta_{ab} = \beta_{ba} \quad (4.108)$$

および

$$H_0\phi_a = \epsilon_a\phi_a, \quad H_0\phi_b = \epsilon_b\phi_b \quad (4.109)$$

である。

ここで時間依存シュレディンガー方程式を行列表示することを考え、

$$i\frac{d}{dt}F(t) = H_c(t)F(t) \quad (4.110)$$

とあらわすことができると仮定する。ただし  $F(t)$  は波動関数の基底に対する係数のベクトルである。時間部分  $T_a, T_b$  は Floquet 理論によると

$$F_i = F_i(t) \exp(-i\epsilon_{\nu_i}t) \quad (4.111)$$

と展開出来る。ただし、 $i$  は特性指数の番号とよばれ、非摂動系における準位番号を意味する。これをさらにフーリエ級数で展開し、それらの線形結合が一般解であるとする

$$F(t) = \sum_{ij} \sum_n F_{ij} \exp(in\omega_0 t) \exp(-i\epsilon_{\nu_i} t) \quad (4.112)$$

とかける。同様にハミルトニアンもフーリエ変換すると

$$(H_c)_{ab} = \sum_m H_{ij}^m \exp(im\omega_0 t) \quad (4.113)$$

となる。これらを上の時間依存シュレディンガー方程式に代入して、同じフーリエ級数の指数ごとに方程式をまとめると式がたてることができる。

二準位へ適用 二準位系における時間依存項を

$$\begin{aligned} T_a &= \exp(-i\epsilon_{\nu} t) \sum_{n=-\infty}^{\infty} A_n \exp(in\omega_0 t) \\ T_b &= \exp(-i\epsilon_{\nu} t) \sum_{m=-\infty}^{\infty} B_m \exp(im\omega_0 t) \end{aligned} \quad (4.114)$$

と級数で展開し、係数に対する微分方程式に代入すると左辺は

$$i\hbar \frac{d}{dt} T_a = i\hbar \left[ i\epsilon_{\nu} \exp(-i\epsilon_{\nu} t) \sum_n A_n \exp(in\omega_0 t) - \sum_n in\omega_0 \exp(-i\epsilon_{\nu} t) A_n \exp(in\omega_0 t) \right] \quad (4.115)$$

となり、右辺は

$$\begin{aligned} &\exp(-i\epsilon_{\nu} t) \left[ \epsilon_a \sum_n A_n \exp(in\omega_0 t) + \hbar\beta_{ab} (e^{i\omega_0 t} + e^{-i\omega_0 t}) \sum_n A_n \exp(in\omega_0 t) B_n \right] \\ &= \exp(-i\epsilon_{\nu} t) \left[ \epsilon_a \sum_n A_n \exp(in\omega_0 t) + \hbar\beta_{ab} \left( \sum_n (e^{-i(n-1)\omega_0 t} + e^{-i(n+1)\omega_0 t}) \right) B_n \right] \end{aligned} \quad (4.116)$$

となる。このような級数展開が許されるのは周期的な外場のもとでの時間発展だからということに注意が必要である。指数が同じ  $\omega_0$  の項だけ集めて、それを  $l$  とすると、

$$\begin{aligned} &-\epsilon_{\nu} \hbar e^{-i\epsilon_{\nu} t} A_l e^{-il\omega_0 t} + \hbar l \omega_0 e^{-i\epsilon_{\nu} t} A_l e^{-il\omega_0 t} \\ &= \epsilon_a e^{-i\epsilon_{\nu} t} A_l e^{-il\omega_0 t} + \hbar\beta_{ab} e^{-i\epsilon_{\nu} t} e^{-il\omega_0 t} (B_{l+1} + B_{l-1}) \end{aligned} \quad (4.117)$$

となって、さらにまとめると

$$-\hbar\epsilon_{\nu} A_l + \hbar l \omega_0 A_l = \epsilon_a A_l + \hbar\beta_{ab} (B_{l+1} + B_{l-1}) \quad (4.118)$$

を得る。ただし  $\epsilon_a = \hbar\omega_a$  である。仕上げにもうひとまとめすると

$$\hbar A_l (\epsilon_{\nu} + \omega_a - l\omega_0) = -\hbar\beta_{ab} (B_{l+1} + B_{l-1}) \quad (4.119)$$

を得る。同様にして

$$\hbar B_l (\epsilon_{\nu} + \omega_b - l\omega_0) = -\hbar\beta_{ab} (A_{l+1} + A_{l-1}) \quad (4.120)$$

を得る。これを行列表示すると

$$\begin{pmatrix} \cdot & \cdot & \cdot & \cdot & \cdot & \cdot \\ \beta_{ab} & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 \\ \omega_a - (l-1)\omega_0 & 0 & 0 & \beta_{ab} & 0 & 0 \\ 0 & \omega_b - (l-1)\omega_0 & \beta_{ab} & 0 & 0 & 0 \\ 0 & \beta_{ab} & \omega_a - l\omega_0 & 0 & 0 & \beta_{ab} \\ \beta_{ab} & 0 & 0 & \omega_b - l\omega_0 & \beta_{ab} & 0 \\ 0 & 0 & 0 & \beta_{ab} & \omega_a - (l+1)\omega_0 & 0 \\ 0 & 0 & \beta_{ab} & 0 & 0 & \omega_b - (l+1)\omega_0 \end{pmatrix} \begin{pmatrix} \cdot \\ B_{l-2} \\ A_{l-1} \\ B_{l-1} \\ A_l \\ B_l \\ A_{l+1} \\ B_{l+1} \end{pmatrix} \quad (4.121)$$

となる。これが二準位近似の下での quasienergy 演算子の行列表示である。この行列を対角化することで各 Floquet 状態と quasienergy を定めることが出来る。この際、行列の固有ベクトルの要素  $A_i, B_i$  は各 Floquet 状態に寄与する非摂動状態と周期関数の積の係数であることに注意が必要である。

行列の次数を無限次までとれば二準位近似のもとでの Floquet 状態を求めることが出来るが、実際には無限次の行列を扱うことは不可能であるので近似が必要となる。ここでも前節までの非摂動状態による展開と同様回転波近似を適用した場合を解析的に解き、回転波近似なしの場合を数値的に解くことで Floquet 状態について具体的に見ていく。

#### 回転波近似のもとでの二準位 Floquet 状態

回転波近似は、数式の上では波動関数の時間発展に対する高周波数成分  $\omega_0 + (\omega_m - \omega_n)$  の項を時間発展への寄与が小さいとして落として計算することであった。その物理描像は、高次の振動項によって電子系が光子を吸収して励起され、かつ光子数が一つ増大するということであり、これは非常に起こりにくい過程であることから回転波近似の妥当性が保証されていた。今考えている行列に対して回転波近似を適用することを考えると、quasienergy 演算子における高周波数成分は対角項から遠いところにある非対角要素であることはすぐにわかる。これらは各  $\omega$  に対する行列の固有状態が一つ違ってさらに  $\omega$  がエネルギーの同じほうに一つ異なるような行列要素であり、上で述べた量子論的立場から見た回転波近似の意味が明瞭に読み取れる表示であることもわかる。実際 Floquet 状態は量子論における Dressed 状態の半古典近似での表現と見ることも出来る。これについては次節で述べる。回転波近似を適用して非対角項を落とすと無限次の行列はブロックごとの行列に分離される。このブロック化した行列ごとに対角化を行うと各小行列は  $\exp(i\omega t)$  だけずれた固有状態を持ち、さらに固有値は  $\epsilon = \epsilon_i + m\omega$  となる。Floquet 状態の位相項に  $-\epsilon_i$  の項が存在したことを踏まえるとこの Floquet 状態は第一ブリルアンゾーンに折り返され、結局、一つの小行列に対する固有値と固有状態を解けば十分ということになる。

行列を対角化して Floquet 状態を導出 行列を対角化する。

$$\begin{pmatrix} \omega_b & \beta_{ab} \\ \beta_{ab} & \omega_a + \omega_0 \end{pmatrix} \quad (4.122)$$

まず固有値を求めると、

$$\begin{aligned} \begin{vmatrix} \omega_b - \epsilon_\nu & \beta_{ab} \\ \beta_{ab} & \omega_a + \omega_0 - \epsilon_\nu \end{vmatrix} &= (\omega_b - \epsilon_\nu)(\omega_a + \omega_0 - \epsilon_\nu) - \beta_{ab}^2 \\ &= \epsilon_\nu^2 - \epsilon_\nu(\omega_b + \omega_a + \omega_0) + (\omega_a\omega_b + \omega_b\omega_0 - \beta_{ab}^2) \end{aligned} \quad (4.123)$$

であり、

$$\begin{aligned} \epsilon_\nu &= \frac{(\omega_b + \omega_a + \omega_0) \pm \sqrt{(\omega_b + \omega_a + \omega_0)^2 - 4(\omega_a\omega_b + \omega_b\omega_0 - \beta_{ab}^2)}}{2} \\ &= \frac{1}{2}(\omega_b + \omega_a + \omega_0) \pm \frac{1}{2}\sqrt{\Delta^2 + 4\beta_{ab}^2} \end{aligned} \quad (4.124)$$

を得る。ここで  $\Delta = (\omega_b - \omega_a) - \omega_0$  とした。さらに  $\sqrt{\Delta^2 + 4\beta_{ab}^2}$  もまとめ、 $\Omega$  とし、また前節の行列化のところで落とした  $\hbar$  を戻すと固有値は

$$\epsilon_\nu = \frac{\hbar}{2}(\omega_b + \omega_a + \omega_0) \pm \frac{\hbar}{2}\Omega \quad (4.125)$$

となる。次に固有ベクトルを求める。まず  $+$  の方を代入すると、

$$[\omega_b - \frac{1}{2}(\omega_b + \omega_a + \omega_0) - \frac{1}{2}\Omega]\psi_2(x) + \beta_{ab}\psi_1(x) = 0 \quad (4.126)$$

$$\beta_{ab}\psi_2(x) + [\omega_a + \omega_0 - \frac{1}{2}(\omega_b + \omega_a + \omega_0) - \frac{1}{2}\Omega]\psi_1(x) = 0 \quad (4.127)$$

という二本の方程式が立つ。それぞれを  $\phi_1(x)$  について解き、それをまとめると

$$\beta_{ab}^2 = \frac{1}{4}(\Omega^2 - \Delta^2) \quad (4.128)$$

という関係が求まる。この関係を踏まえて上の方程式を規格化すると結局、

$$u_1(t) = \sqrt{\frac{1}{2} \frac{\Omega + \Delta}{\Omega}} \exp(i\omega_0 t) \phi_a(x) + \sqrt{\frac{1}{2} \frac{\Omega - \Delta}{\Omega}} \phi_b(x) \quad (4.129)$$

を得る。同様にして  $-$  の方も求め、

$$u_2(t) = -\sqrt{\frac{1}{2} \frac{\Omega - \Delta}{\Omega}} \exp(i\omega_0 t) \phi_a(x) + \sqrt{\frac{1}{2} \frac{\Omega + \Delta}{\Omega}} \phi_b(x) \quad (4.130)$$

となる。

Floquet 状態から見た Rabi 振動 ここでは上で得られた二準位 Floquet 状態と前節で考察した Rabi 振動との関係について考える。完全な共鳴が起きている場合には  $\Delta = 0$  となり、各 Floquet 状態を簡単な形で書き表すことが出来る。

$$\begin{aligned} u_1(t) \exp(-i \frac{\epsilon_{\nu_-} t}{\hbar}) &= \frac{1}{\sqrt{2}} \exp(i\beta_{ab} t) [\phi_a(x) \exp(-i \frac{\epsilon_a t}{\hbar}) + \phi_b(x) \exp(-i \frac{\epsilon_b t}{\hbar})] \\ u_2(t) \exp(-i \frac{\epsilon_{\nu_+} t}{\hbar}) &= \frac{1}{\sqrt{2}} \exp(i\beta_{ab} t) [-\phi_a(x) \exp(-i \frac{\epsilon_a t}{\hbar}) + \phi_b(x) \exp(-i \frac{\epsilon_b t}{\hbar})] \end{aligned} \quad (4.131)$$

$\phi_2$  を電子が占有しているとして初期状態を与えると、各 Floquet 状態の係数が決定され、 $c_1 = -1/\sqrt{2}$ ,  $c_2 = 1/\sqrt{2}$  を得る。

ところで電子が基底状態から励起状態へ遷移するまでの時間周期  $T_{inv}$  は  $T_{inv} = \pi/2\beta_{ab}$  であるが (Rabi 振動の周期) これは共鳴条件を満たす場合

$$\Omega = 2\beta_{ab} \quad (4.132)$$

であることから、

$$(\epsilon_{\nu_2} - \epsilon_{\nu_1}) \frac{T_{inv}}{\hbar} = \pi \quad (4.133)$$

と与えられる。ゆえに Floquet 状態の立場から電子の共鳴遷移を見ると、Rabi 振動とは二つの Floquet 状態間の干渉であるということも可能である。一例として、この条件における二つの Floquet 状態を図示したのが図 4.8 である。横軸が位置  $x$ 、縦軸が時間  $t$  をあらわし、これらの状態の重ね合わせが電子波動関数の時間発展を与えることがよく理解出来る。



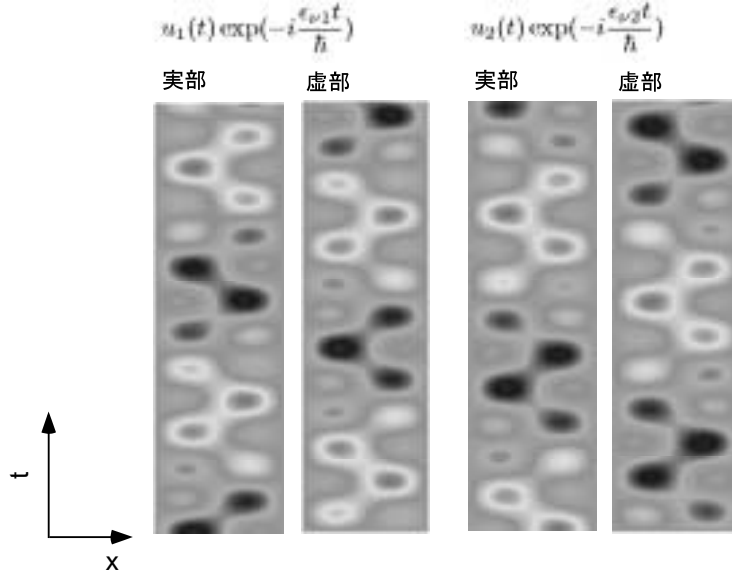


図 4.8 回転波近似二準位系における Floquet 状態の実部と虚部を空間と時間に対して表示。横軸が位置  $x$ 、縦軸が時間  $t$  をあらわす。

#### Floquet 状態と Dressed 状態の関係

二つの Floquet 状態の干渉として Rabi 振動を見ることが、電磁場を量子化して電子-光子相互作用を扱った際にあらわれる共鳴遷移における Dressed 状態と同等であることを見ていく (Dressed 状態についての詳細は付録 D を参照のこと)。

**Dressed 状態の行列表現** 電磁場を量子化して扱い、二準位回転波近似の下でのハミルトニアンを  $|g(e), n\rangle$  の固有関数系で展開して行列表示すると

$$\begin{pmatrix} -\omega_{eg}/2 & & & & & \\ & \omega_{eg}/2 & g & & & \\ & g & -\omega_{eg}/2 + \omega & & & \\ & & & \omega_{eg}/2 + \omega & \sqrt{2}g & \\ & & & \sqrt{2}g & -\omega_{eg}/2 + 2\omega & \\ & & & & & \ddots \end{pmatrix} \begin{pmatrix} |g, 0\rangle \\ |e, 0\rangle \\ |g, 1\rangle \\ |e, 1\rangle \\ |g, 2\rangle \\ \vdots \end{pmatrix} \quad (4.134)$$

を得る。ここで  $|g(e)\rangle$  は電子の基底状態 (第一励起状態) をあらわし  $|n\rangle$  は光子の数状態をあらわす。この行列は小行列

$$\begin{pmatrix} (n-1)\hbar\omega + \frac{1}{2}\hbar\omega_{eg} & \sqrt{n}\hbar g \\ \sqrt{n}\hbar g & n\hbar\omega - \frac{1}{2}\hbar\omega_{eg} \end{pmatrix} \begin{pmatrix} |g, n-1\rangle \\ |e, n\rangle \end{pmatrix} \quad (n = 1, 2, \dots) \quad (4.135)$$

が対角に並んだ行列であり、この各小行列は容易に対角化することが出来る。固有関数、固有値はそれぞれ

$$|+, n\rangle = \cos(\phi_n/2)|e, n-1\rangle + \sin(\phi_n/2)|g, n\rangle \quad (4.136)$$

$$|-, n\rangle = -\sin(\phi_n/2)|e, n-1\rangle + \cos(\phi_n/2)|g, n\rangle \quad (4.137)$$

$$E(n) = (n - \frac{1}{2})\hbar\omega + \frac{1}{2}\hbar\Omega_{n-1}, \quad \Omega_{n-1} = (\delta^2 + 4ng^2)^{1/2} \quad (4.138)$$

である。ただし、 $\tan(\phi_n) = \pm 2\sqrt{n}g/\delta$  とした。この状態は原子の二準位と電磁場の単一モードの間で絶えず光子をやりとりしている状態をあらわし、このような状態は Dressed 状態と呼ばれる。

Floquet 状態と Dressed 状態の比較 Dressed 状態に対するハミルトニアン of 行列表現と quasienergy 演算子には類似性があることはすぐに見て取ることができるが、両者には二つの大きな違いがある。一つは  $n$  が量子系では 0 から  $\infty$  までであるのに対して、Floquet 系では  $-\infty$  から  $\infty$  ということであり、もうひとつは非対角行列要素が量子論では  $n$  に依存している ( $1/\sqrt{n}$  に比例) のに対して Floquet 状態では定数だということである。両者の違いはフォトン数  $N$  が非常に大きい領域で小さくなる。これらのことから半古典的に電磁波と電子の相互作用を考える行為は、フォトン数  $N$  が大きい場合、つまりコヒーレントな電磁場が入射した場合の電子状態変化を記述していることと同等であることがよく理解出来る。

#### 4.1.7 二準位系 Floquet 状態

上では回転波近似のもとでの二準位系について、Floquet 状態を検討してきたが、ここでは数値的に Floquet 状態を求めることで、回転波近似なしの Floquet 状態について議論する。quasienergy 演算子を数値的に対角化することで Floquet 状態を求める。二準位系に対する数値解を検討した後、最後に三準位から  $N$  準位までの拡張を行う。出発点は quasienergy 演算子である。

二準位 Quasienergy 演算子の行列表示 上で見たように、今考えている二準位系を

$$\begin{aligned} T_a &= \exp(-i\epsilon_\nu t) \sum_{n=-\infty}^{\infty} A_n \exp(-in\omega_0 t) \\ T_b &= \exp(-i\epsilon_\nu t) \sum_{m=-\infty}^{\infty} B_m \exp(-im\omega_0 t) \end{aligned} \quad (4.139)$$

とにおいて係数に対する微分方程式に代入すると左辺は

$$\hbar A_l(\epsilon_\nu + \omega_a - l\omega_0) = -\hbar\beta_{ab}(B_{l+1} + B_{l-1}) \quad (4.140)$$

と与えられ、同様にして

$$\hbar B_l(\epsilon_\nu + \omega_b - l\omega_0) = -\hbar\beta_{ab}(A_{l+1} + A_{l-1}) \quad (4.141)$$

であり、これを行列表示すると

$$\begin{pmatrix} \cdot & \cdot & \cdot & \cdot & \cdot & \cdot \\ \beta_{ab} & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 \\ \omega_a - (l-1)\omega_0 & 0 & 0 & \beta_{ab} & 0 & 0 \\ 0 & \omega_b - (l-1)\omega_0 & \beta_{ab} & 0 & 0 & 0 \\ 0 & \beta_{ab} & \omega_a - l\omega_0 & 0 & 0 & \beta_{ab} \\ \beta_{ab} & 0 & 0 & \omega_b - l\omega_0 & \beta_{ab} & 0 \\ 0 & 0 & 0 & \beta_{ab} & \omega_a - (l+1)\omega_0 & 0 \\ 0 & 0 & \beta_{ab} & 0 & 0 & \omega_b - (l+1)\omega_0 \end{pmatrix} \begin{pmatrix} \cdot \\ B_{l-2} \\ A_{l-1} \\ B_{l-1} \\ A_l \\ B_l \\ A_{l+1} \\ B_{l+1} \end{pmatrix} \quad (4.142)$$

となることを前節で述べた。回転波近似を用いた場合には 2 行 2 列の小行列を対角化すれば十分であったが、回転波近似を超えた取り扱いをするためには非対角項まで含めた対角化が必要となる。しかしすでに述べたように、フーリエ級数の指数項は  $-\infty$  から  $\infty$  まであり、これは計算機に載せることはできない。実際にはフーリエ級数をその寄与が十分小さくなる次数まで行列をとり、その行列に対して数値的に対角化を行う。

計算結果と行列打ち切りの回数について まず数値計算の準備としてフーリエ級数の打ち切りをどのくらいにすれば十分な結果になるかを検討した。非対角項の絶対値は電場強度に比例して大きくなるためどのような電場強度領域まで数値計算で考慮するかによって必要なフーリエ級数の回数が決まる。

本研究では基本的には電場強度  $E_0$  が 3.0 a.u. よりも小さい領域を考えると、その範囲において正しい結果を与えるように行列の回数の見積もりを行った。図 4.9 は、フーリエ級数の回数が  $l = \pm 3, 5, 10$  および回転波近似における quasienergy を電場強度に対して図示したものである。どの場合も電場強度が比較的小さな領域ではほぼ同じ結果を与えるが、 $l = \pm 3, 5$  においては電場強度が大きな領域で遠くの非対角項からの寄与が正しく取り込めず quasienergy が正しい結果から大きくずれていることがわかる。上の結果では  $l = \pm 10$  まで取り込むと良い結果が得られた。ただし図には示していないが非共鳴条件の場合にはこの傾向は強くなり、より遠くの非対角項成分まで取り込む必要が出てくる。本研究では汎用性を考慮して  $l = \pm 20$  までをとって計算を行うこととした。

注 実空間表現との関係 Floquet 状態と実空間格子で系を表現した場合との対応が問題となるが、実空間の格子を基底にとった表現に対しては二段階の計算が必要となる。実空間格子の各基底（各メッシュ点）自身はハミルトニアンに対してよい基底ではないので、エネルギー固有値の行列という形に書くことは出来ない。そこで第一段階として非摂動状態に対する固有状態と固有値を実空間基底を用いて求めておく。第二段階としてその結果得られた固有値と固有関数を用いて quasienergy 演算子を構成し、各基底に対する係数を求めることで Floquet 状態が得られる。

## バンド図

ここでは電場強度に対して quasienergy をプロットすることで得られた Floquet 状態に対するバンド図について検討を行う。共鳴周波数における電場強度と quasienergy の関係を図示したのが図 4.10 である。

ブリルアンゾーンについて 前節で調べたように回転波近似においては quasienergy はフーリエ級数の回数ごとに

$$\epsilon = \epsilon_i + m\hbar\omega_0 \quad (4.143)$$

と与えられた。ここで Floquet 状態について考えてみると

$$\psi_{Flo} = u(\mathbf{r}, t) \exp(-i\epsilon_\nu t) \quad (4.144)$$

であり、フーリエ級数の分の周期関数のずれは quasienergy の振動と相殺されて、結局ひとつの  $(\alpha, l), (\beta, l-1)$  の組だけ見れば十分であることがわかる。これは結晶における第一ブリルアンゾーンへの還元ということに相当する。回転波近似なしの場合には非対角項の寄与による準位間反発によって quasienergy はもう少し変わった形になるが基本的には回転波近似における性質を受け継ぐと考えて良い。注目する一つのブリルアンゾーンを囲んだ。

準位交差とバンドギャップについて 共鳴条件においては、電場強度ゼロの点で二つの Floquet 状態は縮退しているが電場強度の増加と共に分裂を始め、ブリルアンゾーンの境界付近で上の状態から落ちてきた準位と近づく。回転波近似においてはここで準位が交差するが、この場合はそれとは異なり準位の交差は起こらずギャップが開く（図 4.9(a) を参照）。これに対して第二の交差点においては、準位の交差が起こる。この準位の交差と反発は電場強度の増加に伴い反復され、ギャップの大きさは電場強度が強いほど大きくなる。このような準位の反発は回転波近似で落とした非対角項の寄与によるものと考えられる。それぞれの準位反発における非対角項の寄与を Holthaus らが摂動論を用いて検討しており、電場強度の大きな領域における反発ほど高次の（対角項から遠い）要素の影響があらわれることを明らかにしている<sup>43)</sup>。

非共鳴状態に対する quasienergy 非共鳴状態に対しても同様の結果が与えられる。図 4.11 は電場の周波数  $\omega = 0.23\omega_{ab}, 0.50\omega_{ab}, 0.80\omega_{ab}$  に対する電場強度と quasienergy の関係をあらわした結果であるが、どの結果においてもブリルアンゾーン内部における準位の交差と、ブリルアンゾーン境界における準位の反発が繰り返される。また

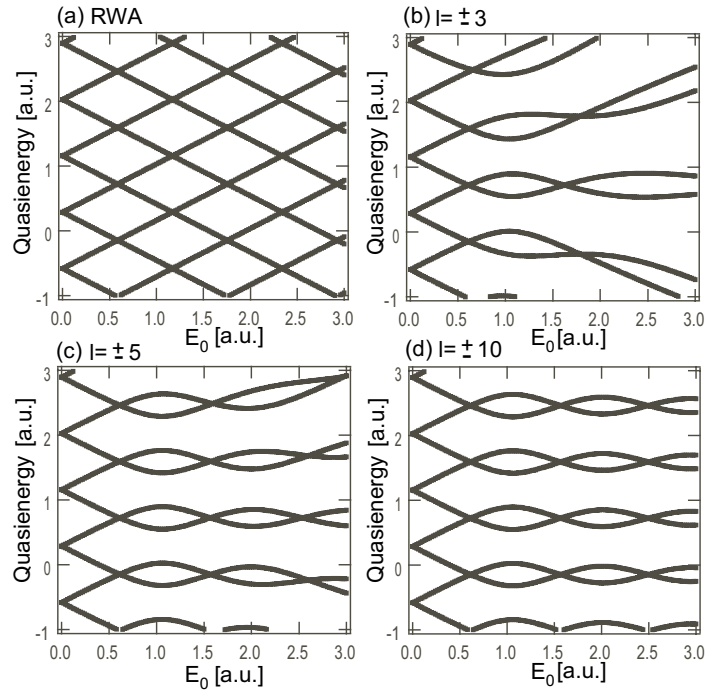


図 4.9 (a) 回転波近似のもとでの quasienergy と電場強度の関係。(b)~(d) 行列表示した quasienergy 演算子の次数に対する quasienergy と電場強度の関係。低次のハミルトニアンにおいては電場強度の高い領域での quasienergy の誤差が増す結果が得られている。

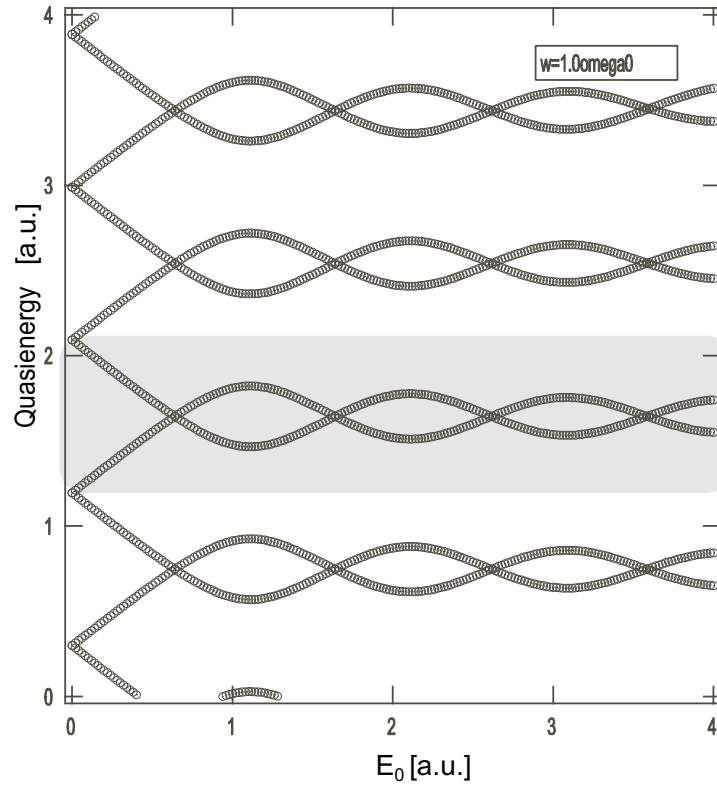


図 4.10 二準位 quasienergy 演算子を数値的に対角化することで求めた、共鳴周波数における電場強度と quasienergy の関係

周波数が小さいほどブリルアンゾーンの大きさは小さくなり、同時にギャップも小さくなる。ブリルアンゾーンの縮小は、Floquet 状態においては電場の周波数自身が系の周期性を定めることに起因している。周波数が小さいほど周期は長くなり、それに対応してブリルアンゾーンの範囲が狭まっていく。また周波数が共鳴状態から遠いほどバンドの折り返しが激しくなっていくが、これは quasienergy に寄与する  $\Omega = \sqrt{\Delta^2 + 4\beta_{ab}}$  中の  $\Delta$  の項が大きくなるためである。 $\Delta$  の存在によって quasienergy は  $E_0$  に対して曲率を持って変化し、結果として折りたたみが激しいという結果を与える。またここでは示さないが、非共鳴条件の場合には多準位の Floquet 状態に対するバンド図はより複雑な形となる。これは電磁場の条件が非共鳴的であることにより、特定の二準位だけではない光学過程が可能になることに対応した結果である。この点を踏まえると、非共鳴的光学過程を考える際には多準位 Floquet 状態への拡張が不可欠となる。

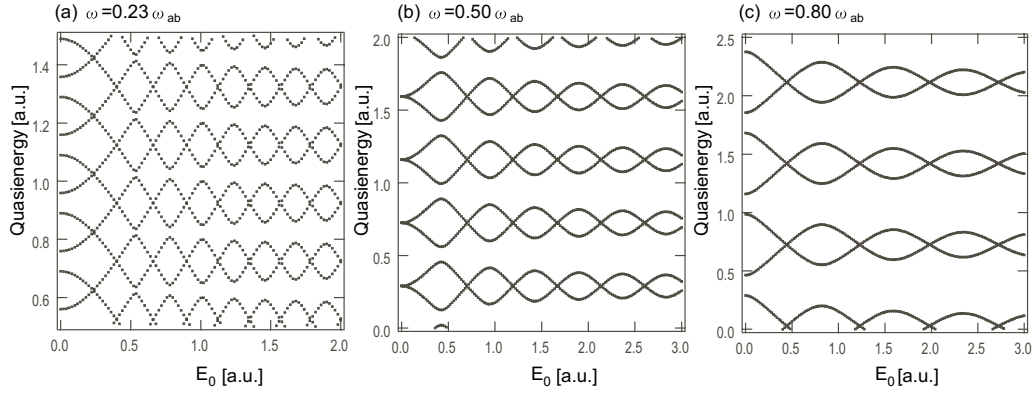


図 4.11  $\omega = 0.23\omega_{ab}, 0.50\omega_{ab}, 0.80\omega_{ab}$  に対する電場強度と quasienergy の関係。

以上電場強度に対する quasienergy の変化を見てきたが、これを踏まえて、時間発展計算結果を解釈することを次章では行う。

#### 4.1.8 三準位系における Quasienergy 演算子の行列表示と $N$ 準位までの拡張

最後に多準位への拡張の足がかりとして、三準位系に対する quasienergy 演算子の行列表示を示しておく。

$$\begin{aligned} T_a &= \exp(-i\epsilon_\nu t) \sum_{n=-\infty}^{\infty} A_n \exp(-in\omega t) \\ T_b &= \exp(-i\epsilon_\nu t) \sum_{m=-\infty}^{\infty} B_m \exp(-im\omega t) \\ T_c &= \exp(-i\epsilon_\nu t) \sum_{k=-\infty}^{\infty} C_k \exp(-ik\omega t) \end{aligned} \quad (4.145)$$

とにおいて係数に対する微分方程式に代入すると

$$\hbar A_l(\epsilon_\nu + \omega_a - l\omega) = -\hbar\beta_{ab}(B_{l+1} + B_{l-1}) - \hbar\beta_{ac}(C_{l+1} + C_{l-1}) \quad (4.146)$$

を得る。同様に

$$\hbar B_l(\epsilon_\nu + \omega_b - l\omega) = -\hbar\beta_{ab}(A_{l+1} + A_{l-1}) - \hbar\beta_{bc}(C_{l+1} + C_{l-1}) \quad (4.147)$$

$$\hbar C_l(\epsilon_\nu + \omega_c - l\omega) = -\hbar\beta_{ac}(A_{l+1} + A_{l-1}) - \hbar\beta_{bc}(C_{l+1} + C_{l-1}) \quad (4.148)$$

であり、これらを行列表示すると

$$\begin{pmatrix} \cdot & \cdot & \cdot & \cdot & \cdot & \cdot & \cdot & \cdot & \cdot & \cdot \\ \cdot & \beta_{ac} & \beta_{bc} & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 \\ \cdot & \omega_a - \omega & 0 & 0 & 0 & \beta_{ab} & \beta_{ac} & 0 & 0 & 0 \\ \cdot & 0 & \omega_b - \omega & 0 & \beta_{ab} & 0 & \beta_{bc} & 0 & 0 & 0 \\ \cdot & 0 & 0 & \omega_c - \omega & \beta_{ac} & \beta_{bc} & 0 & 0 & 0 & 0 \\ \cdot & 0 & \beta_{ab} & \beta_{ac} & \omega_a + 0 & 0 & 0 & 0 & \beta_{ab} & \beta_{ac} \\ \cdot & \beta_{ab} & 0 & \beta_{bc} & 0 & \omega_b + 0 & 0 & \beta_{ab} & 0 & \beta_{bc} \\ \cdot & \beta_{ac} & \beta_{bc} & 0 & 0 & 0 & \omega_c + 0 & \beta_{ab} & \beta_{bc} & 0 \\ \cdot & 0 & 0 & 0 & 0 & \beta_{ab} & \beta_{ac} & \omega_a + \omega & 0 & 0 \\ \cdot & 0 & 0 & 0 & \beta_{ab} & 0 & \beta_{bc} & 0 & \omega_b + \omega & 0 \\ \cdot & 0 & 0 & 0 & \beta_{ac} & \beta_{bc} & 0 & 0 & 0 & \omega_c + \omega \end{pmatrix}$$

を得る。この行列を対角化することで三準位系に対する Floquet 状態を求めることができる。

さらに  $N$  準位への拡張も上と同様の手続きを踏むことで容易である。 $N$  準位の表示については文献<sup>(41), (42)</sup>を参照されたい。考える系に応じて、必要な準位の数は異なってくるが、次章の射影による時間発展の解析を用いることで時間発展に関与する準位の数を容易に定められることを明らかにする。

## 4.2 実空間差分法を用いた波動関数の時間発展計算

外部振動場の印加された量子井戸に閉じ込められた電子の時間発展を時間依存シュレディンガー方程式の数値解法を用いて解き、その結果を前節までで議論してきた二準位近似に対する結果と比較することで、計算の有用性、整合性および限界点を議論する。実空間を基底とした時間発展は波動関数を直接表現する計算であるため、実空間の格子点により表現可能な振動を全て計算に取り込んだ結果が期待される。ゆえに二準位近似を超えた、多準位の関与する光学過程を含む結果が得られることが予想される。前節までと同様、周期的外場の振動数が共鳴条件、近共鳴、非共鳴それぞれを満たす場合に対して、エネルギー期待値の時間変化、位置期待値（電気双極子モーメント）の時間発展を主にフーリエ変換を用いた波数分布解析を通して調べる。さらにもう一歩進めて各時刻に得られる波動関数を、前節で論じた非摂動固有状態及び Floquet 状態へそれぞれ射影することで波動関数の時間発展を直接的に評価することを試みた結果について述べる。

### 4.2.1 系の設定と時間依存シュレディンガー方程式の数値解法

井戸の幅  $L = 4$  a.u. の一次元の無限に深い井戸を考える。この系の固有エネルギーは、

$$E_n = \frac{\hbar^2}{2m} \left( \frac{n\pi}{L} \right)^2 \quad (4.149)$$

であるので、原子単位系 ( $\hbar = 1, m = 1$ ) では、固有エネルギーは表に示すようになる。また固有関数は

$$\phi_n = A \sin \frac{2\pi nx}{L} \quad (4.150)$$

である。ただし  $A$  は規格化因子をあらわす。この系に対して前節までと同様、電気双極子近似のもとでの電子-光子相互作用項

$$V_{td} = E_0 x \sin \omega t \quad (4.151)$$

が加わった場合を数値計算を通して議論する。

表 4.1  $L = 4$  a.u. の無限井戸型ポテンシャル場の固有エネルギー

n	エネルギー (a.u.)
1	0.3084
2	1.2337
3	2.7758
4	4.9347
5	7.7105

ハミルトニアンが時間に依存する場合の計算 第2章で述べた時間に依存したスカラーポテンシャル場に対する指数積分分解を適用する。シュレディンガー方程式の形式解は

$$\psi(x, t) = \tilde{T} \exp \left[ -\frac{i}{\hbar} \int_t^{t+\Delta t} H(x, t') dt' \right] \psi(x, t_0) \quad (4.152)$$

で与えられ、これに対して二次精度で指数積分分解を行い、時間推進演算子を

$$\begin{aligned} & \tilde{T} \exp \left[ -\frac{i}{\hbar} \int_t^{t+\Delta t} H(x, t') dt' \right] \\ & \simeq \exp \left[ i \frac{\Delta t}{2} \frac{\hbar}{2m} \frac{\partial^2}{\partial x^2} \right] \exp \left[ -i \Delta t \left\{ V_{td}(x, t + \frac{\Delta t}{2}) + V_{stat}(x) \right\} \right] \exp \left[ i \frac{\Delta t}{2} \frac{\hbar}{2m} \frac{\partial^2}{\partial x^2} \right] \end{aligned} \quad (4.153)$$

と分解した。ただし、時間に依存しないポテンシャル項を  $V_{stat}$  とした。ここで時間に依存するポテンシャル項  $V_{td}$  に対しては時刻  $t + \frac{\Delta t}{2}$  の情報が必要となるが、今扱っている周期的振動外場は波動関数自身には依存しないとしているため、値を決めるのに困難は全くない。この分解を用いて時間依存外場に対する波動関数の時間発展を計算した。

#### 4.2.2 物理量の時間発展

共鳴遷移におけるエネルギー期待値および電気双極子モーメントの時間発展

井戸の幅  $L = 4.0$  a.u. の電磁場の振動数としては基底状態のエネルギーと第1励起状態のエネルギー差に相当する  $w = 0.92526$  a.u. を与えた。

表 4.2 計算の条件

空間刻みの数 N	64
空間刻み幅	1/16 [a.u.]
時間刻み幅	1/256 [a.u.]
外場の振動数	0.92526 [a.u.]

$E_0 = 0.05, 0.50$  a.u. における物理量の時間変化に対する計算結果を図 4.12 に載せた。電場強度の比較的弱い  $E_0 = 0.05$  a.u. においては、エネルギー期待値、電気双極子モーメントともに二準位近似における時間発展とほぼ同等の結果となっているのに対し、電場強度が  $E_0 = 0.50$  a.u. においては、その時間発展が大きく二準位近似による結果から逸脱していることがわかる。より詳細な比較を行うために、フーリエ変換による波数成分解析を行った。

上で数値的に求めたエネルギー期待値と電気双極子モーメントの期待値の時間発展に対してフーリエ変換を行った結果が図 4.13 である。二準位近似におけるフーリエ変換結果 [図 4.6] と比較すると、ほとんど一致しているように見

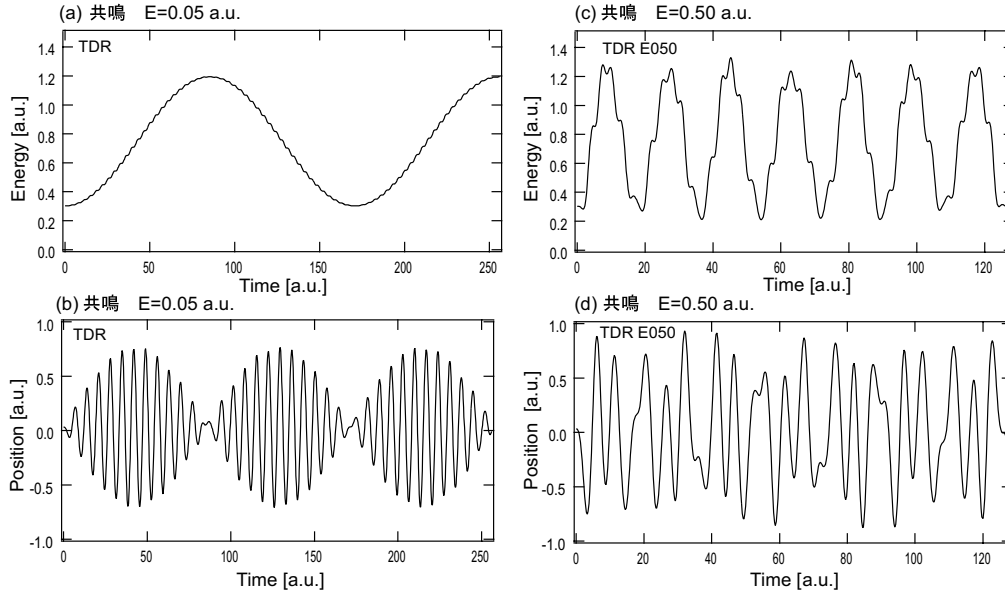


図 4.12 電場強度  $E_0 = 0.05, 0.50$  a.u. に対する実空間差分を用いた数値計算による共鳴点でのエネルギー期待値、位置期待値の時間変化。計算条件は  $\Delta x = 1/16$  a.u.,  $\Delta t = 1/256$  a.u.

えた電場強度  $E_0 = 0.05$  a.u. においても両者の波数成分に大きな違いがあらわれることがわかる。まずエネルギー期待値について詳細に見ていくと、 $E_0 = 0.05$  a.u. においては二準位近似で予測された  $k = \epsilon_\nu$  と  $k = 2\omega$  におけるピークとその分裂が確認されるが、実空間差分による結果ではこれに加えて二つの新たな分裂ピークが  $\omega = 0.65$  および  $2.40$  a.u. 付近に確認される。さらに  $E_0 = 0.50$  a.u. では、これらに加えて二準位近似からは予測できない、より多くの大小のピークが表れ、非常に複雑な振動であることがわかる。これらの波数成分は多準位の効果によるものと考えられる。実空間差分による計算においては共鳴に関与する二準位のみならず、差分で表現出来る準位までが取り込まれており、電子の多段的な遷移が新たな波数成分を与えたと考えられる。実際にこれらの波数成分がどのような状態間の遷移に相当するのか帰属するためには、前節で述べた三準位系の係数の時間発展計算などの多準位を取り込んだ解析が必要となる。

位置期待値の時間発展においても同様の結果が得られた。 $E_0 = 0.05$  a.u. においては二準位近似で予想された  $\omega \pm 2\epsilon_\nu$  における分裂ピークとさらに高い周波数成分を見ることが出来るが、 $E_0 = 0.50$  a.u. においては非常に多くの波数成分が重畳されており、それぞれがどのような物理描像に対応しているのか見出すのは困難であり、理論との対応を明確化するより直接的な解析法が求められる。

#### 近共鳴条件におけるエネルギー期待値および電気双極子モーメントの時間発展

次に電磁場の周波数が共鳴点からわずかに外れた近共鳴条件を満たす場合について時間発展計算を行った。電磁場の周波数を  $\omega_{ab} - 0.05$  a.u. とし、その他の計算条件は共鳴条件と全く同じとした。

計算結果 計算の結果、ここでも共鳴点と同様、電場の弱い範囲では二準位近似が良く成立しており、また電場強度の強い領域では両者が一致しない結果が得られた。また電場強度の大きい領域では近共鳴点においてもほぼ共鳴点におけるのと同等のエネルギー振幅および電気双極子の振動が得られた。先ほどはフーリエ変換を用いて物理量の時間変化が持つ振動数を解析したが、それぞれの振動にどのような物理的描像に対応しているのか調べることは非常に困難であった。そこで次節では、波動関数の時間発展をより詳細に解析するための手法として固有状態への射影法を提案する。



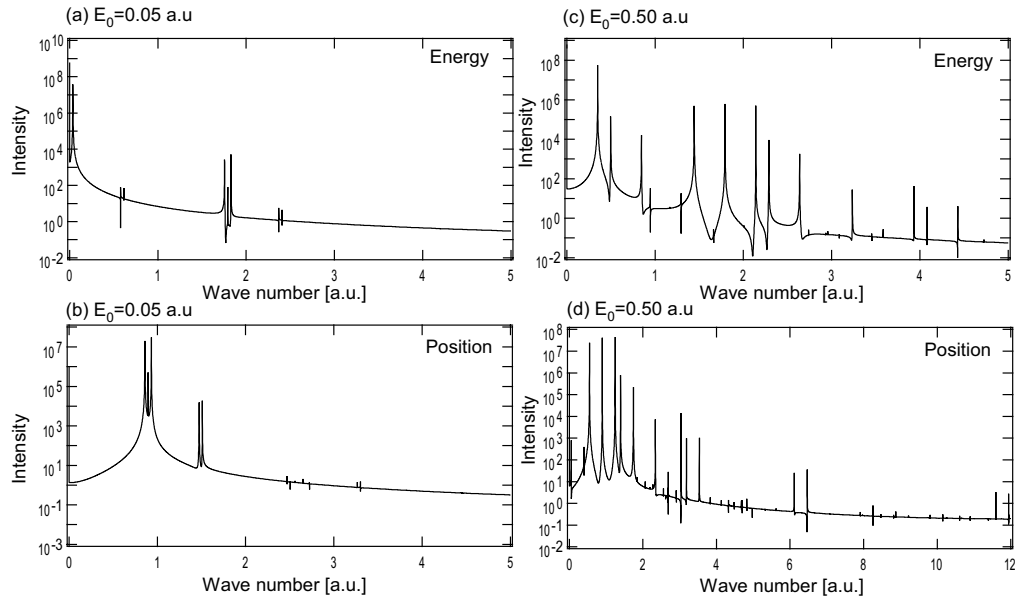


図 4.13 共鳴点における位置期待値、エネルギー期待値の時間発展に対するフーリエ変換の結果。(a)  $E_0 = 0.05$  a.u. におけるエネルギー期待値の時間発展が持つ波数分布と (b) 位置期待値の時間発展が持つ波数分布。同じく、(c)  $E_0 = 0.50$  a.u. におけるエネルギー期待値の時間発展が持つ波数分布と (d) 位置期待値の時間発展が持つ波数分布。サンプリング間隔 0.25 a.u. サンプリング点 32800 点。

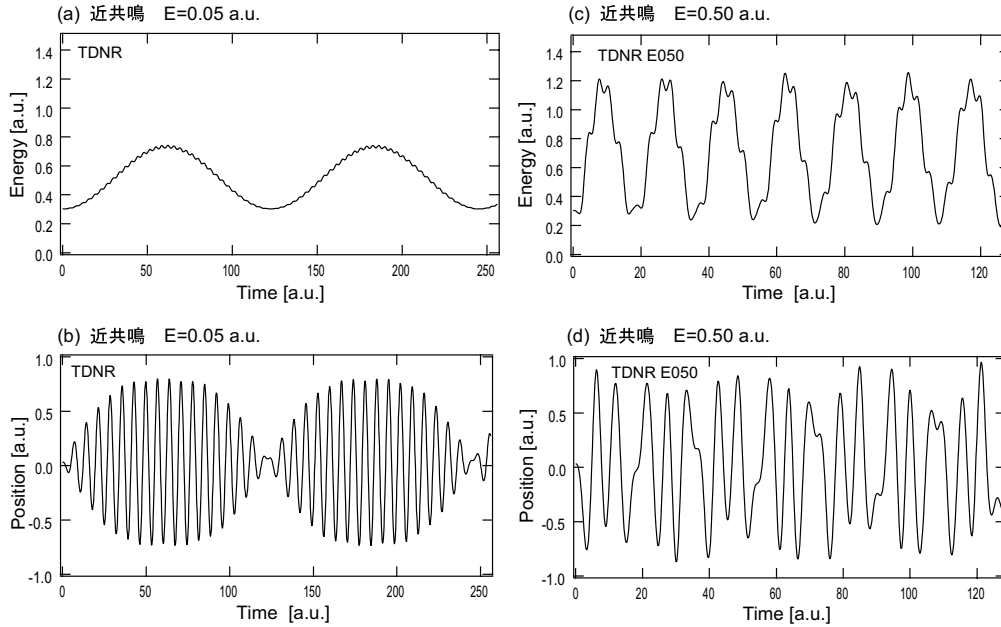


図 4.14 時間発展計算によるエネルギー期待値、位置期待値の時間変化。(近共鳴条件  $\omega = \omega_{ab} - 0.05$  a.u.) (a)  $E_0 = 0.05$  a.u. におけるエネルギー期待値の時間発展と (b) 位置期待値の時間発展。同じく、(c)  $E_0 = 0.50$  a.u. におけるエネルギー期待値の時間発展と (d) 位置期待値の時間発展。

## 4.2.3 射影を用いた解析

さらにもう一歩進めた解析として各時刻に得られる波動関数を非摂動固有状態および、周期的振動場に対する固有状態 (Floquet 状態) へそれぞれ射影することで、波動関数の時間発展に対して時系列を追った直接的解析を行うことを試みる。

## 射影の定義

射影は以下のように定義した。

$$C_n(t) = \sum_{i=0}^N \psi_{num}^*(x_i, t) \psi_n(x) \Delta x_i^d, \quad i = 0, \dots, N \quad (4.154)$$

ただしここで、 $N$  は空間の刻み数、 $\psi_{num}^*$  は時間依存シュレディンガー方程式の数値解法による波動関数、 $\psi_n$  は系の状態をよくあらわす固有状態、 $n$  は準位の番号である。以下では固有状態として非摂動固有状態と Floquet 状態をとりあげ、これらの状態へ各時刻の波動関数を射影することで、時間発展を解析する。

## 非摂動固有状態への射影

非摂動固有状態への射影を行った。一次元の無限に深い量子井戸に対する非摂動固有状態は上でも述べたが

$$\phi_n = A \sin \frac{2\pi n x}{L}, \quad n = 1, 2, \dots \quad (4.155)$$

である。ただし  $A$  は規格化因子をあらわす。これらの関数へ各時刻に得られた波動関数を射影することで、電子状態がどのような状態を経由して時間発展しているのか解析を行った。周波数  $\omega$  を共鳴 ( $\omega = \omega_{ab} = 0.92$ )、近共鳴 ( $\omega = 0.8$  a.u.)、非共鳴 ( $\omega = 0.5, 1.2$  a.u.) の各条件に設定して計算を行った。

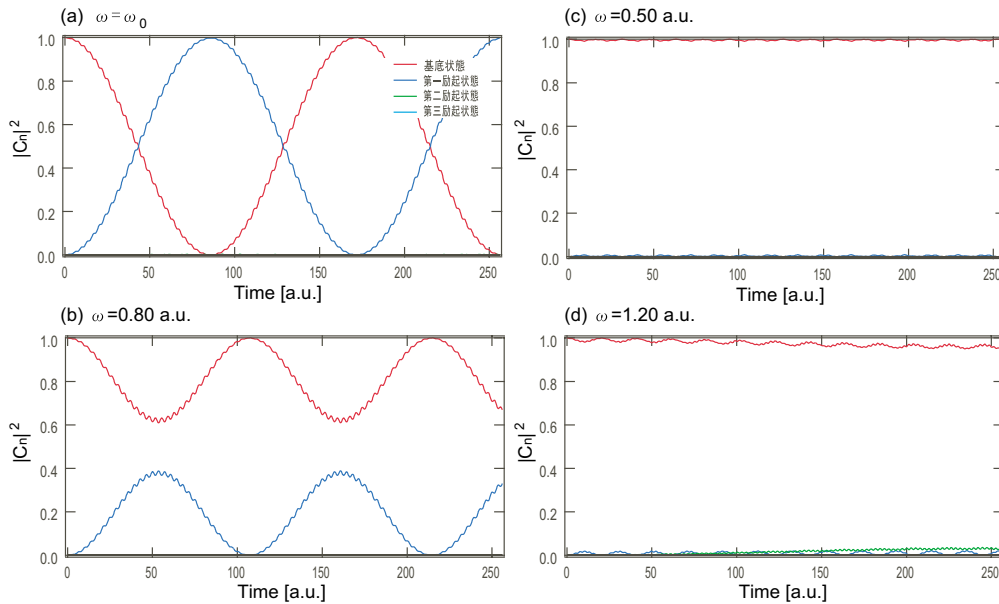


図 4.15 電場強度  $E_0 = 0.05$  a.u. における時間依存シュレディンガー方程式の数値解の非摂動状態への射影。

(a)  $\omega = \omega_{ab} = 0.92$ , (b)  $\omega = 0.80$  a.u., (c)  $\omega = 0.50$  a.u., (d)  $\omega = 1.20$  a.u.

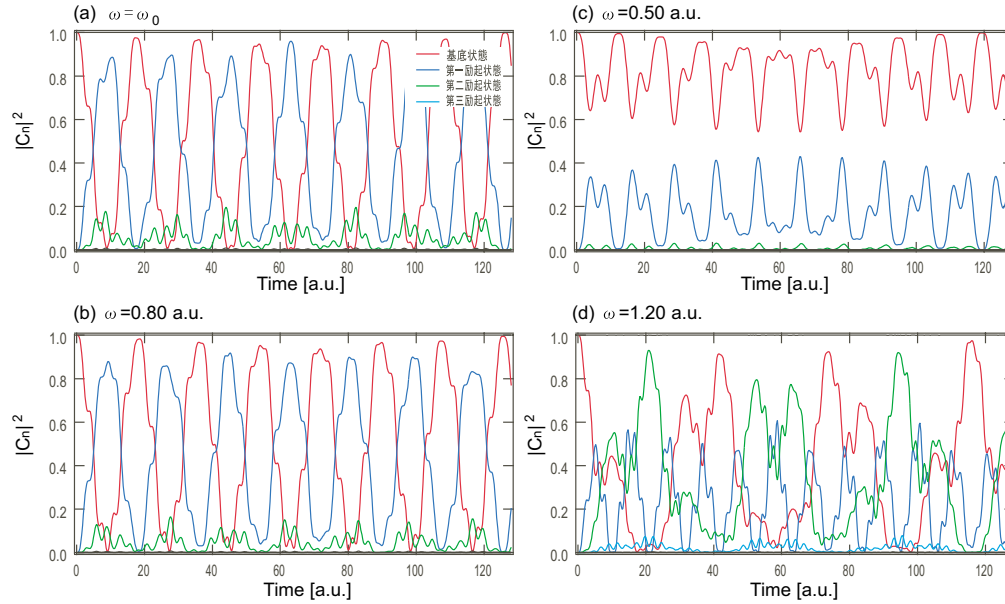


図 4.16 電場強度  $E_0 = 0.50$  a.u. における時間依存シュレディンガー方程式の数値解の非摂動状態への射影。  
(a)  $\omega = \omega_{ab} = 0.92$ , (b)  $\omega = 0.80$  a.u., (c)  $\omega = 0.50$  a.u., (d)  $\omega = 1.20$  a.u.

図 4.15 は電場強度  $E_0 = 0.05$  a.u. における時間依存シュレディンガー方程式の数値解を非摂動状態へ射影した結果である。まず共鳴的遷移に対する結果 [図 4.15(a)] を見てみると電子が共鳴励起され、基底状態と第一励起状態間を振動し、Rabi 振動をしていることがよくわかる。またその振動周期も二準位回転波近似における結果 ( $T_R = \pi/|R_{ab}| = 173.5$  a.u.), および上での周波数成分の解析結果とよく一致していることが明らかとなった。次に近共鳴条件 [図 4.15(b)] を見ると、不完全な共鳴が起こり、電子状態は基底状態と第一励起状態の混じった状態を共鳴状態におけるのよりも速い周波数で振動することがわかる。これらの条件における結果は基本的には二準位近似がよく成立していることを示唆している。次に、非共鳴条件 [図 4.15(c), (d)] の結果を見ると、二準位の他にさらに上の状態までがわずかではあるが混じっていることがわかる。このような状態の混成が生じることで物理量の時間発展には新たな振動成分が付加され、二準位近似の範囲を超えた理論的取り扱いの必要性が明らかである。この傾向は電場強度の強い場合においてはより顕著になる。電場強度を  $E_0 = 0.50$  a.u. として計算した結果が図 4.16 である。この電場強度条件の下では、共鳴点においてももはや二準位近似は妥当ではなく、より高いエネルギーを持つ準位への遷移が共鳴的遷移と同時に起こることで、各準位の係数は複雑な時間発展を示すことが理解される [図 4.16(a)]。射影の結果から、第一励起状態に加え、第二励起状態への遷移も同時に起きていることがわかる。また詳細に見ると第一励起状態に続いて第二励起状態への遷移が多段的に起こっていることも容易に理解される。さらに近共鳴点においてもこれらの 2 つの準位が電子遷移に関与することも射影による結果を見ることによって容易に示される [図 4.16(b)]。さらに、 $\omega = 0.50, 1.20$  a.u. においては多くの非共鳴的遷移が組み合わさることで  $E_0 = 0.05$  a.u. におけるのとは異なり、より多くの準位が関与した複雑な時間発展となっていることが明らかとなった。

以上の結果から、射影による解析の有用性と同時に時間発展を初期値問題として扱った結果として波動関数の時間発展には多準位の効果が自然に内包された結果を与えることも明らかとなった。

射影による解析の特徴 ただし、射影による解析は直接物理的意味の解釈を与えるものではないことに注意が必要である。本節では非摂動状態へ時間発展を射影することで、どのような固有状態を経由して時間発展が起こるのかを明らかにしたが、これらが具体的にどのような物理に対応するのかは、実験的事実および前述したフーリエ変換を用いた時間発展の波数成分解析などと照らし合わせることで解釈されなくてはならない。その意味で射影による方法は時

間発展を初期値問題として扱った結果の物理描像への橋渡しを容易にするための解析手法であると言える。次の第五章ではこの非摂動固有状態への射影を主に用いて光支援トンネリングの解析を行う。

#### Floquet 状態への射影

最後に、Floquet 状態への射影を行うことで波動関数の時間発展を別な視点から見ることを試みた。前節で述べたように、Floquet 状態は周期的外場に対する固有状態を与えるため、ここで考えている周期場の下での時間発展に対して、その射影係数は一定値となることが期待される。

**共鳴条件** 図 4.17 は、波動関数の基底状態と第一励起状態の二準位による展開を仮定して求めた二準位 Floquet 状態への射影の結果をあらわす。計算条件は  $E_0 = 0.05$  a.u.,  $\omega = \omega_{ab}$  a.u. とした。非摂動状態への射影のところで検討したようにこの条件においては若干の第二励起状態への遷移が時間発展の中に含まれていたことにより、Floquet 状態への射影係数は時間に対して揺らぐという結果が得られた。次に、同じ条件の波動関数に対して第二励起状態までを取り込んだ三準位 Floquet 状態との射影を取ったのが図 4.18 である。射影係数が一定値を示し、この時間発展が三準位で展開可能なものであることが明らかとなった。

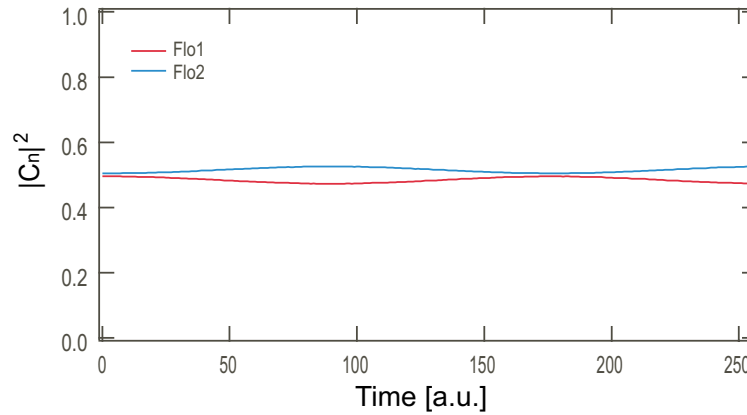


図 4.17 電場強度  $E_0 = 0.05$  a.u. における時間依存シュレディンガー方程式の数値解の二準位 Floquet 状態への射影。  $\omega = \omega_{ab} = 0.92$  a.u.

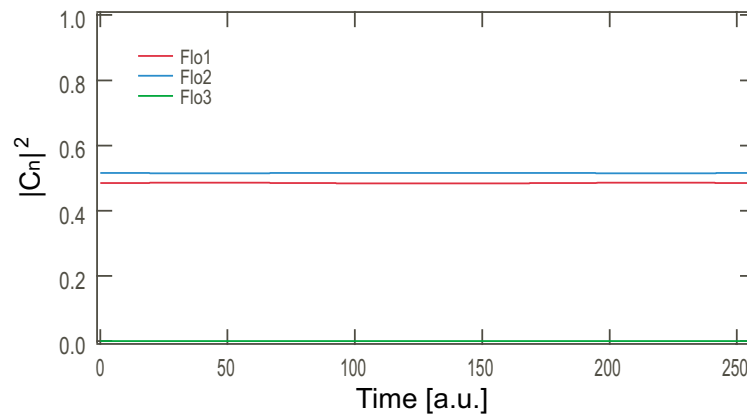


図 4.18 電場強度  $E_0 = 0.05$  a.u. における時間依存シュレディンガー方程式の数値解の三準位 Floquet 状態への射影。  $\omega = \omega_{ab} = 0.92$  a.u.

近共鳴条件 次に、近共鳴条件  $\omega = 0.80$  a.u. における時間発展を Floquet 状態へ射影した結果を示す (図 4.19)。電場強度が比較的弱い  $E_0 = 0.05$  a.u. の場合には図 4.19(a) を見ると明らかなように二準位 Floquet 状態で展開可能である。これに対して、 $E_0 = 0.50$  a.u. の条件においては共鳴におけるのと同様、二準位 Floquet 状態はもはや時間に対してよい固有状態ではなく、さらに、三準位 Floquet 状態を用いても完全には展開出来ていないことがわかる [図 4.19(b),(d)]。これらの描像は、非摂動固有状態への射影の結果ともよく対応したものである。これらの結果から、近共鳴条件における時間発展は、電場の比較的弱い領域では遷移に關する二つの固有状態を用いて記述することが可能であるのに対して、電場強度の強い領域においては、多準位の關与した時間発展が考慮されなくてはならないことが明らかとなった。Floquet 状態への射影を行うことで、どの準位までで展開可能な時間発展であるかを評価可能であることも示された。

Floquet 状態への射影の有用性 本節の議論の結果、実空間基底を用いた時間発展は多準位の効果を取り込んだ計算結果を与えることが明らかとなったが、Floquet 状態への射影を検討することで、さらにそれがどの準位までで展開可能な時間発展であるのかを精密に見積もることが可能となった。逆に準位の数を決めることが出来れば、そこから先は Floquet 状態および非摂動固有状態を基底とした係数の時間発展解析を行うことで電子の動力学を議論することも可能である。また、ここでは示さないが Floquet 状態への射影を、時間的に強度変調を持つパルス波に対する応答などへ適用することで、非摂動状態への射影からは見えづらい、電場の空間依存性と状態間遷移の関係を詳細に議論することもできる。その意味で、Floquet 状態への射影を用いた解析は時間発展解析の方法論として有用なものとなることが期待される。

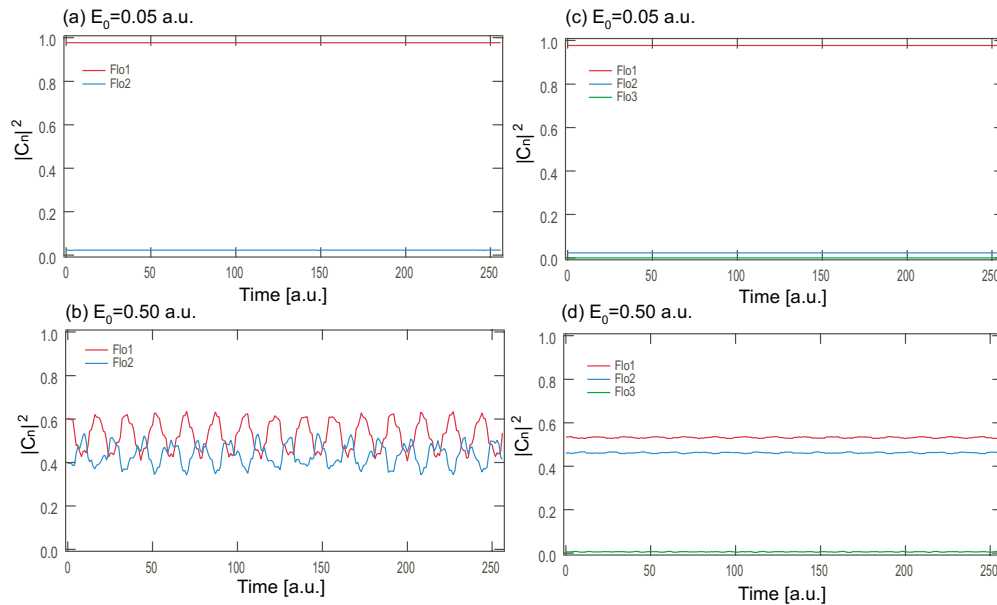


図 4.19 周波数  $\omega = 0.80$  a.u. における波動関数の時間発展を二準位 Floquet 状態への射影。(a) 電場強度  $E_0 = 0.05$  a.u.、(b) 電場強度  $E_0 = 0.50$  a.u.。同じく三準位 Floquet 状態への射影 (c) 電場強度  $E_0 = 0.05$  a.u.、(d) 電場強度  $E_0 = 0.50$  a.u.。

### 4.3 結論

量子的に閉じ込められた電子の動的ポテンシャル場に対する応答について考察した。電磁場の印加された量子井戸における電子波動関数の時間発展計算を電気双極子近似の下で解き、得られた結果を二準位近似との整合性およびそ

の限界点に焦点を当てて検討を行った。半古典近似における電気双極子近似ハミルトニアンについて述べ、続いて電磁場との相互作用による電子の共鳴的遷移を、主に二準位近似の下で非摂動固有状態、Floquet 状態それぞれの立場から検討した。その中で、電場強度の強い領域では回転波近似の成否で大きく物理量の振動の様子が異なることを見出し、回転波近似で落とした高周波成分が電子波の時間発展にとって無視できない影響を与えることを明確化した。

これらの知見を踏まえ、時間依存シュレディンガー方程式の数値解法を用いて、量子井戸に閉じこめられた電子の電磁場の下での時間発展を解析した。各時刻に得られた波動関数を系の特徴的な種々の状態へ射影する方法論を提案し、かつその適用を行った。特徴的な状態として量子閉じこめ場の静的固有状態および周期的な外場によって生じた時間方向への結晶状態 (Floquet 状態) を取り上げ、各状態への射影を行い、電磁場と相互作用した電子がどのような内部状態の変化を伴って時間発展していくのかそれがまた物理量や現象にどのように寄与していくのかを追尾した。その結果、初期値問題としてのシュレディンガー方程式の数値解法は、これまでの摂動論的取り扱いで議論されてきた一光子過程などの低次の相互作用のみならず、多段的光学過程などを含む多準位を介した高次の相互作用を取り込んだ結果を与えることを見出し、また同時にこれらの時間発展に対し、射影法を用いた解析が非常に有効であることを明らかにした。

## 第 5 章

# 光支援トンネリング

本章では光支援トンネリングについて述べる。光支援トンネリングは電子波の共鳴トンネル現象と電子 - 光子相互作用の組み合わせによって生じる現象であり、電子が有限の共鳴状態寿命の間に外部から照射された電磁場による変調を受けながら伝搬するという点で、波動関数の時間依存性が本質的に重要な系である。元となる発想は、電流に対する電磁波放射を用いた変調であったが、電子の変調の舞台として超格子、量子ドットなどが有力になるに伴い、あらわに量子状態を考慮した電子の状態制御が大きな課題となってきた。従来の研究ではトンネルハミルトニアンを用いた定性的な議論や有効一次元モデルを用いた近似計算が主であったが、本研究ではより現実に近い二次元の自由度を系に与え、伝導方向に垂直な方向に対する自由度も考慮に入れた定量的な計算を行うことで、電子の透過過程の解析と同時に電子状態制御に対する指針を与えることを目的とする。

### 5.1 従来の研究と検討課題

光支援トンネリングに対する実験的研究は Sollner らによるものに端を発する<sup>46)</sup>。彼らは半導体中を共鳴トンネリングによって伝搬する電子へ、時間依存ポテンシャル場の変調が与える影響について実験的に研究を行った。続いて、Chitta らは異なる周波数条件を持つ遠赤外線下の共鳴トンネリングに対して、電流密度の変調という観点から実験、理論の両面で検討を行った<sup>47)</sup>。さらにこれに続いて、Wingreen らをはじめ多くの研究者が様々なモデルをたててこの問題に対する研究を行ったが、そのほとんどは二重障壁内部での摂動として空間的に一様なポテンシャル変調を仮定していたために、電磁波の照射に対する電子の応答を議論するのには不十分であった<sup>48)–50)</sup>。これに対して、Inarrea らは空間分布を持つ時間依存ポテンシャル場における、コヒーレントトンネリングおよびシークエンシャルトンネリングを考察し、その結果シークエンシャルトンネリングが実験結果に近いという予測をたてた<sup>51)</sup>。しかしながら、彼らはドットと伝導路の遷移を主に見ており、ドット内部での状態間の遷移については考慮しなかった。また、Aguado らも電磁場の放射が系全体にベクトルポテンシャルとして作用する場合を考察したが、扱ったエネルギー範囲は共鳴周波数よりも小さな領域に限られたものであり、共鳴トンネル中電子の共鳴状態間の遷移については焦点を当てていない<sup>52)</sup>。

ドット内部での状態間の遷移を考えた研究として Johansson らによるものがある<sup>53)</sup>。彼らは二準位近似の下でグリーン関数を用いてこの問題を扱い、電流に及ぼすラビ分裂の効果を予測した。さらに、Bulgakov らはレーザービームが 2 次元電子ガスを校正する半導体ヘテロ構造に対して平行な場合を想定し空間分布を持つ時間依存ポテンシャル場を考えることで、ドット内部における共鳴状態間遷移が透過波に及ぼす影響を、多準位の効果を含めて電流-電圧特性を調べることで議論を行った<sup>54)</sup>。

光支援トンネリングにおいては電子は量子ドットを有限の時間（寿命）を持って透過する。この時間スケールの間に電子は電磁場と相互作用して共鳴状態間を遷移する。特に電磁波の周波数が共鳴条件を満たす場合には電子は共鳴的に状態間を振動し、Rabi 振動をしつつ透過することが期待されるため、このような系に対しては波動関数の時間発



展を忠実に追った解析が不可欠となる。時間依存シュレディンガー方程式を数値的に解くことで初期値問題としてこれらの問題を扱った研究として Jauho と Wendin のものがある<sup>55)</sup>。彼らは光支援トンネリングによって透過した電子波の波数分布を調べることで電磁場が電子に及ぼす影響を議論した。また Yakubo らは共鳴状態の電子と電磁場との相互作用を一次元の非対称二重障壁を通して検討し、電磁場との相互作用によって生じる電子励起が透過に大きな影響を及ぼすことを明らかにした<sup>56)</sup>。しかしながら、光支援トンネリングに対する初期値問題からの研究は未だ少なく、特に電子波の透過過程を共鳴状態寿命の観点から定量的に調べた研究は十分になされているとは言い難い状況である。

本章の検討課題 電子波の伝播をあらわに追跡することは光支援トンネリングなどの時間依存問題に対する理解を深めるうえで非常に重要となる。特に電子波の共鳴状態寿命の解明は科学的見地から興味深いのみならず、電子と外場の相互作用を用いた電子状態の制御にとっても非常に重要となる。この目的のために本章では時間依存シュレディンガー方程式を解くことで二次元の量子ドットに電磁場が印加された系における電子波束の伝播過程を逐次的に調べ、その動力学的検討を行う。特に、二次元の幾何学的形状を利用することに着目し、菱形の量子ドットを対象として研究を行う。

数値計算によって得られた結果を解析するため、各時間刻み毎に求まる波動関数を量子ドットの各共鳴状態に射影することで電子波の時間に依存外場における透過過程を検討する。また、第3章で定義した有効共鳴状態寿命を用いて、共鳴状態を介して透過する電子が外から印加された電磁場の周波数と強度に対して、どのような変調を受けるのかを明らかにする。共鳴状態への射影を用いた解析と組み合わせることで、有効共鳴状態寿命はドット内における電子遷移に関与する各共鳴状態寿命の重ね合わせとして理解できることを明らかにする。加えて、これと量子ドット-伝導路間における対称性に基づく遷移確率を考慮することで共鳴状態寿命を大きく変調できることを述べる。解析法としてここまでの章で評価を行ってきた、透過率、透過波の波数分布、射影法、共鳴状態寿命を用いる。

## 5.2 系の設定と計算条件

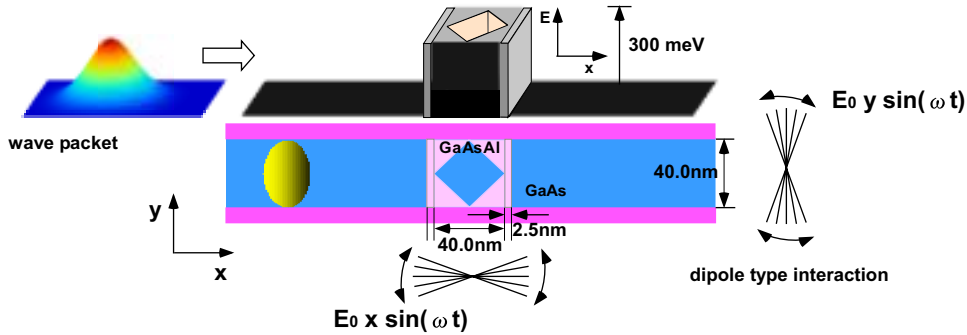


図 5.1 菱形量子ドットの模式図. 電磁場の照射は量子ドット内部のみであると仮定した。障壁の高さを 300 meV、障壁とドットの幅をはそれぞれ 2.5, 40.0 nm とし、初期電子波束の空間的広がりを  $d = 240.0$  nm とした。またこの量子ドット系は伝導路の存在により  $D_{2h}$  の対称性を持つ点群に属する。

従来の二重障壁の多くは二つの障壁は電子波の進行方向に対して垂直な単純な二重障壁構造であり、電子の障壁に対する入射において運動量の組み替えは起こらず、二次元の自由度を議論することが難しかった。これに対して、我々は図 5.1 に示したような菱形の量子ドットを考えることで二次元の自由度を生かした電子波の伝搬を検討することを可能にした。この系のハミルトニアン  $H(x, y; t)$  は以下のように与えられる。

$$H(x, y; t) = -\frac{\hbar^2}{2m^*} \nabla^2 + V_{\text{stat}}(x, y) + V_{\text{ph}}(x, y; t) \quad (5.1)$$



ここで  $V_{\text{stat}}$  は二次元の菱形量子ドットと伝導路を形成する静的ポテンシャル場をあらわし、 $V_{\text{ph}}(x, y; t)$  は電気双極子近似の下での電子-光子相互作用をあらわす。ただし、 $V_{\text{stat}}$  を有効質量近似を仮定して与えた。(本章ではより現実に近い物質を想定し、GaAs の有効質量および誘電率をもとに有効原子単位系を構成した<sup>57)</sup>。数値計算は全て原子単位を用いて行ったが、結果の直感的理解を容易にするため計算結果を SI 単位へ換算した値で議論を行う)。GaAs を仮定して電子の有効質量を  $0.067m_e$ 、誘電率を  $\epsilon = 12.53\epsilon_0$  としている。菱形量子ドットの障壁の高さを 300 meV、障壁とドットの幅をそれぞれ 2.5, 40.0 nm とし量子ドットの両端に無限に高いポテンシャル障壁で囲まれた伝導路を付け、さらにポテンシャル障壁の界面の形状を結果の一般性へ与える影響は小さいと考えて簡単な階段型とした。電磁波の照射による電子-光子相互作用には電気双極子近似が適用可能であるとした。想定した量子ドットサイズが 40 nm 程度であり、そのエネルギー準位間隔は数十 meV 程度となる。このことから、このような系へ変調を与える電磁場の周波数は数 THz であることがわかり、その波長は量子ドットサイズよりも十分長いものとなる。また Juaho らによる結果から電子状態の電磁場による変調は量子ドット内部において主に起こることが明らかとなっている<sup>55)</sup>。これらの仮定の下に電子光子相互作用項を

$$\begin{aligned} V_{\text{ph}} &= eE_0 x \sin(\omega t) & -a/2 < x < a/2 \\ &= 0 & x < -a/2, \quad a/2 < x \end{aligned} \quad (5.2)$$

と与えた。ここで  $E_0$  と  $\omega$  はそれぞれ電磁場の強度と周波数をあらわし、 $a$  は量子ドットの対角長さをあらわす ( $x$  方向の原点は菱形の中心)。本章では二次元の菱形量子ドットへ入射する電子の光支援トンネリングを研究する。この系に対する時間依存シュレディンガー方程式

$$i\hbar \frac{\partial}{\partial t} \psi(x, y; t) = H(x, y; t) \psi(x, y; t) \quad (5.3)$$

の形式解は、

$$\psi(x, y; t + \Delta t) = \tilde{T} \exp\left[\frac{1}{i\hbar} \int_t^{t+\Delta t} \hat{H}(x, y; t') dt'\right] \psi(x, y; t), \quad (5.4)$$

で与えられる。ただしここで  $\tilde{T}$  は時間順序演算子、 $\Delta t$  は時間刻み幅をあらわす。時間に依存する項を含むハミルトニアンに対する時間推進演算子を前章までと同様、二次精度で

$$\begin{aligned} \psi(x, y; t + \Delta t) &\simeq \exp\left[i \frac{\Delta t}{2} \frac{\hbar \Delta}{2m^*}\right] \exp\left[\frac{1}{i\hbar} \Delta t \left\{ V_{\text{ph}}\left(x, y; t + \frac{\Delta t}{2}\right) + V_{\text{stat}}(x, y) \right\}\right] \\ &\quad \times \exp\left[i \frac{\Delta t}{2} \frac{\hbar \Delta}{2m^*}\right] \psi(x, y; t) \end{aligned} \quad (5.5)$$

と分解し、時間発展計算を行った。ただし、ここでは量子ドットの束縛エネルギーが電子間相互作用よりも強く支配的であると考え、荷電のない量子ドットに対する一電子波束の時間発展を検討した。入射電子波束の初期状態を以下のように設定した。

$$\psi(x, y; t) = \frac{1}{\pi^{1/4} \sqrt{d}} \exp\left[-\frac{(x - x_0)^2}{2d^2} + ik_x^0(x - x_0)\right] \times \cos \frac{\pi}{a} y \quad (5.6)$$

ここで、 $k_x^0$  は初期中心波数、 $x_0$  は波束の初期位置をあらわし、また波束の空間拡がり幅  $d$  を量子ドットの共鳴状態をよく見るために 240 nm と比較的広く設定した。最後の  $\cos \frac{\pi}{a} y$  の項は伝導路の進行方向に対して垂直方向 ( $y$  方向) の閉じ込めに対する基底状態をあらわす。

### 5.3 二次元菱形量子ドットにおける電子波束の共鳴トンネリング

本研究で仮定した等方的菱形量子ドットはもしも孤立して存在していれば  $D_{4h}$  の点群に属し、各辺方向に対する節の数を量子数として記述することが可能である。しかし、我々の系においては量子ドットの両端には伝導路が付加さ

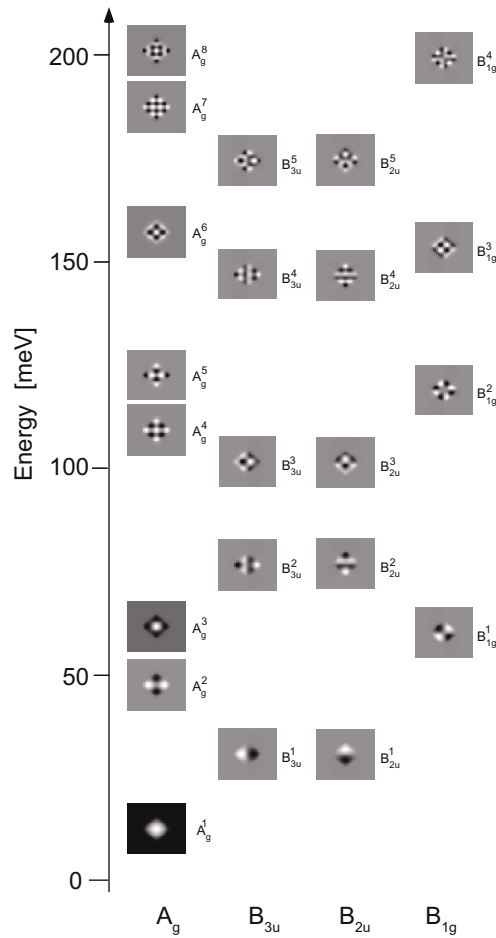


図 5.2 菱形量子ドットにおける共鳴状態の模式図。既約表現によって共鳴状態を分類し、さらにそれぞれに対してエネルギーの指標を付けた。

れ、その点群は  $D_{2h}$  に落ち、もはや各辺に対する節は良い量子数ではない。そこで我々は共鳴状態を既約表現  $A_g$ ,  $B_{3u}$ ,  $B_{2u}$ ,  $B_{1g}$  を用いて分類し、さらにそれぞれの既約表現ごとにエネルギーの順番付けをすることで共鳴状態を例えば  $B_{3u}^4$  のように指標付けした (図 5.2)。一方、伝導路においては、 $y$  方向の量子数  $n_y$  は良い量子数であり、また  $x$  方向については半無限の長さを持っていると考えられ自由電子状態が適用出来る。故に菱形量子ドットは  $D_{2h}$  に属する既約表現によって帰属されるが、伝導路における状態は  $x$  方向に対する波数と伝導路による閉じ込め方向 ( $y$  方向) に対するサブバンドの指標を用いて、 $(k_x, i)$  と表現される。これらの量子状態と量子数を用いることでより詳細な伝導路-量子ドット間の透過過程の議論を行う。

#### 透過率

電子波束を運動エネルギーを変えて菱形量子ドットに入射させ、それぞれの条件について透過率を求めた (図 5.3)。電子波束には式 (5.6) であらわしたように、 $y$  方向に対しては節のない偶の対称性を与えた ( $n_y = 0$ )。また、透過率は第 3 章で定義したのと同様、電子波束が量子ドットへ入射し透過波と反射波に分かれたあとの右側の伝導路における電子の存在確率であるとした。得られた透過率曲線の特徴的ピークのエネルギーは、上で考察した量子ドットの共鳴状態のエネルギーと、有限のポテンシャル高さに起因したエネルギーシフトによる若干の下方向へのずれを除いてよい一致を示した (図 5.2)。また透過率の大きさは入射電子波束のエネルギーに対して単調に増加せず、透

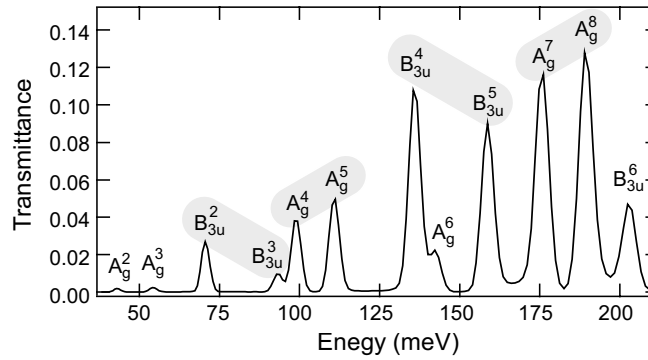


図 5.3 電子波束の菱形量子ドットに対する透過率曲線。透過率は電子波束が透過波と反射波に分かれたあとの、右側の伝導路における電子の存在確率を求めることで得ている。量子ドットを構成するポテンシャル障壁の高さが有限であることにより共鳴ピークは孤立状態の量子ドットにおけるものよりも下ヘシフトしている。それぞれの共鳴ピークに対応する共鳴状態の属する既約表現を図に載せた。

過する共鳴ピークに応じて高低を生じた。これは一次元の二重障壁系における共鳴ピークの単調な増加とは対照的である。透過率は伝導路における波束と量子ドット内の共鳴状態との間のポテンシャル障壁を介した遷移確率によって決定され、このような描像が得られるのは二次元の自由度を与えたために、ポテンシャル障壁における運動量の組み合わせが起こるからである。得られた透過ピークを調べた結果、電子波束は  $A_g$  と  $B_{3u}$  の対称性を持つ共鳴状態のみを透過し、 $B_{2u}$  と  $B_{1g}$  の共鳴状態を介した透過は起きないことが明らかになった。これは我々が用いた電子波束と量子ドットを構成するポテンシャル場の両方が  $y$  方向に対して偶の対称性を有していたことによるものである。そのため、透過可能な共鳴状態は  $y$  方向に対して偶の対称性を持たなくてはならず、この条件を満たさない  $B_{2u}$  と  $B_{1g}$  の状態を介した透過が起こらなかったと理解される。逆に電子波束に  $y$  方向に対して奇の状態を初期状態として与えた場合には  $B_{2u}$  と  $B_{1g}$  の状態を介した透過のみが観測されることが期待される。しかしながら、量子ドットを構成するポテンシャル障壁が中心部分で最も薄く、両脇に行くに従って厚くなるという幾何的形狀を持つことによって、奇の状態に対する透過率は極めて小さなものとなる。

### 5.3.1 確率密度の時間発展と共鳴状態寿命

本節では電子波束の菱形量子ドットに対する透過過程の解析を行う。比較的高い透過率を持つ  $B_{3u}^4$  の共鳴状態に着目し、共鳴トンネリングの解析を行った。量子ドットにおける電子の電荷密度分布を 4.5 ps まで示す [図 5.4(a)]。これらのスナップショットから電子波束は量子ドットを共鳴状態を介して 5 ps 以内に透過していることがわかる。より定量的な議論のため、量子ドット内における確率密度の時間変化を示した [図 5.4(b)]。電子の存在確率は 1.25 ps に最大値をとった後、なだらかに減衰していくことがわかる。さらに、第3章で定義した、「共鳴構造内における電子の存在確率が最大値の  $1/e$  になる時間間隔を電子の有効共鳴状態寿命とする」という定義を用いることで共鳴トンネリングにおける共鳴状態寿命を定量化した。その結果  $B_{3u}^4$  の共鳴状態に対する状態寿命は  $\tau_{\text{eff}}^0 = 1.80$  ps であることが明らかとなった。

#### 各共鳴状態の寿命

透過率曲線から求めた他の共鳴ピークに対しても、それぞれの有効共鳴状態寿命を調べたのが表 5.1 である。表をみるとわかるように基本的に透過率の高い共鳴状態ほどその寿命は短くなることが明らかである。これは透過しやすい波ほど速く抜けていくという直感によく合う結果である。また透過率、共鳴状態寿命共にエネルギーには単調に依存しないことにも注意が必要である。これは量子ドットの形状によって決まる共鳴状態と伝導路を通ってくる電子波

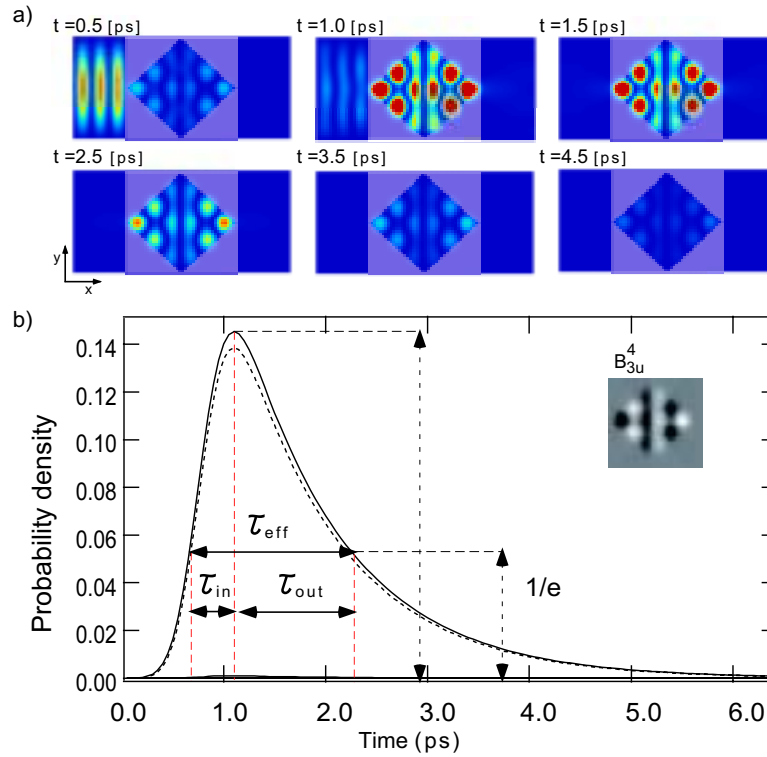


図 5.4 (a) 量子ドット内電荷密度のスナップショット。(b) 量子ドット内の電荷密度の時間変化。電子波束を伝導路の左側から量子ドットへ注入 (図 5.1)。電子波束の初期エネルギーを量子ドットの  $B_{3u}^4$  の共鳴状態に一致するように設定した。  $B_{3u}^4$  状態を図に挿入した。

束の状態とのポテンシャル障壁を介した重なりによって決定され、電子波束が伝導路の中のどのサブバンドを通して来たのかによっても大きく変化する。

表 5.1 各共鳴状態の寿命と透過率。透過率の高い共鳴状態ほどその寿命は短くなる。

No.	Energy [meV]	Lifetime [ps]	Transmission [%]
1	68.69	7.26	2.70
2	91.03	10.14	0.95
3	97.11	4.73	3.85
4	108.84	3.89	4.96
5	135.42	1.80	10.82
6	141.66	6.65	2.25
7	158.18	2.08	9.01
8	174.96	1.41	11.64
9	189.27	1.35	12.79
10	204.82	3.66	4.69

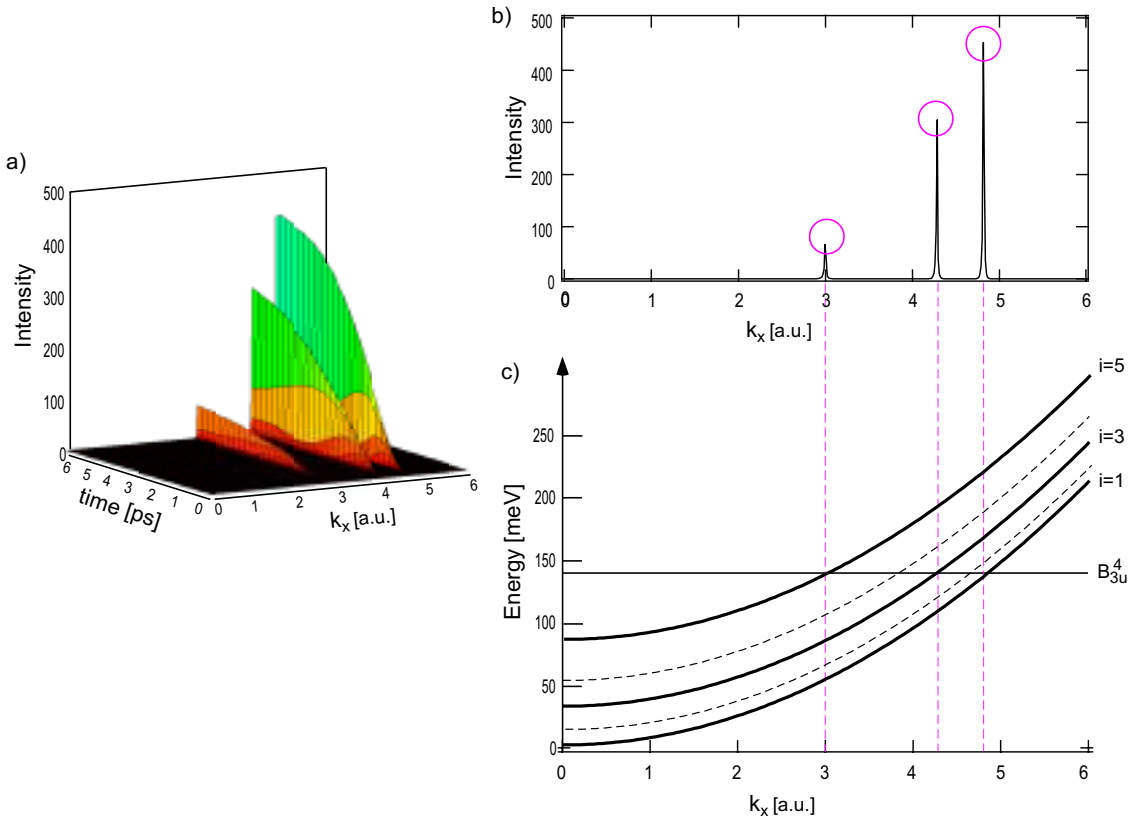


図 5.5 電子波束の透過波の波数分布スペクトル (a) と  $t=5$  ps における断面 (b). 各運動量成分を明らかにするため、伝導路のエネルギーサブバンドとの関係を図示した (c).

### 5.3.2 透過波の波数分布解析

前節で述べたとおり、伝導路および量子ドット領域における固有状態はそれぞれ量子数  $(k_x, i)$  と  $D_{2h}$  の点群が持つ既約表現で表された。ここでは電子波束のポテンシャル障壁を介したドット-伝導路間のトンネリングを、両者の状態間の遷移とみて検討する。この際、散乱は弾性的であると仮定した。図 5.5(a) は、電子波束を  $B_{3u}^4$  の共鳴状態を介してトンネルの起こる群速度  $k_x = 4.83$  a.u. で打ち込んだ結果得られる、透過波の  $k_x$  方向に対する波数分布の時間変化である。さらにこの図から波数分布の変動がなくなった  $t = 5$  ps における  $k_x$  の分布を切り出したのが図 5.5(b) である。3つの特徴的なピークが存在する。このうち、もっとも大きなピークは  $k_x = 4.83$  a.u. にある。これは初期波数ベクトルと一致しており、運動量を保存した伝導路-ドット間、ドット-伝導路間の遷移を起こした遷移成分に相当することは明らかである。伝導路のエネルギーサブバンドを表した図 5.5(c) からこの成分がドットの  $B_{3u}^4$  から伝導路のサブバンドの  $i = 1$  への遷移によるものであることを確かめることが出来る。次に残りの2つのピークについて考えると、これらは電子波束の入射時とは異なるサブバンドへの遷移によって生じたことが理解される。伝導路がサブバンドを生じていることから電子波はドットから伝導路への遷移においてエネルギー保存の条件を満たせば他のサブバンドへの遷移も可能である。ただし、 $B_{3u}^4$  状態が  $y$  方向に対して偶の状態を持つことから、遷移可能なサブバンドは  $y$  方向に対して偶の対称性を持つものに限られる。そのため電子は伝導路の  $y$  方向に対する量子数が奇数の状態にのみ遷移することが許され ( $i = 1, 3, \dots$ )、偶のサブバンドへの遷移は起こらない ( $i = 2, 4, \dots$ )。電子のエネルギー保存を考え、サブバンドの持つエネルギーと  $k_x$  方向へあらわれたピークとの関係を調べた結果、 $k_x = 4.27$  a.u. のピークに対しては  $i = 3$  のサブバンドが、同じく  $k_x = 3.00$  a.u. のピークに対しては  $i = 5$  のサブバンドが対

応することが明らかとなった。これらは図 5.5(b) と (c) をみることでより明瞭に理解される。

## 5.4 二次元菱形量子ドットにおける電子波束の光支援トンネリング

### 5.4.1 射影を用いた解析

次に我々は二次元菱形量子ドットに対する電子波束の光支援トンネリングを検討した。菱形量子ドットの幾何的形狀から、電子の運動に影響を与える光電場として二つの偏光方向が考えられる。ひとつは電子の進行方向へ平行な方向への偏光であり (L-mode)、もう一つは垂直な方向に対する偏光である (T-mode)。電子の共鳴トンネリングにおける共鳴状態を固定すると、これら二つの偏光方向に対する電子の光学遷移は、対称性に基づく選択律により厳密に決定される。

初期波束に、さきほど注目したのと同じ  $B_{3u}^4$  のエネルギーに相当する  $k_x = 4.83$  a.u. の運動量を与え、前章で議論した射影法を適用することでより詳細な透過過程の議論を行った。我々の量子ドットは  $D_{2h}$  の対称性を持ち、 $B_{3u}$  の他に  $B_{2u}, B_{1g}, A_g$  の表現を持つ。このうち  $B_{3u}$  から  $A_g$  状態への遷移は波束の進行方向に対して平行方向へ偏光したポテンシャル場によって、また  $B_{1g}$  状態への遷移は波束の進行方向に対して垂直方向へ偏光したポテンシャル場によって起きることが期待される。これらの遷移は一光子過程であるが、二光子過程を利用することで同じ対称性を持つ状態間  $B_{3u}$  状態から  $B_{3u}$  状態への遷移も可能になる。また、 $B_{2u}$  状態への遷移もさらに高次の光学過程を用いれば可能ではあるが、本研究では扱わない。

ここで考えた光学過程の中から、一光子過程の起こることが期待される電場の向きと周波数を持つ光電場を量子ドット内部にそれぞれ与え、そこへ電子波束を打ち込んだ結果を電子波束の密度分布の時間変化としてスナップショットで表したのが図 5.6 である。どちらの場合にも電子波はドット内部で光電場による変調を受けて共鳴状態間を遷移し、複数の共鳴状態を介して透過していくことがわかる。

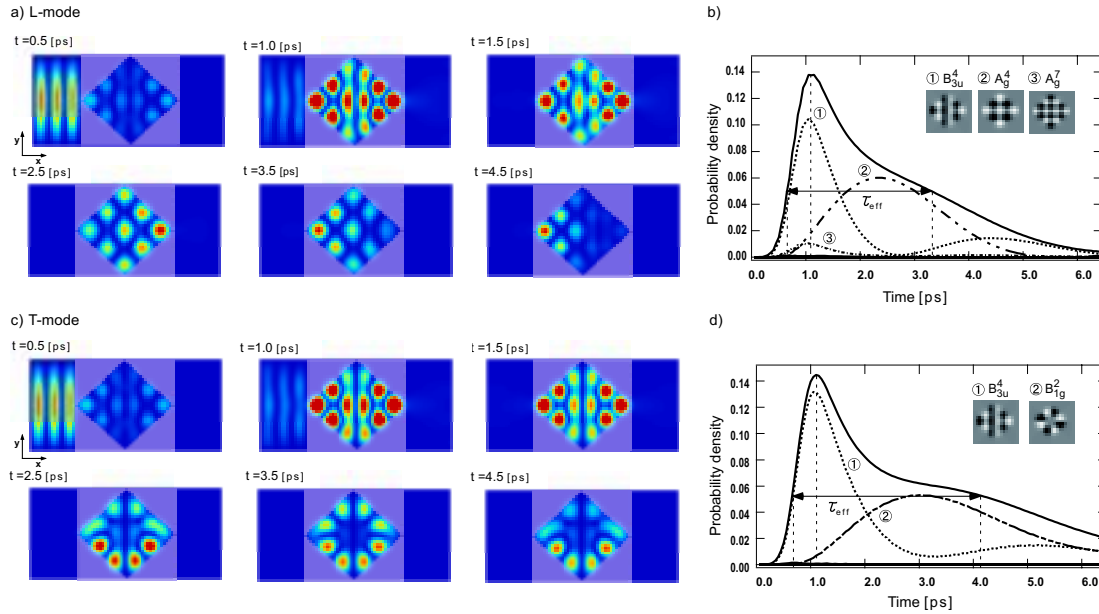


図 5.6 (a) 量子ドット内部における電荷密度分布のスナップショット。 $x$  方向へ偏光した電磁波の入射に対する結果 (L-mode,  $E_0 = 0.59 \times 10^5$  V/m,  $\omega = 36.00$  a.u.). (b) 射影による解析と対応する共鳴状態。(c)  $y$  方向への偏光した電磁波の入射に対する結果 (T-mode,  $E_0 = 0.59 \times 10^5$  V/m,  $\omega = 26.24$  meV)。 $x$  方向と同様電荷密度分布のスナップショットと (d) 射影による解析結果。

これらのスナップショットと電荷密度の時間変化とをよく見比べると、光学遷移によって電子が共鳴状態間遷移したことに伴い、電荷密度の時間変化に”ふくらみ”が生じていることがわかる。これらの描像をより明確化するために、第3章で述べた射影による解析をこの系へ適用することで、光電場下における電子波の透過がどのような共鳴状態を介して起きるのかを明らかにした。時間発展計算によって求めた各時刻毎の波動関数  $\psi(x, y; t)$  を量子ドットの共鳴状態  $\phi_n^0(x, y)$  へと射影することで、解析を行った。このとき展開係数  $c_n(t)$  を、

$$c_n(t) = \int_{QD} \psi^*(x, y; t) \phi_n^0(x, y) dx dy \quad n = 1, 2, \dots, N \quad (5.7)$$

と定義した。ただし、共鳴状態の波動関数  $\phi_n^0(x, y)$  は時間に依存しないシュレディンガー方程式を実空間格子点を基底として解くことで求めている。 $N = 20$  までの展開係数を各時刻で求めた [図 5.6(b) および 5.6(d) の破線]。

図 5.6(b) から以下の透過描像が明らかとなった。まず共鳴状態  $B_{3u}^4$  が電子の入射により形成され、それは時刻  $t = 1.24$  ps において最大値をとったあと減衰していく、それと並行して  $A_g^4$  への遷移が 0.5 ps 付近から始まり、2.5 ps においては  $B_{3u}^4$  にかわって最大値を取り、トンネル透過によってゆっくり減衰していく。これらのことから電子波は共鳴状態  $B_{3u}^4$  と  $A_g^4$  の間を光電場との共鳴的相互作用によって遷移しながら透過していくことが明らかとなった。また、共鳴的遷移であることに対応して、Rabi 振動が起こることも同時に明確化された。Rabi 振動の周波数は第4章で考察したとおり、完全共鳴の条件下では  $\Omega = E_0 \langle B_{3u}^4 | x | A_g^4 \rangle / \hbar$  によって与えられるが、得られた結果  $\Omega = 0.023$  a.u. は予想された周波数 0.024 a.u. とよい一致を示した。若干の値のずれは、他の準位への非共鳴的遷移によるものであると考えられる。以上の結果から電子遷移により  $A_g^4$  状態をとった電子はこの共鳴状態の低い透過率を反映して長い寿命を持ち (図 5.3) それによって存在確率の”ふくらみ”があらわれることが理解された。また、射影の結果をよく見ると、 $B_{3u}^4 \leftrightarrow A_g^4$  の遷移に加えて  $A_g^7$  への遷移も同時に生じていることがわかる。この遷移は  $B_{3u}^4$  と  $A_g^4$  との間のエネルギー差 36.00 meV に、 $B_{3u}^4$  と  $A_g^7$  のエネルギー差 39.54 meV が近いことによって起きたと考えられる。遷移は周波数が共鳴点から遠いことに対応して非共鳴的に起こっていることも、射影の結果を見ることで理解出来る。ただし、 $A_g^7$  の共鳴状態寿命は  $B_{3u}^4$  よりも短いため、この遷移の効果が全体の共鳴状態寿命へ及ぼす効果については注意が必要である。

同様に、横方向に偏光した光電場 (T-mode) についても射影による結果を見ることでその透過過程が共鳴状態  $B_{3u}^4$  と  $B_{1g}^2$  との間の振動的遷移によって支配されることが明確になった [図 5.6(c),(d)]。この光学遷移は  $t \sim 1$  ps 付近でまず光放出が始まり、3 ps 付近では電子は共鳴状態  $B_{1g}^2$  へ遷移するが、さらに共鳴的遷移に伴う Rabi 振動によって元の状態との間を繰り返し遷移しながら透過していく。このとき  $B_{1g}^2$  は電子の伝導方向に対して垂直方向 ( $y$  方向) に奇の状態を持つため、伝導路-ドット間の遷移確率は非常に小さくなり、非常に長い共鳴状態寿命を持つ。この描像は  $B_{1g}^2$  状態を持つ共鳴状態一般に成り立つものであり、これを踏まえると横方向に偏光した光電場による共鳴トンネリングの変調を用いることで、有効共鳴状態寿命は大きく延長されることが理解される。

#### 5.4.2 有効寿命の変調

定量的考察のため、入射光電場の強度、周波数の変化によって有効共鳴状態寿命がどのように変調されるのか調べた。図 5.7(a) は L-mode の入射光電場の強度  $E_0$  を 0 から  $1.77 \times 10^5$  V/m まで、周波数  $\omega$  を 22 から 48 meV まで独立に変化させ、それぞれの場合に得られた有効共鳴状態寿命  $\tau_{\text{eff}}$  をプロットしたものである。ただし、入射電子波束の条件を今までと同様、 $B_{3u}^4$  を介して共鳴トンネリングするようにして固定している。また図の縦軸として光電場のない場合の寿命  $\tau_{\text{eff}}^0 = 1.80$  ps との差を取ることで、寿命の増減を見やすくしている。

図 5.7(a) からいくつかの特徴的な変調を見出すことが出来る。まず有効共鳴状態寿命  $\tau_{\text{eff}}$  に対する光電場の周波数依存性を議論するために寿命スペクトル図 5.7(a) から  $E_0 = 0.59, 1.18, 1.77 \times 10^5$  V/m の3つの断面を切り出した (図 5.7(b))。比較的強度の弱い光電場 ( $E_0 = 0.59 \times 10^5$  V/m) に対しては  $\hbar\omega = 26.24, 36$  meV に特徴的な寿命変調のピークがあらわれた。これら二つのピークはそれぞれ  $\hbar\omega = 26.24$  meV においては 0.51 ps、 $\hbar\omega = 36.00$  meV



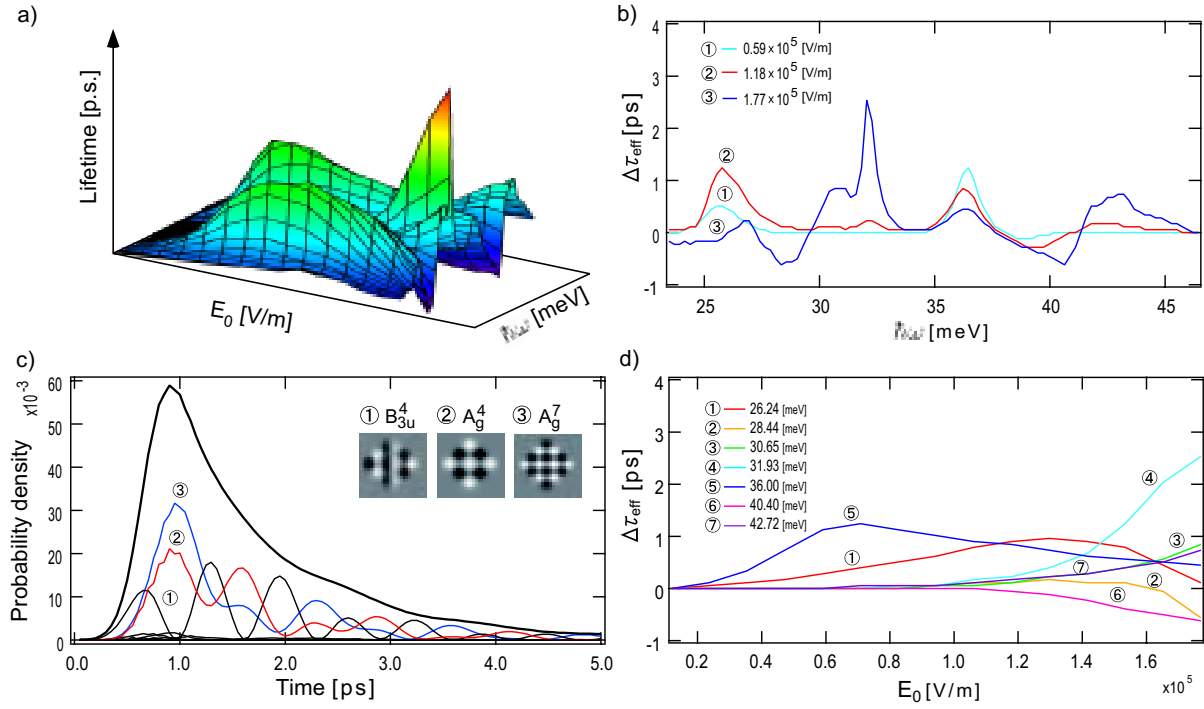


図 5.7 (a) 強度  $E_0$  と周波数  $\omega$  を変えた入射光電場に対する有効共鳴状態寿命スペクトル  $\tau_{\text{eff}}$  と (b) その  $E_0 = 0.59, 1.18, 1.77 \times 10^5$  V/m における断面。(c)  $E_0 = 0.29 \times 10^6$  V/m,  $\omega = 36$  meV における量子ドット内電荷密度 および射影係数の時間変化。また、図 (a) の 7 つの共鳴周波数に対するピークの断面を (d) に与えた。図 (b), (d) の縦軸は光電場のない場合の寿命  $\tau_{\text{eff}}^0$  との差を取った値  $\Delta\tau_{\text{eff}} = \tau_{\text{eff}} - \tau_{\text{eff}}^0$  であることに注意。

においては 1.24 ps の寿命の増加を示したが、これは前節で示したとおり電子の寿命の長い共鳴状態への遷移によってもたらされたと考えられる。すでに射影法による解析で示したように、例えば  $\hbar\omega = 36$  meV においては、 $B_{3u}^4$  と  $A_g^4$  との間の共鳴的遷移と  $B_{3u}^4$ ,  $A_g^7$  との間の非共鳴的遷移が起こり、これらの遷移によって生じた各共鳴状態寿命の重畳の結果、寿命の延長が起こる。同様に  $\omega = 26.24$  meV においても電子は寿命の長い状態との共鳴遷移によって寿命を延長したと考えられる。

これに対して光電場が  $E_0 = 0.59 \sim 1.18 \times 10^5$  V/m の領域においてはこれら二つのピークの寿命は異なる動きを示し、 $\hbar\omega = 26.24$  meV のピークは増大したが、36.00 meV のピークは減少した。さらに  $E_0$  が大きくなって  $1.77 \times 10^5$  V/m を超えると両方のピーク共に減少し、光電場のない状態とほぼ同等の寿命に近づいた。このような電場強度の大きな領域における寿命の振る舞いを理解するために電場強度  $E_0 = 2.95 \times 10^5$  V/m、周波数  $\omega = 36.00$  meV とした場合の電子の共鳴トンネリングに対して前節と同様、ドット内電荷密度およびその共鳴状態への射影係数の時間変化を調べた (図 5.7(c))。  $B_{3u}^4 \leftrightarrow A_g^7$  間の遷移が共鳴的遷移に近づいた一方、もともと共鳴的遷移をしていた  $B_{3u}^4 \leftrightarrow A_g^4$  の遷移は  $B_{3u}^4 \leftrightarrow A_g^7$  の遷移に係数をとられて非共鳴的なものに近づきその周期は速くなった。大きな  $E_0$  においては非共鳴的な状態間遷移が共鳴的なものに近づくことは第 4 章において述べたが、ここでも同様の現象が起きたと判断される。以上のことから、大きな電場強度を持った光電場下においては  $B_{3u}^4$ ,  $A_g^4$ ,  $A_g^7$  の 3 つの状態間を電子が振動的に行き来し、各共鳴状態寿命が複雑に重畳されたために  $A_g^7$  の短い状態寿命の割合が増え、有効共鳴状態寿命の減少が起きたということが理解された。このような現象は一般的に起こると考えられ、特に共鳴状態が密に詰まっている場合にはより顕著になることが予想される。

他のピークについても共鳴状態寿命の  $E_0$  依存性を詳細に調べるために図 5.7(b) で明らかになった 7 つのピークそれぞれの周波数における断面を図 5.7(a) から切り出し、図 5.7(d) に示した。結果として得られた  $\tau_{\text{eff}}$  の  $\tau_{\text{eff}}^0$  からの



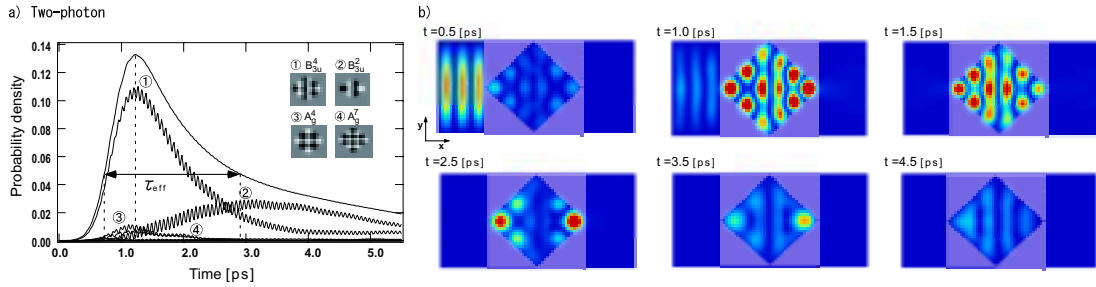


図 5.8 (a) 二光子過程に対する電荷密度および射影係数の時間依存特性。  $E_0 = 1.77 \times 10^5$  V/m、  $\omega = 31.93$  meV の L-mode の光電場を与えた。さらにいくつかの時刻における確率密度分布も示した (b)。

差  $\Delta\tau_{eff}$  は、単調ではなく複雑な  $E_0$  依存性を示した。全ての一光子過程において、 $\tau_{eff}$  は小さな電場においては単調に増大または減少し、電場強度がさらに大きくなると極値を持ち、減少あるいは増加に転じた。このような  $E_0$  依存性は基本的には共鳴的電子間遷移に伴う Rabi 振動によるものと考えられる。ゆえに  $\Delta\tau_{eff}$  の  $E_0$  依存性は Rabi 振動の周期  $T_R$  と各状態寿命の重畳の結果として、以下のように分類できる。

- $\tau_{eff} < T_R$  のとき、量子ドットをトンネリング中の電子は Rabi 振動の半周期に満たず遷移の途中で透過してしまう。そのためこの電場領域においては電子の寿命は遷移した先の共鳴状態の寿命の効果を受け継ぎ  $\tau_{eff}$  は  $|E_0|$  に対して単調に増加（減少）する。
- 一方、 $\tau_{eff} > T_R$  の場合には、 $\tau_{eff}$  は電子が多くの Rabi 振動を繰り返しながらトンネルすることにより、各共鳴状態の寿命が平均化され一定値に近づくと期待される。
- しかし、実際には強電場下  $\tau_{eff} \gg T_R$  においては、電子の光学過程は単純な二準位近似では扱えなくなり、共鳴的遷移に加えて、他の共鳴状態への遷移や多光子過程などが同時に起こる。これによって  $\tau_{eff}$  は複雑な  $E_0$  依存性を示す。

さらに、 $E_0$  が  $1.77 \times 10^5$  V/m を超えると  $\hbar\omega = 31.93, 28.44$  meV に新たな正負の寿命ピークがあらわれる [図 5.7(b)]。  $\hbar\omega = 31.93$  meV における電子の透過過程を明らかにするために、電荷密度および射影係数の時間依存特性を図 5.8 にあらわした。射影による結果から、この周波数の光電場下において支配的な光学過程は共鳴状態  $B_{3u}^4$  と  $B_{3u}^2$  との間の遷移であることが明らかとなった。この二つの共鳴状態は同じ既約表現に属する対称性を持ち、またそのエネルギー差が 63.86 meV と、与えた周波数の二倍であることから二光子過程によるものであることが理解される。加えてこの条件下においては、主な光学過程である二光子過程の他にも別な二つの状態への遷移も同時に生じていることを図 5.8 から見出すことが出来る。これらは  $B_{3u}^4$  と  $A_g^4$  および  $B_{3u}^4$  と  $A_g^{11}$  の間の遷移で、非共鳴的ではあるがこれらの状態による  $\tau_{eff}$  への寄与も無視できない。有効共鳴状態寿命は電場強度の強い領域では基本的に個々の状態寿命の平均として与えられるということを述べたが、このように多くの状態が時間的にその占有割合を変化しつつトンネルする場合においては、有効共鳴状態寿命は  $E_0$  に対して複雑な変化を示すことが予想される。また二光子過程においては各射影係数に高い周波数が乗っているがこれは回転波近似を超えた数値計算を行ったことにより生じる振動である。基本的にはどの射影係数の時間変化にもあらわれるものであるが、ここでは周波数と電場強度の条件からそれが顕著となったと理解するべきである。

#### 横方向偏光した光電場 (T-mode) における寿命変調

同様に、T-mode 光電場に対する寿命変調について調べた (図 5.9)。L-mode における結果と同様、特徴的なピークがあらわれたが、その数は  $\omega = 22.24, 46.48$  meV に対する二つに限られた。これは T-mode による変調によって遷移可能な  $B_{1g}$  状態の数が比較的疎であるためと考えられる。そのため、与えた光電場の周波数条件のなかで共鳴条件

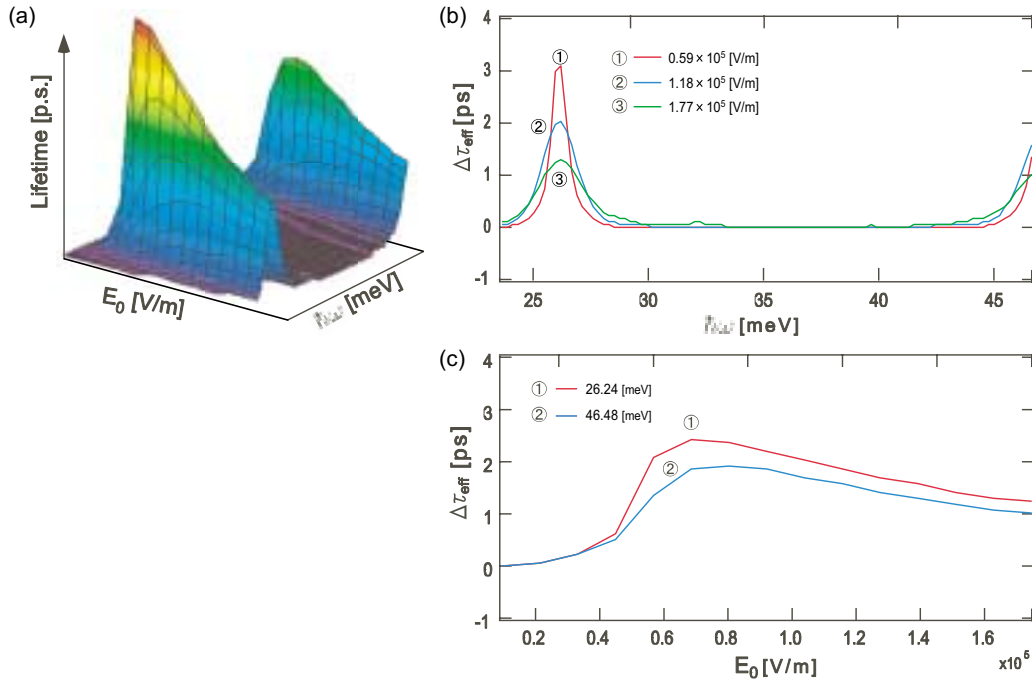


図 5.9 (a) T-mode 光電場による変調に対する寿命スペクトル。電場強度  $E_0 = 0.00$  から  $1.77 \times 10^5$  V/m、電場周波数  $\omega = 22 \sim 46$  meV の条件で計算を行った。(b) 電場強度  $E_0 = 0.59, 1.18, 1.77 \times 10^5$  V/m における共鳴寿命の周波数依存性。(c) 電場周波数  $\omega = 22.24, 46.48$  meV に対する共鳴寿命の電場強度依存性。

を満たすものが2つであったと理解できる。このうち、 $\omega = 22.24$  meV に対するピークは  $B_{3u}^4$  と  $B_{1g}^2$  との間の共鳴遷移によるものであり、 $\omega = 46.48$  meV に対するピークは  $B_{3u}^4$  と  $B_{1g}^4$  との間の共鳴遷移によるものである。前節で  $B_{1g}$  状態は非常に長い状態寿命を持つことを述べた。それを反映して、T-mode による寿命変調はいずれの場合についても寿命の延長を与えている。これらのピークに対する電場強度依存性を調べた結果が図 5.9(c) である。有効寿命はどちらの周波数においても  $E_0 = 0.7 \times 10^5$  V/m 付近で極値を持った後、減少に転じた。この電場強度依存性に対しても L-mode 光電場による変調と同様の解釈が成立する。すなわち、電場強度の比較的小さな領域では Rabi 振動の周期よりも寿命が短いために、ほぼ線形な変調が起こるのに対し、電場強度の大きな領域においては Rabi 振動によって各共鳴状態寿命の重畳が起こり有効寿命  $\tau_{\text{eff}}$  は平均化されて一定値へ近づく。ただし、 $B_{1g}$  状態が比較的確であることに起因して、多準位の混成の効果は現れずその変化は緩やかなものとなった。

### 5.4.3 擬暗状態

前節において電子の共鳴状態寿命が  $B_{1g}$  状態への遷移によって著しく延長されることが明らかとなった。ここではこの機構を利用した電子の運動制御の方法を提案する。共鳴トンネリング中の電子を T-mode の光電場を用いて透過率の非常に低い状態へ遷移させることを考える。このとき、電子が遷移した  $B_{1g}$  状態は伝導路への遷移確率がポテンシャル場の形状から非常に小さいため、電子波の透過過程において Rabi 振動の半周期のところ、つまりちょうど反転分布が得られたところで電場を切ることで、電子波がドット内部へ滞留せざるを得なくなることが期待される。(ただし自然放出などの緩和過程が起こるまでの時間。)

実際に数値計算を行った結果が図 5.10 である。外場の条件としては  $E_0 = 1.18 \times 10^5$  V/m,  $\hbar\omega = 26.24$  meV を与えた。時刻 1.2 ps で電場を切ったことにより、電子の Rabi 振動が止まり、 $B_{1g}$  状態へ固定された電子は期待されたとおりどちらの伝導路へも遷移しがたい状態となって量子ドット内に滞留した。このように二次元の自由度に基

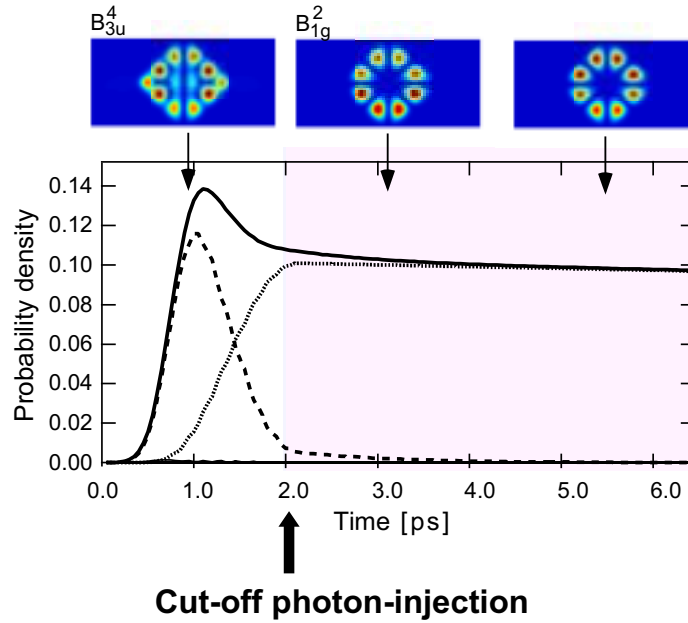


図 5.10 量子ドットの対称性と幾何的形狀を利用した電子の *Quasi-dark State* の実現。外場の条件として  $E_0 = 1.18 \times 10^5$  V/m,  $\omega = 26.24$  meV を与えた。時刻 2 ps で電磁場の強度をゼロにした。

づく量子閉じこめ場の対称性と外場の自由度を利用することで、電子の運動制御が可能性であることを示すことが出来た。

#### 5.4.4 波数分布解析

前節では、光電場の変調のない場合の共鳴トンネリングに対してエネルギー保存則に基づき透過波の波数分布を解析した。ここでは光電場による変調を受けた電子において、その透過波の波数分布にどのような変化があらわれるのかを議論する。L-mode の光電場下での透過波の  $x$  方向の波数分布を調べたのが図 5.11(a) である。その結果、光電場のない場合に見られたピーク（赤）に加えて新しいピークが付け加わることが見出された（緑、青）。これらのピークはそれぞれ前項で述べた  $B_{3u}^4$  と  $A_g^4$  および  $B_{3u}^4$  と  $A_g^7$  の間の遷移によって生じたと考えられる。実際、 $A_g$  状態を経由した伝導路への遷移は可能であり、量子ドット内準位から伝導路におけるサブバンドへのエネルギーを保存した遷移を考えることで、新たに付け加わったピークは  $A_g$  状態を介したトンネルによるものであることが理解される。

図 5.11 (b) からこれらの新たなピークの起源は明らかである。共鳴状態  $A_g^4$  は  $B_{3u}^4$  よりもエネルギー的に小さくそれに対応してサブバンドに遷移した透過波の  $x$  方向の波数分布はもとの最大波数  $k_x = 4.83$  a.u. よりも小さくなり、サブバンド  $i = 1$  への遷移によって  $k_x = 4.10$  a.u. のピークが、同様に  $i = 3, 5$  への遷移によって  $k_x = 3.47, 1.67$  a.u. のピークが生じたことが理解出来る。また共鳴状態  $A_g^7$  からサブバンドへの遷移を考えると  $k_x = 5.50, k_x = 5.03, 3.90$  a.u. におけるピークがそれぞれ  $i = 1, 3, 5$  への遷移によって生じたことも明らかである。

T-mode の光電場においても同様の議論が成り立つことが期待され、 $\hbar\omega = 26.24$  meV の条件においては透過波の  $x$  方向の波数分布には  $B_{3u}^4$  から  $B_{1g}^2$  への遷移による効果があらわれることが期待された。しかし T-mode 光電場の下では新たなピークは見られなかった [図 5.11(c)]。共鳴状態  $B_{1g}^2$  は  $y$  方向に対して奇の対称性を持ち、伝導路の偶の対称性を持つサブバンドへの遷移が可能であるが、前節の議論でも述べたとおり、菱形量子ドットのポテンシャル形状からこの状態の伝導路への遷移確率は非常に小さいものとなる。その結果、電子は  $B_{1g}^2$  の状態を取っている間はドット内部へ滞留する。この低い透過率に対応して、透過波の波数分布には新たなピークは見られないことが理解さ

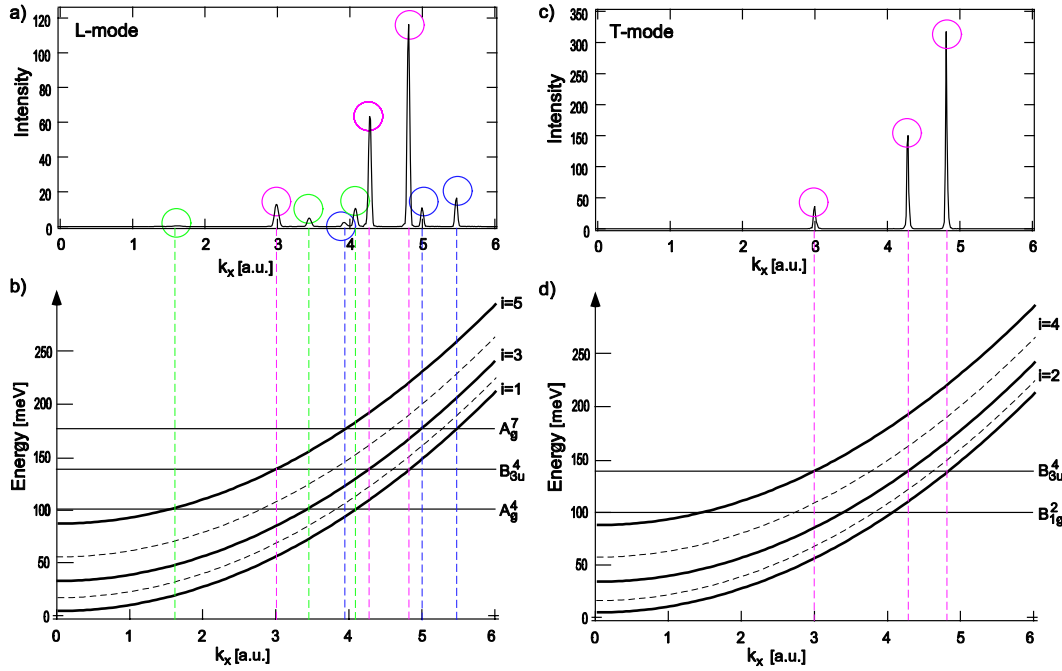


図 5.11 透過波の波数分布。  $\omega = 36.00$  meV、 $E_0 = 0.59 \times 10^5$  V/m の条件の L-mode 光電場に対する結果 (a)、 $\omega = 26.24$  meV、 $E_0 = 0.59 \times 10^5$  V/m の T-mode 光電場に対する結果 (c)。ドット内共鳴状態から伝導路サブバンドへの遷移をエネルギー保存の関係を下に図示 (L-mode (b), T-mode (d))。

れる。よって T-mode による変調はドット内部における電子の寿命の延長には寄与するが、透過波の波数分布に対する変調を与えるのは難しいことが明らかとなった。

## 二光子過程

図 5.12 は二光子吸収の共鳴周波数に相当する  $E = 0.588 \times 10^6$  V/m,  $\hbar\omega = 31.98$  meV の条件で L-mode の光電場を与えた場合の波数分布をあらわすものである。電場強度は先ほどの一光子過程と比べて 5 倍の強度である。透過波の波数分布を見るとわずかに  $k_x = 2.68, 3.47$  a.u. に  $i=1, 3$  への遷移による変調の効果が現れているがその量はごくわずかである。これは励起した先の状態のトンネル透過率が少ないためと考えられる。図 5.12(a) をみるとわかるようにドット内部で遷移した先の状態  $B_{3u}^2$  は透過率が非常に小さく、T-mode 変調におけるのと同様にドット内部に電子が一時的に滞留し、元の状態へ再遷移するまで透過領域へほとんど出て行かない。そのため透過波の波数ピークに大きな変調があらわれなかったと理解出来る。ただしこの条件でも若干ではあるがトンネル透過はおこるため透過波には若干の変調は見られる。二光子共鳴遷移がおこるためには条件として元の状態と遷移する先の状態が同じ対称性をもつことが必要である。またこの遷移は  $B_{3u}$  の対称性をもつ状態間の遷移であるため、どの状態もトンネル確率はゼロではない。これを踏まえると別な状態への二光子共鳴の場合にはより大きな変調が見られることが期待される。

## 5.5 結論

二次元の菱形量子ドットに対する光支援トンネリングを検討した。従来の研究ではトンネルハミルトニアンを用いた定性的な議論や有効一次元モデルを用いた近似計算が主であったが、本研究ではより現実に近い二次元の自由度を系に与え、伝導に対して垂直方向の自由度も考慮に入れた上で定量的な計算を行った。特に電子波の共鳴トンネリングにおける状態寿命が、振動外場との相互作用により変調される点に着目して検討を行った結果、量子ドットと伝導

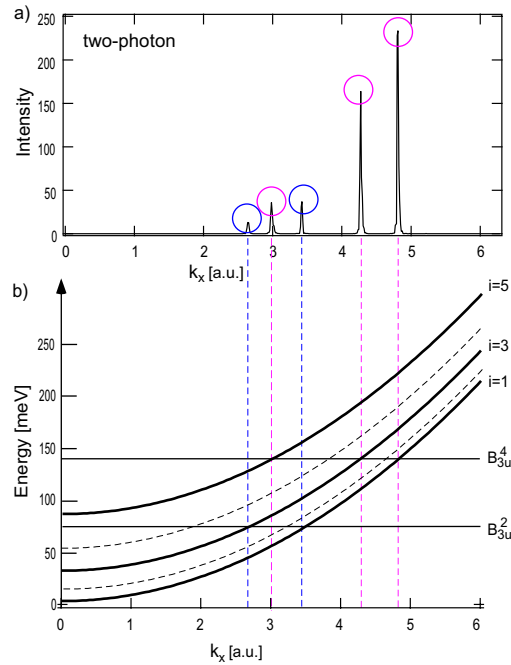


図 5.12 二光子過程の起こる条件、 $\omega = 31.93$  meV,  $E_0 = 1.77 \times 10^5$  V/m (L-mode) における透過波の波数分布 (a)。ドット内共鳴状態から伝導路サブバンドへの遷移をエネルギー保存の関係をもとに図示 (b)。

路との間の選択則および電磁場の偏光方向が電子波の透過過程の制御にとって重要であることが明らかとなった。具体的には、量子ドットに電子波束を入射させ、第3章において定義した有効共鳴状態寿命を用いて振動場の周波数と強度に対する共鳴状態寿命の依存性を定量化し、加えて射影法を組み合わせた解析を行うことでこの寿命の変調現象を検討した。その結果、ドット内部で電子 - 光子相互作用による共鳴的遷移が生じた場合、共鳴状態の有効寿命は各共鳴状態の時間依存占有割合の重ね合わせとして決定され、それに伴い寿命変調が起こることを見出した。さらに電場強度、周波数の変化に対して、共鳴状態寿命は非線形な関係となることも見出し、それが量子ドット内における電子の Rabi 振動の時間周期と共鳴状態の有効寿命との関係によって決定されることを明らかにした。これらの結果から、電子寿命の効率的変調には Rabi 振動の周期を規定する電場強度の決定が不可欠であることが明らかとなった。最後に二次元の自由度を利用した、系の対称性と光電場の偏光方向を組み合わせた電子波の閉じこめ（擬暗状態）を提案し、数値計算の実行によりその実現可能性を検証した。

## 第6章

# 総括

量子閉じこめ場における電子波の動力学を、時間依存シュレディンガー方程式の数値解法に基づき、初期値問題の立場から研究した。数値計算法の検討と確立を行い、続いて半導体ナノ構造中を外場と相互作用しながら伝搬する電子波の動力学への適用を行った。

各章を要約する。

第2章では指数積分解法を用いた時間発展計算法の定式化とそれに基づくプログラムの開発を行った。他の計算手法との比較を行うことで指数積分解法が精度、汎用性に優れた方法論であることを明らかにし、様々な電磁ポテンシャル場を取り込んだハミルトニアンに対する時間推進演算子の指数積分解を与えた。これらの結果を踏まえて、実際の半導体ナノ構造への適用を行った。

第3章では静的ポテンシャル場中における電子波束の運動を取り扱った。一次元の単純なポテンシャル場に対する電子波束の運動に対して、透過率や波動関数の波数分布さらに古典軌道との対応を調べることで、初期値問題と固有状態からのアプローチとの整合性を明確化し、同時に初期値問題からの時間発展解析法の提案を行った。また、楕円型ポテンシャル場に対する電子波束の時間発展を検討することで、静的ポテンシャル場の幾何的形状を利用した電子波の運動制御を議論した。その結果、系の初期条件に応じて、電子波束の拡がりに伴うポテンシャル障壁との反射と干渉が生じ古典軌道からの逸脱がおこることを明らかとした。さらに少数個の固有状態を介した電子波束の一次元二重障壁に対する共鳴トンネリングについても議論を行った。特に、共鳴状態寿命に着目し波束の寿命を有効共鳴状態寿命を定義して解析を行った結果、初期値問題からの共鳴状態寿命の解析は固有状態からのアプローチをしのぐ汎用性のある方法であることを見出した。

第4章では、周期的振動ポテンシャル場に対する量子閉じこめされた電子の光学過程の解明を行った。半古典近似の立場から電子の共鳴遷移現象を俯瞰し、二準位近似の下での波動関数の時間発展を、非摂動固有状態および Floquet 状態の立場から考察し、数値解との比較を行った。その中で初期値問題として解かれた波動関数の時間発展を、非摂動固有状態へ射影する方法を提案し、この解析法によって高次の光学過程までを容易に取り込んだ解析が可能であることを明らかにした。

第5章では、静的ポテンシャル場と動的ポテンシャルを組み合わせた系として、量子ドットに対する光支援トンネリングの解析を行った。従来の研究ではトンネルハミルトニアンを用いた定性的な議論や有効一次元モデルを用いた近似計算が主であったが、本研究ではより現実に近い二次元の自由度を系に与え、伝導に対して垂直方向の自由度も考慮に入れた上で定量的な計算を行った。その結果新たに生じる量子ドットと伝導路との間の選択則および電磁場の偏光方向の自由度が電子波の透過過程の制御にとって重要な影響を与えることを初めて見出した。

以下ではそれぞれの章で得られた結果の詳細を述べる。



## 第2章 数値計算法

第2章では時間依存シュレディンガー方程式の数値解法について述べた。本研究で採用した実空間基底の特徴について論じ、続いて方程式の形式解を数値的に解法する4種類のアルゴリズムの比較を行い、以下の結論を得た。

- 数値計算の初期条件の決定には、波動関数に与える初期値とハミルトニアンから決定されるエネルギー範囲を考慮して、空間刻み、時間刻みに対して定義した定数  $\eta$  が  $\eta \leq 1$  を満足することが要求されることを明らかにした。これによって計算対象に対する初期条件の定め方の指針が明確化された。
- 時間推進演算子を数値的に近似する4種の計算法を束縛状態および時間依存ポテンシャル場における電子の時間発展に対して適用し、比較検討を行った結果、指数積分法による時間発展計算が汎用性とその精度の点で優れていると判断し、Watanabe らによって提案された指数積分法に Cayley 形式を組み合わせる方法を用いた時間発展を採用した。
- 指数積分法に基づいて静的ポテンシャル、動的ポテンシャル項を持つハミルトニアンそれぞれに対する指数積分の具体的な定式を与え、半導体ナノ構造中を電磁場と相互作用しつつ伝搬する電子波の運動を扱うための方法論を確立した。

## 第3章 静的ポテンシャル場中電子の運動

第3章では静的なポテンシャル場中における電子波束の運動について検討を行い、以下のような結論を得た。

- 量子閉じこめ場を想定した簡単な一次元ポテンシャル場における電子波束の透過過程を、透過率などの物理量の解析を通して、固有状態からの解法と初期値問題の立場からの解法からそれぞれ検討することで、両者の関係を明確化することに成功した。
- ポテンシャル場による散乱後の電子波束の透過波と反射波の波数分布を調べ、電子の透過過程を運動量空間で記述することにより、エネルギー保存則と運動量保存則に立脚した直感的な解析が可能であることを明らかにした。
- 一様磁場下における電子波束の運動を計算した結果、多くの固有状態で展開できる比較的大きな系においては、電子波の軌跡を古典的点電荷の運動と比較することが効果的な解析手段となることを見出した。
- 楕円型ポテンシャル場における電子波束の動力学解析への適用を行った。その中で、楕円型ポテンシャル場の幾何的形狀を利用した電子波の収束性を議論し、楕円の形狀を表す量として長軸と短軸の比を用いる事で、楕円のサイズおよび形狀が電子波束の運動に与える影響を議論している。その結果、電子波束の収束性は古典軌道と良く対応した弾道的収束によるものに加えて、ポテンシャル場と電子波の初期条件によって決まる干渉のために強調される場合があることを見出し、幾何的形狀を利用して電子波束の収束性を判断するには注意が必要であることを明らかにした。
- 電子波の共鳴トンネリングを一次元の二重障壁に対して検討し、電子の共鳴状態の減衰時間を用いて電子波束の共鳴状態寿命を定義した。その結果、適切な条件の下では共鳴状態寿命が波束の初期幅や初期位置に依存しない量となり、解析的に求められる平面波の共鳴寿命ともよく対応することが明らかとなった。それと同時に、電子波束の流入過程は波束の初期状態によって大きく変動することも明らかとなった。ここで提案した波束の運動に基づいた共鳴状態寿命の解析法は、固有状態からのアプローチでは困難であった、高次の空間的自由度を有する複雑な共鳴構造に対する解析を容易にするという意味で非常に効果的な解析手法となることが期待される。

#### 第4章 閉じ込められた電子の動的ポテンシャル場中における動力学

第4章では動的なポテンシャル場中に対する閉じ込められた電子の応答について考察した。電磁場の印加された量子井戸に閉じ込められた電子の時間発展計算を電気双極子近似の下で行い、得られた結果を二準位近似との整合性およびその限界点に焦点を当てて検討し、以下の結論を得た。

- 電磁場との相互作用による電子の共鳴遷移を主に二準位近似の下で非摂動固有状態、Floquet 状態それぞれの立場から検討し、電場強度の大きな領域においては回転波近似の有無で大きく物理量の時間発展の様相が異なり、高周波数成分が電子波の時間発展に無視できない影響を与えることを明らかにした。また、電場強度の強い領域のみならず、共鳴点からのずれが大きくなる領域において二準位近似の与える結果の不正確さが増すことも定量的に示すことに成功した。
- 系の時間発展を初期値問題として評価する場合、数値計算から得られる各時刻の波動関数およびそれに伴う物理量の時間変化のデータは膨大なものとなるため、解析を困難なものとしていた。これに対して、本研究では各時刻に得られた波動関数を系の特徴的な種々の状態へ射影する方法論を提案し、かつその適用を行った。特徴的な状態として量子閉じこめ場の静的固有状態を取り上げ、各状態への射影を行い、電磁場と相互作用した電子がどのような内部状態の変化を伴って時間発展していくのかそれがまた物理量や現象にどのように寄与していくのかを追尾した。その結果、初期値問題としてのシュレディンガー方程式の数値解法は、これまでの摂動論的取り扱いで議論されてきた一光子過程などの低次の相互作用のみならず、多段的光学過程などを含む多準位を介した、種々の高次の相互作用が取り込まれた結果を与えることを明らかとなり、また同時にこれらの時間発展に対し、射影法を用いた解析が非常に有効であることを明らかにした。

#### 第5章 光支援トンネリング

第5章では量子ドットに入射する電子波束に対する光支援トンネリングの検討を行った。特に、電子波のトンネリングにおける共鳴状態寿命が振動外場との相互作用により変調される点に着目して検討を行い、以下のような結果を得た。

- 外部電磁場によって変調された量子ドットに電子波束を入射させ、その共鳴トンネル透過過程を射影法を用いることで解析した。波束の閉じこめ場に対する時間依存現象を明確化するため、共鳴状態の有効寿命を定義し、これにより振動場の周波数、強度に対する共鳴状態寿命を定量的に議論することを可能とした。
- ドット内部で電子-光子相互作用による共鳴的遷移が生じた場合、共鳴状態の有効寿命は各共鳴状態に対する時間的な占有割合の重ね合わせとして決定され、それに伴い大きな寿命変調が起こることも見出した。その際、一光子過程、多光子過程それぞれで、寿命変調の起こる電場強度領域が異なることを明らかとした。
- 共鳴状態寿命は電場強度、周波数の変化に対して非線形に変化することを見出し、量子ドット内における電子の Rabi 振動の時間周期と有効共鳴状態寿命との関係を明確化した。その結果、電子寿命の効率的変調には Rabi 振動の周期を規定する電場強度の決定が必要であることを電子状態制御に対する指針として与えることに成功した。
- 最後に二次元の自由度を利用した、系の対称性と光電場の偏光方向を組み合わせた電子波の閉じこめ（擬暗状態）を提案し、数値計算の実行によりその実現可能性を検証した。

#### 研究の将来展望

多体への拡張 本研究では外場と相互作用しながら運動する電子の時間発展を、楕円型ポテンシャル場中電子波束の運動、二次元菱形量子ドットに対する光支援トンネリングなどへ主に一電子描像がよく成立するとして適用し、そ



の動力学の検討を行ってきた。しかし、これらの結果をより強固なものとするためには電子間相互作用による影響が荷電担体の時間発展にどのような形であらわれるのかについてさらに検討を行う必要がある。多体の時間発展を第一原理的に扱う方法として時間依存 Kohn-Sham 方程式および時間依存 Hartree-Fock 方程式の数値解法などが提案されており、著者も現在これらの方法を用いた時間発展計算を模索中である。これらの方程式を用いた時間発展計算は実際の系への適用と同時に計算法自身の開発およびその理論的位置づけも未だ発展途上であり、計算科学の立場からも非常に興味深い領域である。

本研究の多体問題への拡張として荷電された量子ドットに対する電子の注入効果および光学応答の検討が考えられる。量子ドットの束縛エネルギーが電子間相互作用に比べて相対的に弱くなる、数十から数百 nm のドットにおいては、閉じ込められた複数の電子が電子間相互作用による反発により異なる空間軌道を占めて整列することで、あたかも原子核の配列した分子や結晶のような状態が形成されることが予測されている。このような状態は Wigner 分子状態と呼ばれ、その状態の観測は未だ実験的にも大変難しく観測に成功した例は数少ない。また観測の難しさに付随してその基本的性質についても未解明な部分は多く、特に外部からの電荷注入に対する応答の解明はその光学特性と並んで大きな課題である。これらの物理描像の探求と並行して多体の時間発展を扱うための計算プログラムの開発を行うことが、今後の大きな課題となる。

荷電担体の運動に伴う電磁場 また、もう一つの課題として、電子の運動自身に伴い発生する電磁場の効果を時間発展へ取り込むことが挙げられる。例えば半導体ナノ構造中を伝搬する電子の加速度運動に伴う電磁輻射はポテンシャル場を変調すると同時に同じ構造中を伝搬する電子の運動、さらには自身の運動へ影響を与えることが期待される。しかしながらこれらの効果を取り入れた議論は十分になされていないのが現状である。具体的な例としては、電子が磁場の印可された量子リングなどの軌道角運動量を持つ状態へ入射する場合が考えられる。このような構造を透過する際に、電子はその透過過程で自らの運動に伴い誘起された自己磁場により変調を受けることが期待される。特にリングのような幾何的特徴を有する量子構造においては電子間相互作用が相対的に効きやすく、荷電担体自身の運動に伴う誘起電磁場が系の時間発展へ与える効果は無視できないほど大きくなり、新奇な現象の原因となることが期待される。また、荷電担体の運動が生み出す電磁場の影響を検討することは時間発展を初期値問題として扱う数値計算法の特徴を生かすことにもつながり、非常に興味深い。

多体に対する第一原理時間発展計算の研究は、世界的に見て未だ理論的位置づけおよびアルゴリズムの開発と実際の物理的現象への適用が並行して進められている非常に「熱い」領域である。上で挙げた検討課題を実現することを通してこの領域へ寄与できることを望むものである。

## 付録 A

# 数値計算アルゴリズム

本節では演算子の指数積分法以外の三種類の数値計算アルゴリズムについて述べる。。また、演算子の指数積分法の別バージョンとして運動エネルギー演算子部分の演算を高速フーリエ変換を用いて  $k$  空間で作用させる方法についても述べる。それぞれの計算精度などの評価については本論文第 2 章を参照のこと。

### A.1 二次精度差分法

記述の簡略化のため一次元自由空間における定式化のみ述べる。一次元の自由空間における一体のハミルトニアンに対する時間依存シュレディンガー方程式は

$$i\hbar \frac{\partial \psi(x, t)}{\partial t} = -\frac{\hbar^2}{2m} \frac{\partial^2}{\partial x^2} \psi(x, t) \quad (\text{A.1})$$

で与えられるが、ここで両辺の微分演算子に対して以下のような近似を行い、計算を行うのが二次精度差分法である。まず、シュレディンガー方程式の左辺の時間に対する微分演算子を時刻  $t$  を中心とした中心差分で置き換え

$$\frac{\partial \psi(x, t)}{\partial t} \Rightarrow \frac{\psi(x, t + \Delta t) - \psi(x, t - \Delta t)}{2\Delta t} \quad (\text{A.2})$$

のように表す。次に右辺を考える。このとき空間部分の二階微分を差分で表すと

$$-\frac{\hbar^2}{2m} \frac{\partial^2}{\partial x^2} \psi(x, t) \simeq -\frac{\hbar^2}{2m} \frac{\psi(x + \Delta x, t) - 2\psi(x, t) + \psi(x - \Delta x, t)}{\Delta x^2} \quad (\text{A.3})$$

となる。これは空間に対する二次精度の表式である。以上を合わせた結果、シュレディンガー方程式の差分表示は

$$i\hbar \frac{\psi(x, t + \Delta t) - \psi(x, t - \Delta t)}{2\Delta t} = -\frac{\hbar^2}{2m} \frac{\psi(x + \Delta x, t) - 2\psi(x, t) + \psi(x - \Delta x, t)}{\Delta x^2} \quad (\text{A.4})$$

であらわされ、

$$\psi(x, t + \Delta t) = \psi(x, t - \Delta t) + \frac{i\hbar}{m} \frac{\Delta t}{\Delta x^2} [\psi(x + \Delta x, t) - 2\psi(x, t) + \psi(x - \Delta x, t)] \quad (\text{A.5})$$

を得る。この表式は時間について二次の精度を持つ。実際時間推進演算子をテイラー展開すると

$$\exp\left(-\frac{iH}{\hbar}t\right) = \sum_{n=0}^{\infty} \frac{1}{n!} \left(-\frac{iH}{\hbar}t\right)^n \quad (\text{A.6})$$

であり、このうち二次までの成分を考えると

$$\psi(t + \Delta t) = \exp\left(\frac{-iH}{\hbar}\Delta t\right)\psi(t) \quad (\text{A.7})$$

$$\simeq \left[I - i\frac{H}{\hbar}\Delta t + \frac{1}{2}\left(-i\frac{H}{\hbar}\right)^2\Delta t^2\right]\psi(t) \quad (\text{A.8})$$

を与えるが、これと時間を反転させた表式

$$\psi(t + \Delta t) = \exp\left(\frac{iH}{\hbar}\Delta t\right)\psi(t) \quad (\text{A.9})$$

$$\simeq \left[I + i\frac{H}{\hbar}\Delta t + \frac{1}{2}\left(-i\frac{H}{\hbar}\right)^2\Delta t^2\right]\psi(t) \quad (\text{A.10})$$

との差をとると、先の差分表式が時間に対して二次の精度であることがわかる。

以上のようにしてシュレディンガー方程式を数値計算が可能な差分形式に書き換えることが出来た。このような差分表式で計算をする方法を二次精度差分法と呼び、非常に簡単な手続きで計算を行えることから広く用いられている。しかし計算の安定の為に空間刻みと時間刻みとの間に一定の関係が要請されるということが大きな制約としてある。一次元においては  $\Delta t$  は  $\Delta x$  の二乗の半分よりも小さく取らなくてはならない。またこの制約は次元が増えるにつれて厳しくなり計算負荷が増大する。また、ここでは一次元の自由空間の場合について述べたが、静的ポテンシャル項のある場合、および二次元、三次元への拡張も非常に容易であることを付け加えておく。

## A.2 Chebyshev 多項式展開法

この方法は時間推進演算子を

$$\exp\left(-i\frac{Ht}{\hbar}\right) \simeq \sum_{n=0}^{N_g} a_n P_n\left(-i\frac{Ht}{\hbar}\right) \quad (\text{A.11})$$

と多項式で展開して近似することにより計算を行う方法ある<sup>6)</sup>。ただし  $P_n$  は多項式で  $a_n$  が展開係数である。多項式  $P_n$  としては Chebyshev 多項式を使う。Chebyshev 多項式は区間  $[-1, 1]$  において他の多項式と比べて高精度で任意の関数を近似できるという性質を持つからである。今考えている時間推進演算子はスカラー関数ではなく虚数の指数演算子であるので、この場合は複素 Chebyshev 多項式を使う。ここで変数  $x$  は演算子  $iHt$  に変更される。多項式近似を成功させるためには多項式の定義域が  $[-i, i]$  でなくてはならないので、まず最初にハミルトニアン  $H$  をこの範囲で再規格化しなくてはならない。 $H$  の再規格化は実のエネルギー固有値幅  $\Delta E_{\text{grid}} = E_{\text{max}} - E_{\text{min}}$  によって  $H$  を割ることで行う。ここで、エネルギー幅をうまく見積もることが重要である。大きく見積もりすぎると収束が遅くなるし、小さく見積もりすぎると計算が発散することに注意しなくてはならない。最大の効率を得るためには

$$H_{\text{norm}} = 2 \frac{H - I(\Delta E_{\text{grid}}/2 + E_{\text{min}})}{\Delta E_{\text{grid}}} \quad (\text{A.12})$$

とするのがよい。こうすることで定義域を  $[-1, 1]$  と出来る。以上の定義の元で波動関数の時間発展は

$$\psi(t) \simeq \exp\left[-(i/\hbar)(\Delta E_{\text{grid}}/2 + E_{\text{min}})t\right] \sum_{n=0}^N a_n \left(\frac{\Delta E_{\text{grid}} \cdot t}{2\hbar}\right) \phi_n(-iH_{\text{norm}})\psi(0) \quad (\text{A.13})$$

と表せる。ここで  $\phi_n$  は複素 Chebyshev 多項式であり、右辺の最初の項はエネルギースケールのシフト分を補正する項である。展開係数  $a_n$  はベッセル関数  $J_n$  を用いて

$$a_n(\alpha) = \int_{-i}^i \frac{e^{i\alpha x} \phi_n(x) dx}{(1-x^2)^{1/2}} = 2J_n(\alpha) \quad (\text{A.14})$$

と与えられる。ただし  $a_0 = J_0$ ,  $\alpha = \Delta E_{\text{grid}} \cdot t/2\hbar$  である。

数値計算を実行するためには  $\phi_n(-iH_{\text{norm}})$  の  $\psi(0)$  への作用の結果を知る必要がある。それは Chebyshev 多項式の

$$\Phi_{n+1} = -2iH_{\text{norm}}\Phi_n + \Phi_{n-1} \quad (\text{A.15})$$

という関係を使うことで実行することが出来る。ただし  $\Phi_n = \phi_n(-iH_{norm})\psi(0)$  である。繰り返し計算（帰納式）は  $\Phi_0 = \psi(0)$ ,  $\Phi_1 = -iH_{norm}\psi(0)$  から開始する。ベッセル関数  $J_n(\alpha)$  は  $\alpha$  が  $n$  より小さくなると急激に小さくなり指数的に減衰するので、 $\alpha < n$  が多項式の次数打ち切りの目安になる。

### A.3 Short Iterative Lanczos 法

Short Iterative Lanczos 法は時間推進演算子を  $p$  次の級数展開で近似する方法の一種である。その意味では CH 法に近い方法である。具体的には時刻  $t$  の波動関数を、時刻  $t$  を基点として生成された  $p$  次元の Krylov 部分空間のベクトルで近似する方法である。

$$\exp\left(\frac{\Delta t}{i\hbar}H\right)\psi(t) \simeq \sum_{k=0}^{p-1} \frac{1}{k!} \left(\frac{\Delta t}{i\hbar}\right)^k H^k \psi(t) \quad (\text{A.16})$$

$$= \sum_{k=0}^{p-1} \frac{1}{k!} \left(\frac{\Delta t}{i\hbar}\right)^k d_k \quad (\text{A.17})$$

ただしここで

$$d_k = H d_{k-1}, \quad d_0 = \psi(t) \quad (\text{A.18})$$

である。まず Krylov 部分空間を生成する必要がある。Krylov 部分空間は線形演算子の初期ベクトルへの作用によって定義され、たとえば  $j$  次の部分空間は

$$u_j = H^j \psi(0) \quad (\text{A.19})$$

のようにしてハミルトニアンから作ることが出来る。ただし、 $u_j$  は元の無限次元空間の射影（もしくは縮約）の範囲を持つ。初期波動関数に Lanczos 法を適用することで Krylov 部分空間  $d_i$  の正規直交基底  $\mathbf{Q}_p = \{d_i\}$  を得る。（Lanczos 法の手続きについては付録 C を参照されたい。）Lanczos 法の手続きを繰り返して得られた  $p$  次の行列は

$$H_p = \begin{pmatrix} \alpha_1 & \beta_1 & 0 & & \\ \beta_1 & \alpha_2 & \beta_2 & 0 & \\ 0 & \beta_1 & \alpha_2 & \beta_2 & 0 \\ & 0 & \beta_3 & \ddots & \ddots \\ & & & \ddots & \ddots \end{pmatrix} \quad (\text{A.20})$$

という形の三重対角行列となる。これは行列  $H_p$  の元の基底ベクトルに変えて  $d_i$  を基底ベクトルにした表現だということもいえる。

ここで  $d_i$  の係数ベクトルとして  $\mathbf{c}(t)$  を導入すると Lanczos 法により縮約された時間依存シュレディンガー方程式は以下のように書かれる。

$$\frac{\partial \mathbf{c}}{\partial t} = -iH_p \mathbf{c} \quad (\text{A.21})$$

もしも Lanczos 法の手続きを無限次まで取っていれば、この方程式により導かれる時間発展は最初に定義された時間依存シュレディンガー方程式と完全に一致する。近似の精度は行列の次数  $p$  をどれだけ取るかによって決定される。上の方程式の形式解は

$$\mathbf{c}(t + \Delta t) = \exp(-i\Delta t H_p) \mathbf{c}(t) \quad (\text{A.22})$$

となる。(ただし列ベクトル  $\mathbf{c}(t)$  は第一要素が 1 であとはゼロだということに注意が必要である。) この式を解いた結果得られた  $t + \Delta t$  の係数ベクトル  $\mathbf{c}(t + \Delta t)$  を先ほどの Lanczos 法の手続きによって得られた基底から戻すことで時間発展した波動関数を得ることが出来る。

$$\psi(t + \Delta t) = \mathbf{Q}_p \mathbf{c}(t + \Delta t) \quad (\text{A.23})$$

以上のような形で Lanczos 法を用いて部分空間への射影を行い、低次の行列を用いて時間発展を行う方法を Short Iterative Lanczos 法と呼ぶ<sup>8)</sup>。なおその精度は時間に対して  $p$  次になる。

以下、具体的な計算の手続きについて述べる。数値計算は初期波動関数とハミルトニアンを設定し、それに対する縮約行列の計算、縮約行列を用いた時間発展の計算、そして時間発展した波動関数の計算という手順で行い、これらを繰り返すことで時間発展がわかる。縮約行列の作り方と、縮約行列から波動関数を再現する方法についてはすでに述べた。残りは縮約行列を用いた時間発展の計算である。Krylov 部分空間に対する時間推進演算子を縮約行列  $H_p$  を対角化することで求める。

$$\exp(-i\Delta t b f H_p) = U_p \exp(-i\Delta t \Lambda_p) U_p^\dagger \quad (\text{A.24})$$

ここで、 $U_p$  は  $H_p$  を対角化するユニタリー行列、 $\Lambda_p$  は固有値  $\{\lambda_j\}$  による対角行列である。ベクトル  $\mathbf{c}(t)$  が第一要素以外ゼロであることを考慮すれば、時間推進演算子の作用は以下のようにして与えられる。

$$\psi(t + \Delta t) \simeq \sum_{k=0}^{p-1} a_k \mathbf{q}_k, \quad a_k = \sum_{j=0}^{p-1} U_{kj} \exp(-i\Delta t \lambda_j) (U^\dagger)_{j0} \quad (\text{A.25})$$

時間刻み幅の決め方 Lanczos 法によって作る縮約行列を出来るだけ低次の次数に押さえたいが、そのためには時間刻み幅と Lanczos 法によって作られた基底関数の新たな時刻の波動関数への寄与との関係を考えなくてはならない。基本的には Lanczos 法によって作られた基底関数の  $p$  次(最終次)の係数の寄与が時間発展後にも十分微少であればよいということである。条件を式で書くと

$$|c(t + \Delta t)_p| \leq \epsilon \quad (\text{A.26})$$

ただし、 $\epsilon$  は微量で実用的には  $10^{-2} \sim 10^{-3}$  程度である。実際どうやって刻み幅を決めるかだが、式を  $p$  次の級数展開で近似したとしてあらわに書くと

$$c(t + \Delta t) \simeq \sum_{k=0}^{p-1} \frac{1}{k!} \left(\frac{\Delta t}{i}\right)^k H_p^k \mathbf{c}(t) \quad (\text{A.27})$$

となる。ここで  $H_p$  は三重対角行列であるためにベクトル  $\mathbf{c}_{t+\Delta t}$  の第  $p$  要素は低次の摂動の範囲では

$$c(t + \Delta t)_p \simeq \frac{1}{(p-1)!} \left(\frac{\Delta t}{i}\right)^{(p-1)} \prod_{k=0}^{p-1} \beta_k \quad (\text{A.28})$$

で与えられる。ここで  $\beta_k$  は  $H_p$  の非対角要素である。この式から時間刻みの幅  $\Delta t$  に対する条件式を求めることが出来、

$$\Delta t \leq \left( \epsilon \left[ \frac{(p-1)!}{\prod_{k=0}^{p-1} \beta_k} \right]^2 \right)^{1/(2p-2)} \quad (\text{A.29})$$

である。これが計算の安定条件で  $p$  と  $\beta_k$  によって決まる。

## A.4 高速フーリエ変換と組み合わせた演算子の指数積分解法

本研究では指数積分解法と Cayley 形式の組み合わせによる数値解法を主に用いて計算を行ったが、ここでは指数積分解法と高速フーリエ変換 (FFT) を組み合わせた時間発展計算法について述べる。

まず第一のステップとして時間推進演算子を二次精度で対称な指数積へ分解する。

$$\exp\left(\frac{\Delta t}{i\hbar}H\right) \simeq \exp\left(\frac{i\Delta t}{2}\frac{\hbar}{2m}\nabla^2\right) \exp\left(-\frac{iV(r,t)\Delta t}{\hbar}\right) \exp\left(\frac{i\Delta t}{2}\frac{\hbar}{2m}\nabla^2\right) \quad (\text{A.30})$$

これは、すでに見たようにこれは二次精度の分解である。このときポテンシャル項を含む時間推進演算子は局所的演算子であるので各グリッド点での波動関数の位相を変えるだけである。これに対して運動エネルギー演算子を含む推進子は空間に対して局所的ではないので、フーリエ変換を用いて  $k$  空間で作用させることを考える。まず空間座標で表示された波動関数に対してフーリエ変換を行い波数空間で表示する。

$$\psi(x_j) = \sum_{n=0}^N a_n g_n(x_j) \quad (\text{A.31})$$

ただし、 $g_n$  はフーリエ級数を、 $a_n$  はその係数を表す。次に運動エネルギー推進子を作用させるが波動関数は運動量空間で表示されているので、推進子の作用は運動量空間での波動関数のそれぞれのグリッド点（波数成分）に対して定数倍を掛けるだけである。つまり

$$\psi(x_i, t)' = \sum_{n=0}^{N_g-1} \exp\left(-\frac{i\Delta t}{2m}(2\pi)^2(k_n/L)^2\right) a_n \exp\left(2\pi i \frac{k_n x_i}{L}\right) \quad (\text{A.32})$$

である。空間の二回微分が波数の二乗で与えられるのがポイントであるがこれは実際にフーリエ変換を施した波動関数に運動エネルギーの推進子を作用させてみることで理解できる。最後に演算子を運動量空間で作用させたことで出来た状態（上式の右辺）にフーリエ逆変換を施すことで、実空間表示の  $\frac{\Delta t}{2}$  だけ推進した波動関数を得ることが出来る。その後、実空間における各格子点に対してポテンシャル項を作用し、最後に再びフーリエ変換、演算子の作用、逆フーリエ変換という順番で計算を行うことで  $\Delta t$  だけ時間を進めた波動関数を求めることが出来る。この方法の利点は計算精度がよいという点と、比較的高速であるという点であるが、コーディングが煩雑であることに加えて、グリッドの幅を実空間だけでなく  $k$  空間に対しても慎重に選ぶ必要がある点に注意が必要である。実空間を狭めすぎると  $k$  空間が広がってしまうため、その場合多くの点を取る必要が出てくることに注意が必要である。

指数積分解法における運動エネルギー演算子を含む項の作用は、ここで紹介した FFT によるものの他にも多くの方法論との組み合わせが考えられ、例えば本節で導入した CH 法や SIL 法との組み合わせも可能である。どの組み合わせ方がベストであるかは判断の分かれるところと思われる。これについては引き続き検討すべきである。

## 付録 B

# 静電量子レンズ

### B.1 静電量子レンズによる電子波束の収束性制御

本論文第 3 章において楕円型ポテンシャル場における電子波束の時間発展を論じたが、ここでは静的なスカラーポテンシャル場の幾何的形狀を利用した電子波束の制御の別な例として、静電量子レンズを用いた電子波束の収束性制御の解析を行った結果について述べる。

静電量子レンズに対する従来の研究 静電量子レンズを用いた電子波の運動制御の研究は 1990 年代初頭に精力的に行われた。まず、電子波の屈折角がポテンシャル障壁の高さによって制御可能であることが Spector らによって初めて実験的に示され<sup>24)</sup>、続いて Sivan ら、および Spector らによって電子波の屈折を利用したデバイスである静電量子レンズによる電子波の収束に対する研究がなされ、幾何光学とのアナロジーから電子を収束させることが可能であることが実験的に明らかにされた<sup>25)26)</sup>。しかしながらこれらの研究においては単一の平面波成分に対する透過を仮定したレンズ動作の確認に重点が置かれており、エネルギー分散を持つ電子波束に対するレンズ効果についての定量的な議論は十分になされてこなかった。我々はこの点に着目し、静電量子レンズに対する電子波束の時間発展を初期値問題として扱うことで定量的な議論を行った。まず静電量子レンズに進む前段階として、その動作原理である電子波の屈折について解析的、数値的両面から考察を行い、続いてレンズの設計と電子波束のレンズポテンシャル場に対する時間発展と収束性について定量的な議論を行う。

#### B.1.1 電子波の屈折

電子の屈折を検討する。波数  $k_i$  を持った平面波がポテンシャル  $V = 0$  a.u. の領域（領域 I）を進み、ある角度を持って異なるポテンシャル領域（領域 II）へ入射する場合を考える。まず、入射波を考え、その運動エネルギーを  $E_i$  とすると、

$$E_i = \frac{\hbar^2 k_i^2}{2m} \quad (\text{B.1})$$

と表され、 $k_i$  について解くと

$$k_i = \frac{\sqrt{2mE}}{\hbar} \quad (\text{B.2})$$

である。

反射波

次に反射波について考える。反射波の波数を  $k_r$  とすると、その運動エネルギーは

$$E_r = \frac{\hbar^2 k_r^2}{2m} \quad (\text{B.3})$$

であり、 $k_r$  について解くと、

$$k_r = \frac{\sqrt{2mE}}{\hbar} \quad (\text{B.4})$$

である。このとき、界面に対して平行な波数成分は保存され ( $k_i^{\text{para}} = k_r^{\text{para}}$ ) また、領域 I での運動エネルギーが等しい ( $E_i = E_r$ ) ことから、反射波の界面に垂直な成分は

$$k_i^{\text{perp}} = -k_r^{\text{perp}} \quad (\text{B.5})$$

という関係を満たす。このことから、入射波の入射角  $\theta_i$  と反射波の反射角  $\theta_r$  が等しいということがわかる。

#### 透過波の屈折

さらに透過波を考える。その運動エネルギーは

$$E_i - V = \frac{\hbar^2 k_t^2}{2m} \quad (\text{B.6})$$

であり、 $k_t$  について解くと

$$k_t = \frac{\sqrt{2m(E - V)}}{\hbar} \quad (\text{B.7})$$

を得る。ここで界面における波の接続を考える。電子波の位相の境界に沿った成分は、透過波と入射波で一致していなくてはならない (この要請を Phase matching という)。よって電子波の境界に対して平行な波数成分は等しくなければならない、

$$k_t^{\text{para}} = k_i^{\text{para}} \quad (\text{B.8})$$

を満たすことが要請される。これに対して、透過波の界面に垂直な透過波の波数成分はエネルギー保存則から保存されず、

$$k_t^{\text{perp}} = \sqrt{k_i^{\text{perp}^2} - \frac{2mV}{\hbar^2}} \quad (\text{B.9})$$

で与えられる。このようにポテンシャルに対して平行な成分が変化しないのに対し、垂直な成分が変化するために、電子波は屈折する。平行な成分の保存を式で表すと

$$\hbar k_i \sin \theta_i = \hbar k_t \sin \theta_t \quad (\text{B.10})$$

となり、これを变形すると

$$\frac{\sin \theta_t}{\sin \theta_i} = \frac{k_i}{k_t} = \sqrt{\frac{E}{E - V}} \quad (\text{B.11})$$

を得る (図 B.1)。これが電子に対する屈折の法則を表す式である。

#### 電磁波との比較

興味深いことに、電子が正のポテンシャルに対して入射する際には、屈折の向きが光とは逆転した関係となる。電子がポテンシャルの高い領域へ入射する場合に屈折角が入射角よりも浅くなるのに対して、電磁波が誘電率の高い領域へ入射する場合には屈折角は深くなる。この違いは本質的には光と電子における分散関係の違いに起因している<sup>28)</sup>。両者の違いを表にまとめた。



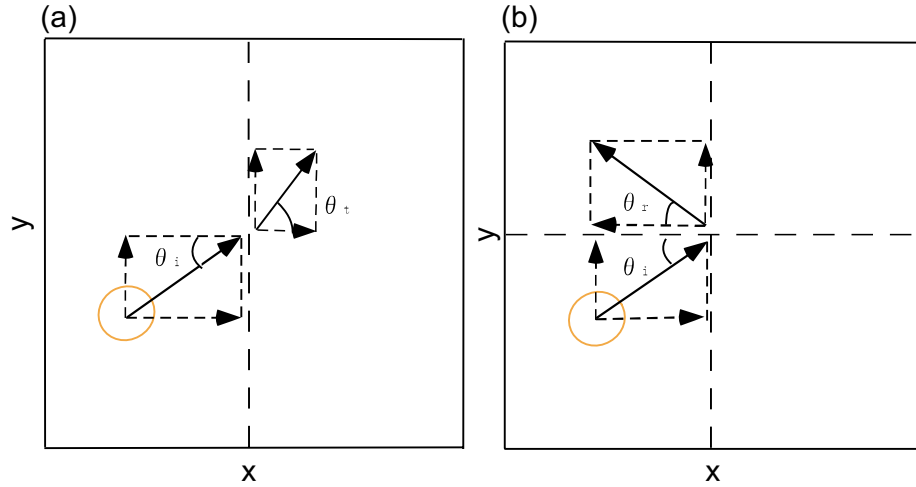


図 B.1 電子波の (a) 屈折, (b) 反射の模式図

表 B.1 電磁波と物質波

物理量	電磁波	物質波
表現関数	$\mathbf{E}$	$\Psi$
支配方程式	$\frac{\partial^2}{\partial t^2} \mathbf{E} = \frac{1}{\mu\epsilon} \nabla^2 \mathbf{E}$	$i\hbar \frac{\partial}{\partial t} \Psi = (-\frac{\hbar^2}{2m} \nabla^2 + V) \Psi$
分散関係	$k^2 = \omega^2 \mu\epsilon$	$k^2 = \frac{2m}{\hbar^2} (E - V)$

### 臨界角

透過波の屈折角が 90 度を超える場合には、電子波は  $E_i - V > 0$  という条件を満たしていたとしても、領域 II へ透過することができなくなる。その条件は式(B.11) から導くことができ、

$$\theta_{ic} = \sin^{-1} \sqrt{(E - V)/E}, \quad E_i - V > 0 \quad (\text{B.12})$$

である。ここで注意すべきことは  $V < 0$  の場合である。この場合屈折角は入射角よりも小さくなるため、臨界屈折角は存在しない。

### 角度を持って入射する電子波の透過率

一次元における階段型ポテンシャルの場合を拡張することで、容易に求めることができる。一次元階段型ポテンシャルにおける透過率、反射率はそれぞれ

$$T = \frac{4k_1 k_2}{(k_1 + k_2)^2} \quad (\text{B.13})$$

$$R = 1 - \frac{4k_1 k_2}{(k_1 + k_2)^2} \quad (\text{B.14})$$

である。電子が角度  $\theta_i$  で、ポテンシャルに入射する場合には、ポテンシャルに対して垂直な方向に対して、上の式が成り立つはずである。垂直な成分をそれぞれ  $k_i^{\text{perp}} = k_i \cos \theta_i$ ,  $k_t^{\text{perp}} = k_t \cos \theta_t$  と書き換えると、その透過率、反射

率は

$$T = \frac{4k_i \cos \theta_i k_t \cos \theta_t}{(k_i \cos \theta_i + k_t \cos \theta_t)^2} \quad (\text{B.15})$$

$$R = 1 - \frac{4k_i \cos \theta_i k_t \cos \theta_t}{(k_i \cos \theta_i + k_t \cos \theta_t)^2} \quad (\text{B.16})$$

と表される。

### B.1.2 数値計算による屈折描像の解析

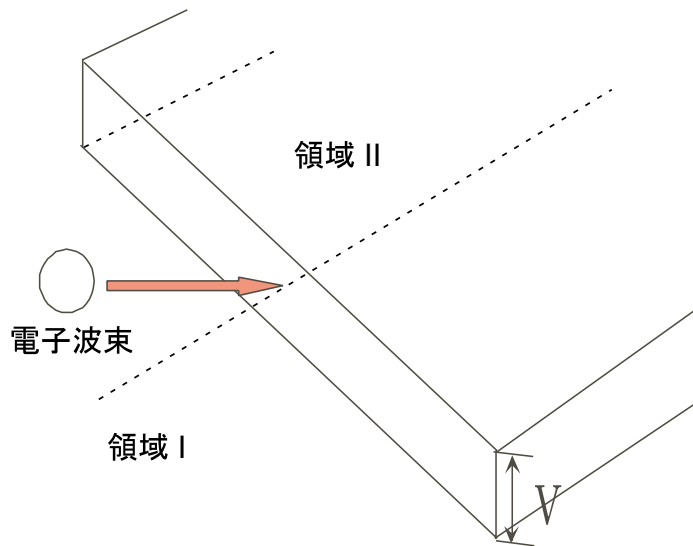


図 B.2 ポテンシャル障壁に対して、角度を持って入射する電子波束の模式図。V はポテンシャルの高さをあらわす。

上での議論を踏まえて、電子波束の屈折について議論していく。一様磁場における電子波束の運動と同様に、電子波束の屈折角を主に波束の位置期待値の軌跡を追うことで調べ、その中で  $k$  空間に分散を持つ波である波束の屈折の特徴を明らかにする。

## ポテンシャルの高さによる屈折角の制御

図 B.3, B.4 は、 $V = 0.2E_0, 0.4E_0$  における電子波束の屈折の様子を数値計算の結果を元に書き出したものである。紙面垂直方向が電子の存在確率を表す。(領域Ⅰでは黄色が濃いほど存在確率が高く、領域Ⅱでは青が濃いほど存在確率が高い)。領域Ⅰから入射する電子波束は、ポテンシャル界面で透過波と反射波に分かれ、反射波は入射波と干渉を起こす(3 枚目)。透過波は、前節で述べた機構によって屈折し、その進行方向は入射角よりも大きくなる方向へ屈折する。(5,6 枚目)

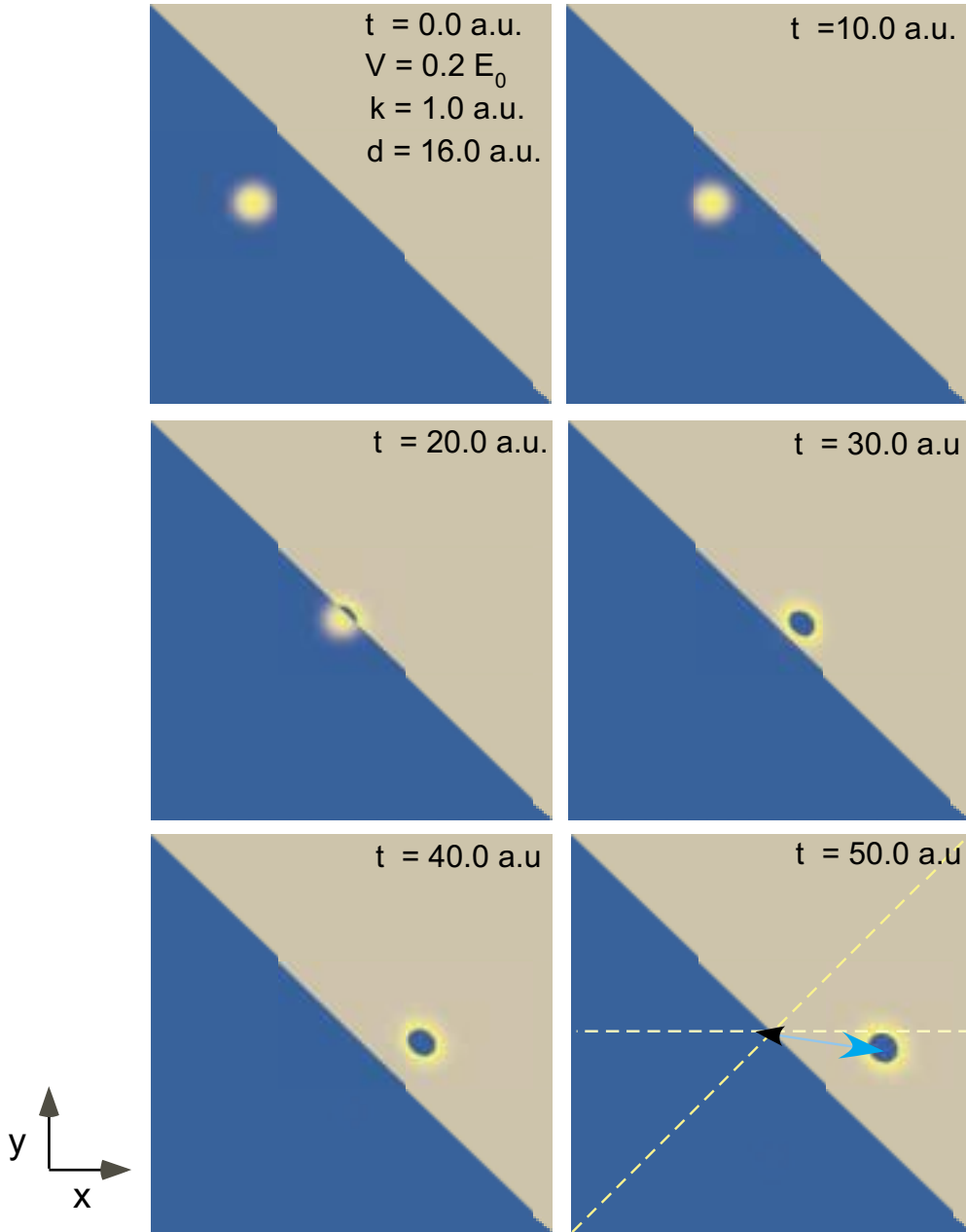


図 B.3 ポテンシャルの高さ  $V = 0.2E_0$  に入射した電子波束の屈折の様子。  $t=10$  a.u. ごとに数値計算結果から求めた電子波束の密度分布を表示。

図 B.5(b) は、解析的に求めた電子波の屈折角と数値計算によって得られた波束の軌跡から求めた屈折角をポテンシャルの高さに対してプロットしたものである。電子波束の入射角は  $\pi/2$  であり、縦軸には  $\sin \theta_1 / \sin \theta_2$  を、横軸には  $V/E_0$  をとっている。電子波束の持つ運動エネルギー  $E_0 = \frac{\hbar^2 k_0^2}{2m}$  に対してポテンシャルの高さを高くしていくと屈折角が徐々に大きくなっていくことが期待されるが、数値計算によってその描像が再現されていることがわかる。しかし、電子波束の屈折角は臨界屈折角付近では平面波によるものとは一致しなかった。これは電子波束が  $k$  空間において波数  $k_0$  を中心としたガウス分布を持つことに起因する。中心波数  $k_0$  が臨界屈折角を満たす条件であったとしてもそれよりも速い成分が存在することにより電子波束自身はポテンシャル障壁内部へ透過波となって侵入し、屈折角を持つ。厳密にいうとどのようなエネルギーを与えた場合でも電子波束の透過率はゼロにはならないが、実質上は

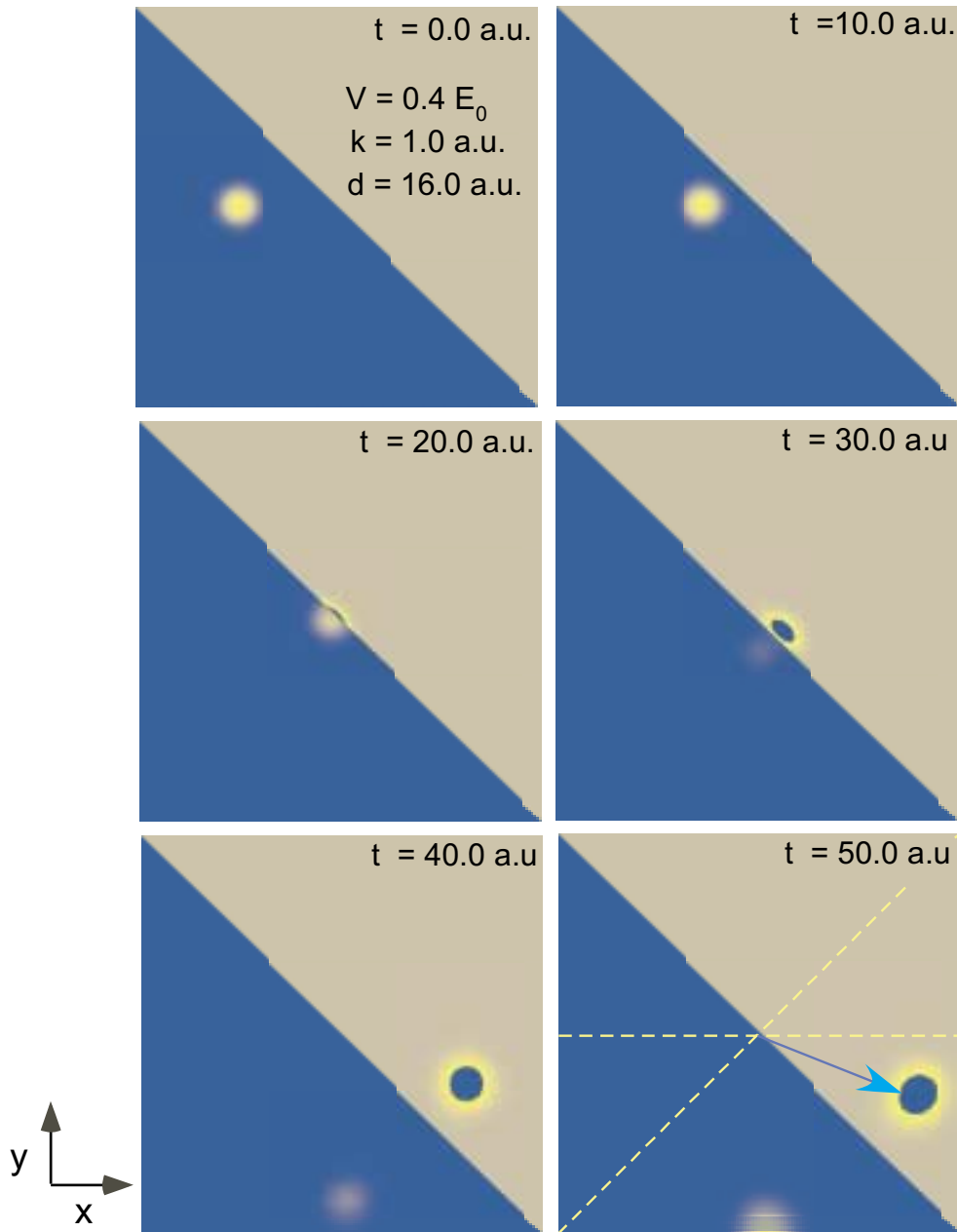


図 B.4 ポテンシャルの高さ  $V = 0.4E_0$  に入射した電子波束の屈折の様子。  $t=10$  a.u. ごとに数値計算結果から求めた電子波束の密度分布を表示。

波束の幅  $d$  における波数成分が臨界角の条件を満たすとほぼ透過は起こらないと見なせる。

### プリズム効果

電子波束の屈折におけるプリズム現象について述べる。空間的に局在した電子波束は、すでに何度も見てきたように実空間での幅  $d$  に応じた分布を  $k$  空間に持つ。電子波の屈折角は電子波のエネルギーに応じて変化するため、電子波束は屈折によって分散を生じる。位相速度の速い成分ほど正のポテンシャルに対する屈折角が浅くなるため、電子波束が屈折する際には位相速度の速い成分は浅い屈折角を持つ一方、遅い成分はより深い屈折角を持つため、その影響が波束の運動に現れる。これは光学における白色光の虹色への分解に対応する現象と考えてよい。図 B.6 はポテン

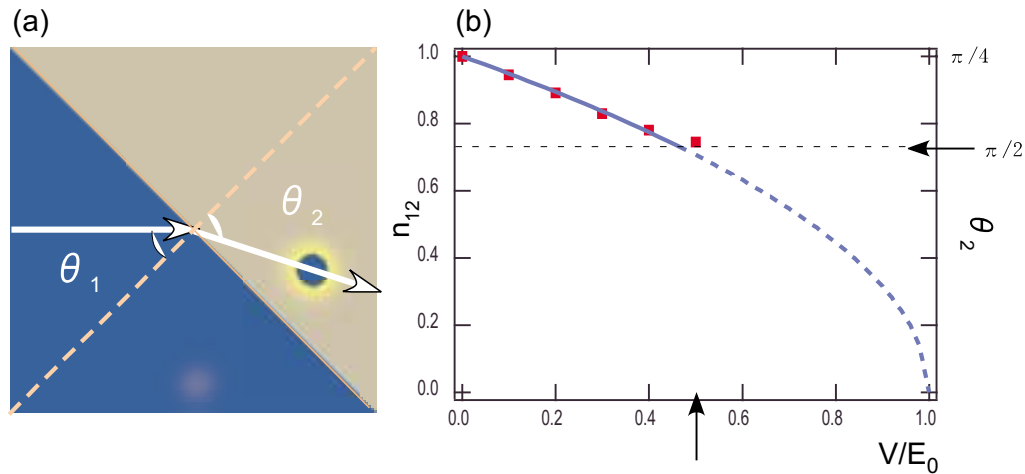


図 B.5 (a) 電子波束の屈折,  $V/E_0 = 0.4$ , (b)  $\pi/2$  で入射する電子波束の屈折角とポテンシャルの高さの関係。角度は電子波の軌跡を調べることによって求めている。矢印で示した点が臨界屈折角を表す。

シャルの高さ  $V = 0.4E_0$  の条件で数値計算した電子波の屈折の様子を図示したものであるが、確かに屈折角の浅い成分が深い部分よりも先行していることがわかる。この現象を利用することで、外場により変調を受けた電子波のエネルギー分布の検出が可能であると考えられる。

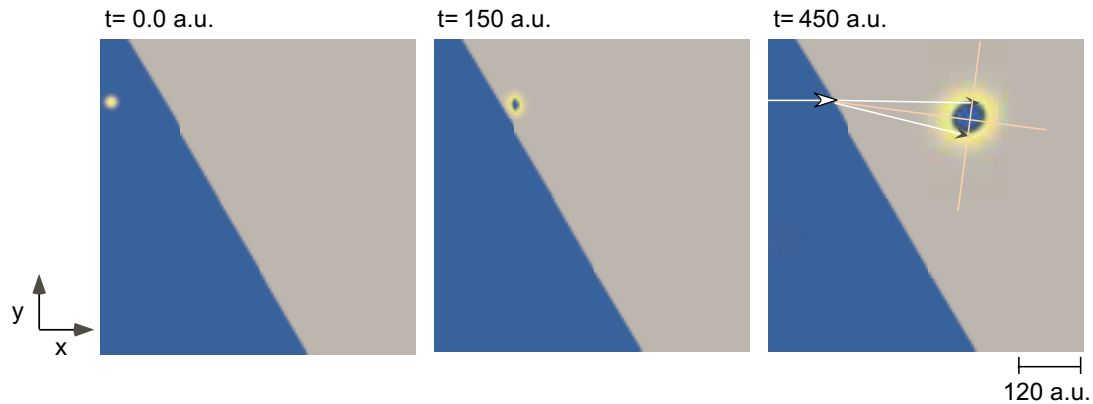


図 B.6 電子波束の屈折による分散。波数分布に応じて、浅く曲がった部分が先行し、深く曲がった部分は遅れる。ポテンシャルの高さは  $0.4E_0$  とした。

電子波束の屈折のまとめ 電子波の屈折について述べ、それに対する電子波束の時間発展と屈折描像を検討した。電子波束においても屈折角をポテンシャルの高さによって制御可能であるということが確かめられたが同時に波束の持つ波数分布に応じて臨海屈折角付近では単一の波数成分とのずれが大きくなることが明らかとなった。実際、波数成分毎に屈折角が異なることから波束がポテンシャル界面において分散を生じ、どのような場合でも波動関数の透過する成分はゼロにはならない。電子波束の運動制御を行う上ではこの点は注意が必要である。これらのことを踏まえて静電量子レンズの設計を行っていく。

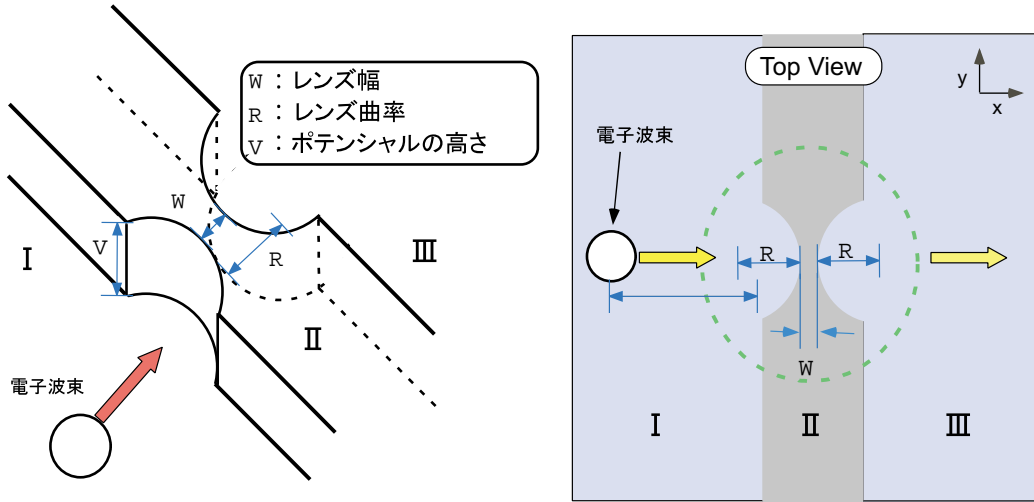


図 B.7 静電量子レンズの模式図。V がポテンシャルの高さ、R がレンズの曲率、W がレンズの幅をあらわす。

### B.1.3 静電量子レンズの設計

電子の屈折を利用したデバイスとして静電量子レンズを考察する。第3章において述べたように、電子波束は時間の二乗に比例して拡がり急激に位置の不確定さを増すが、電子の飛行経路にレンズ型のポテンシャルを挟むことで電子をフォーカシングし、その位置を絞り込むということが提案され、実際に収束が可能であることが示されている<sup>25), 26)</sup>。ところがその動作について、電子波の時間発展の立場からの定量的な解析が十分に行われているとはいえない。ここからは、今まで得られた解析結果を用いて、静電量子レンズの動作原理及びその動作について論じ、レンズの設計を行う。続いて、それらを踏まえて、静電量子レンズに対する電子波束の運動を定量的に評価する。電子波の収束性を高めるためのレンズポテンシャル場の設計指針を与えることを目標とする。

#### レンズ形状

まず最初にレンズの形状について考察する。前節で調べたように、正のポテンシャル場に入射する電子の屈折角は入射角よりも大きくなるほうへ曲がる。これに対応して、電子を収束させるためのレンズ形状は凸型ではなく図 B.7 のような凹型になる。ただし、負のポテンシャルに対する入射に対しては屈折角は入射角よりも屈折角のほうが小さくなり、この場合には凸型をとることが必要であることに注意が必要である。しかし負のポテンシャルを用いた場合、レンズ部分が井戸になってしまうため電荷が溜まりポテンシャル場の形状をゆがめたり、電子間相互作用が無視できなくなるなどの不利な点が多くなってしまふことが考えられる。本研究ではこの点を踏まえて、凹型のレンズポテンシャル場を用いた電子収束を議論する。

#### レンズの焦点

次にレンズの焦点位置を考える。レンズの機能は波を収束させることにあり、その結像位置を知ることは最も重要な課題である。図 B.8 のように、I 点から発した電子が、O 点で結像するような場合を考える。レンズの厚さを  $W$ 、レンズの曲率半径を  $R$ 、入射角を  $\theta_1$ 、屈折角を  $\theta_2$  とすると、I 点から O 点の距離  $L$  は、

$$L = W + \frac{2R}{1 - \theta_1/\theta_2} \quad (\text{B.17})$$

と表される。証明は後述する。ここで、レンズの曲率に対して I 点が十分遠いとなると、 $\theta_1 \simeq \sin \theta_1$  と近似でき、これを上式に代入すると

$$L = W + \frac{2R}{1 - \sin \theta_1 / \sin \theta_2} \quad (\text{B.18})$$

$$= W + \frac{2R}{1 - \sqrt{1 - V/E_0}} \quad (\text{B.19})$$

となる。ただし、 $\sin \theta_1 / \sin \theta_2 = \sqrt{1 - V/E_0}$  という関係を用いている。

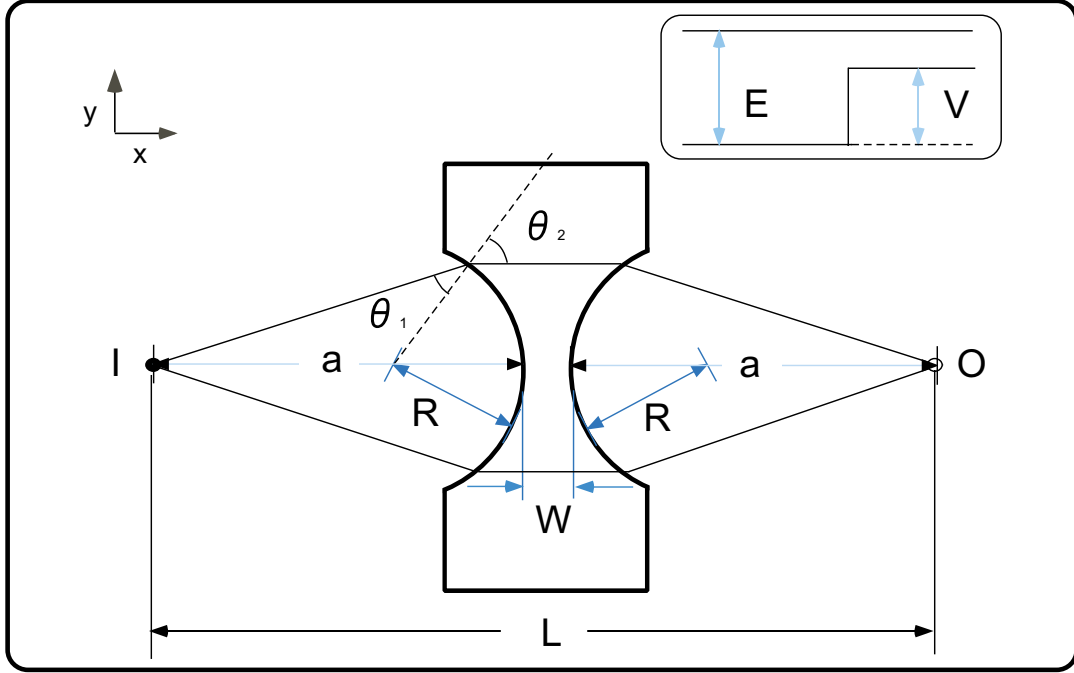


図 B.8 レンズの収束距離。R は曲率、W はレンズの幅、L は収束距離を表す。

焦点距離  $L$  の計算

$$L = W + \frac{2R}{1 - \theta_1/\theta_2} \quad (\text{B.20})$$

を証明する。

図 B.9 のような系を考える。このとき、電子波束がレンズの中心軸付近のみを通過するという仮定を置くと、以下のような関係が成り立つ。

$$a\theta_a \simeq r \quad (\text{B.21})$$

$$b\theta_b \simeq r \quad (\text{B.22})$$

$$R\delta \simeq r \quad (\text{B.23})$$

また、屈折率  $n$  を

$$n = \frac{\sin \theta_1}{\sin \theta_2} \quad (\text{B.24})$$

と定義すると、 $\sin \theta \simeq \theta$  という条件を用いて、

$$n = \frac{\sin \theta_1}{\sin \theta_2} \simeq \frac{\theta_1}{\theta_2} \quad (\text{B.25})$$

と近似できる。これに上の 3 つの式を代入すると

$$\begin{aligned}
 n &\simeq \frac{\theta_1}{\theta_2} \\
 &= \frac{\delta - \theta_a}{\delta - \theta_b} \\
 &= \frac{r/R - r/a}{r/R - r/b}
 \end{aligned} \tag{B.26}$$

となり、変形すると、

$$\frac{1}{R} - \frac{1}{a} = n \left( \frac{1}{R} - \frac{1}{b} \right) \tag{B.27}$$

とできる。ここで、 $b \gg a$  と考えると右辺第二項は無視でき、 $a$  について解いてまとめると、

$$a = \frac{R}{1 - n} \tag{B.28}$$

となる。よって求めたい距離  $L$  は

$$\begin{aligned}
 L &= W + 2a \\
 &\simeq W + \frac{R}{1 - n} \\
 &= W + \frac{R}{1 - \theta_1/\theta_2}
 \end{aligned} \tag{B.29}$$

と表されることがわかる。

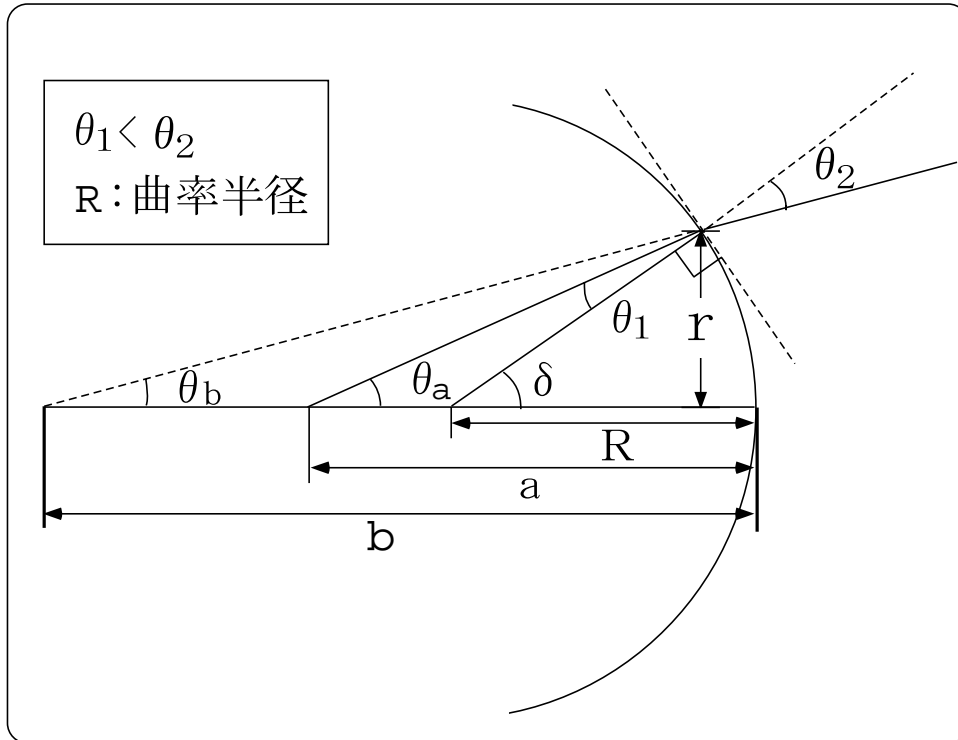


図 B.9 電子波の収束位置の幾何



### B.1.4 静電量子レンズにおける電子波束の運動

前節で述べたように、レンズの結像位置は、レンズ型ポテンシャルの高さと曲率の関数として決まることが期待される。レンズの用途にもよるが、電子の弾道的運動が許される平均弾性散乱長やデバイスの小型化を考えたときに電子をできるだけレンズの近くに収束できるのが望ましい。ここからは、より近い位置に電子を収束させることを当面の目的として設計を進めていく。

**電子波束の収束に対する注意点** 前節では主に単一の波数成分について考えてきたが電子波束の場合では多くの波数成分を含むことに対応して、電子波束を一点に集束させることはできないと考えられる。レンズを通過した後の電子波束は波数成分ごとに集束点が異なるためにレンズ垂直方向に細長くなることが予想される。この点に注意してレンズ動作の確認を行った。

#### レンズによる収束の確認

最初に、レンズ型ポテンシャルによる電子波束の収束を示すために、レンズの曲率を  $R = 30$  a.u.、入射波束に対するポテンシャルの高さを  $V = 0.4E_0$  に設定し、電子波束の動的過程を調べた。図 B.10、B.11 は上記の条件で電子波束の時間発展計算を行い電荷密度分布をプロットした結果である。電子波束がレンズ型ポテンシャルを通過したことによって確実に収束されていることがわかる。電子波はポテンシャル界面で透過波と反射波に分かれ、透過波が確かにレンズ領域で屈折することによって図右側の領域で絞り込まれている。また反射波も入射した領域で収束していることが理解される。

ここで設定したレンズの条件に対する実像と結像との距離  $L$  は前節の式から  $L \simeq 98$  a.u. であることが期待される。しかし、数値計算の結果は予想された位置で結像を結ぶことができていないことを示している。レンズに対して垂直な方向への広がり、レンズによって制御できない部分なのでしかたがないものであるが、横方向への広がりが初期波束のものよりも小さくなってしまっているのは問題である。このような結果になった理由はレンズ曲率が小さすぎたために収差が大きくなってしまったということと、入射波が透過波と反射波に分かれてしまったために、見かけ上水平方向に結像しなくなってしまっているということが考えられる。このことから、電子波束に像を結ばせるのは難しいかもしれないが少なくとも、波束そのものの密度を絞り込むことは可能であることが明らかになった。電子波の収束を考えたときに、重要なのはどれだけ電子波を絞り込むことができるかということであり、光学レンズ系のようにきれいな像を結ばせたい場合とは基本的に立場が異なることを踏まえるとこれは満足すべき結果であるといえる。

#### ポテンシャルの高さとレンズの収束能率

ここではポテンシャルの高さによって実際に電子波の収束位置を変化できることを確かめる。図 B.12 は、レンズ型ポテンシャルに電子波束を入射させた場合の、ポテンシャル通過後における電子の存在確率を図示したものである。ポテンシャルの高さ  $0.1E_0$ 、 $0.6E_0$ 、 $0.8E_0$  の条件でそれぞれ計算を行った。上と同様、レンズの曲率は  $30$  a.u.、入射電子波束には幅  $d=8$  a.u.、波数  $k=1$  a.u. を与えた。

**透過率と収束率の関係** 電子の存在確率の水平な方向への広がりを見ると、ポテンシャルが高いほど、よりレンズに近い距離に電子波束を絞り込めていることがわかる。しかし、その高さに着目すると、ポテンシャルが高くなりすぎた場合、電子の透過率は減少するためレンズによって絞り込まれた電子の存在確率のピークは低くなってしまうことが理解される。これはデバイスの性能という観点から見たときに入射した電子に対して応答として得られる電子が少ないということであり、問題である。また反射波もレンズ作用により狭い領域に絞り込まれてしまうという問題点もある。以上の考察から、レンズ型ポテンシャルの性能を考える上で電子の透過率も焦点位置と並んで非常に重要な

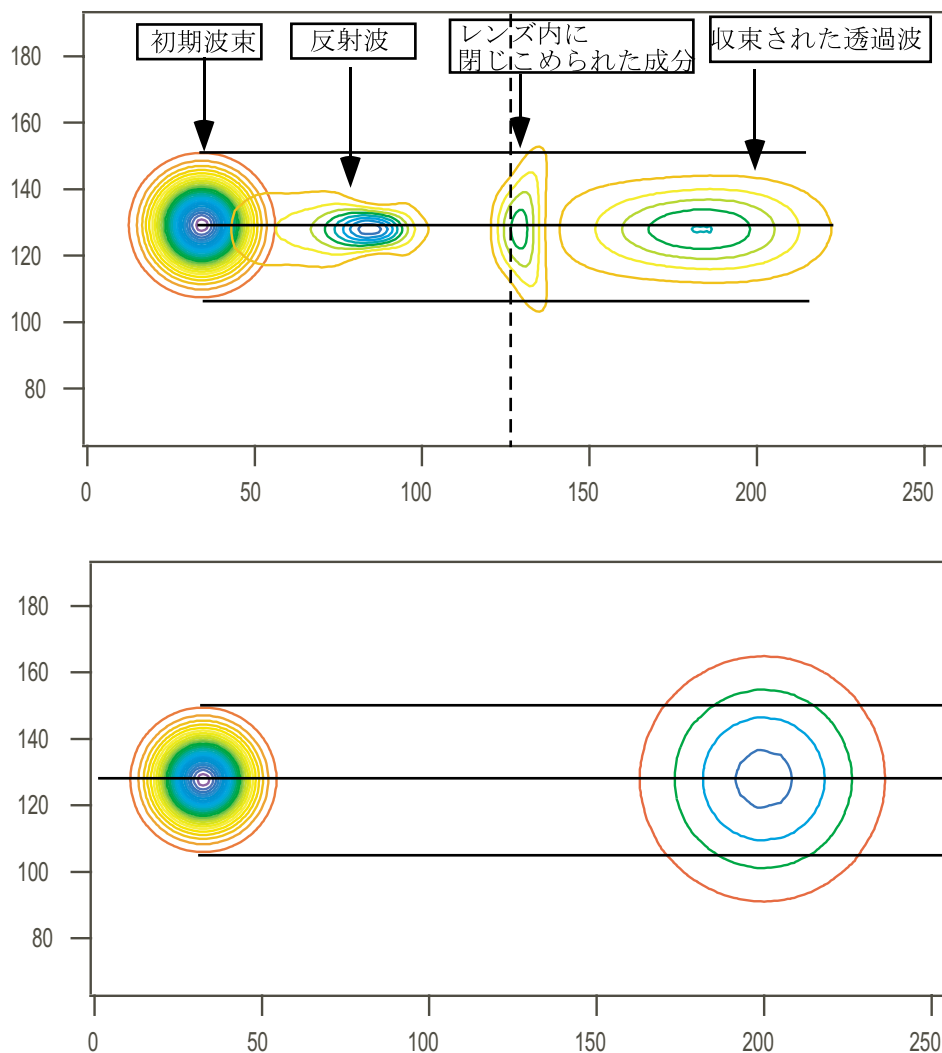


図 B.10 波束の密度分布の等高線プロット。ポテンシャルの高さ  $V = 0.4E_0$  のレンズへ突入した場合（上）とレンズが存在しない場合（下）。レンズの曲率は  $R = 30$  a.u. とした。

要素であることがいえる。すでに明らかにしたように、この2点は互いに相反する条件である。透過率を高くしようとすると、ポテンシャルを低くしなくてはならず、逆に焦点位置を近くしようとすればポテンシャルは高くなくてはならない。以下ではレンズ性能の評価として、収束位置の近さと透過率という二点に着目して解析を行っていきたい。

#### 透過モード

レンズ型ポテンシャルを電子波が透過する際の透過モードについて考える。レンズ型ポテンシャルへの波束の入射ということ考えたとき、それは電子波がある角度を持ってポテンシャル界面へ突入することであり、これについてはすでに論じた。電子波の透過率はポテンシャル面へ垂直な成分とポテンシャルの高さの関係によって決まり、一次元の箱形ポテンシャルに対する電子波の透過を考えることと同等である。箱形ポテンシャルに対する透過モードは通常の透過の他に、共鳴による透過、トンネルによる透過の3種類が存在した。今考えているのは、電子波束の運動エネルギーがポテンシャルよりも大きい場合であり、トンネルによる透過はこの場合ほとんど無視できる。また共鳴についてもその寄与は、透過率の大きい領域ではほとんど問題にならない。よって、レンズ型ポテンシャル

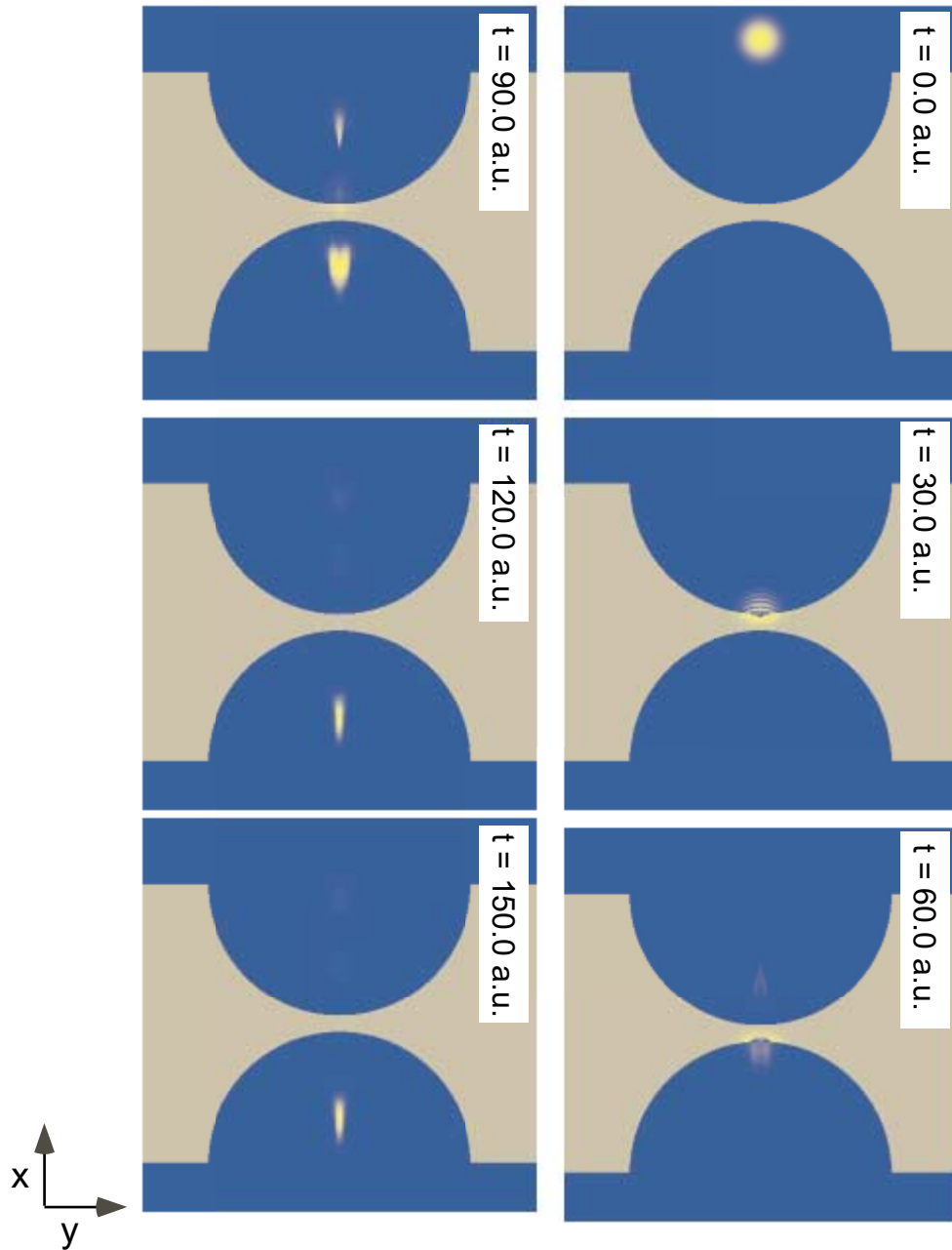


図 B.11  $t=10$  a.u. ごとに切り出した電子波束の収束過程。  $V = 0.4E_0$

に対する透過を考える際には基本的には通常の透過のみを考えればよいことがわかる。

### B.1.5 傾斜型ポテンシャルによるレンズ性能の改善

ここではレンズにおける透過率と収束位置の問題を解決するために傾斜型ポテンシャルの導入によるレンズ性能の改善を議論する。ポテンシャル界面に傾斜が存在する場合、電子波の透過率は傾斜がない場合に比べて大きくなる。これは古典的粒子における力積の概念で説明できた。また、以下での述べるように電子波の屈折角はポテンシャルの高さが同じであれば途中で傾斜があるなしにかかわらず一定である。この二つの要素を考慮し、静電量子レンズのポ

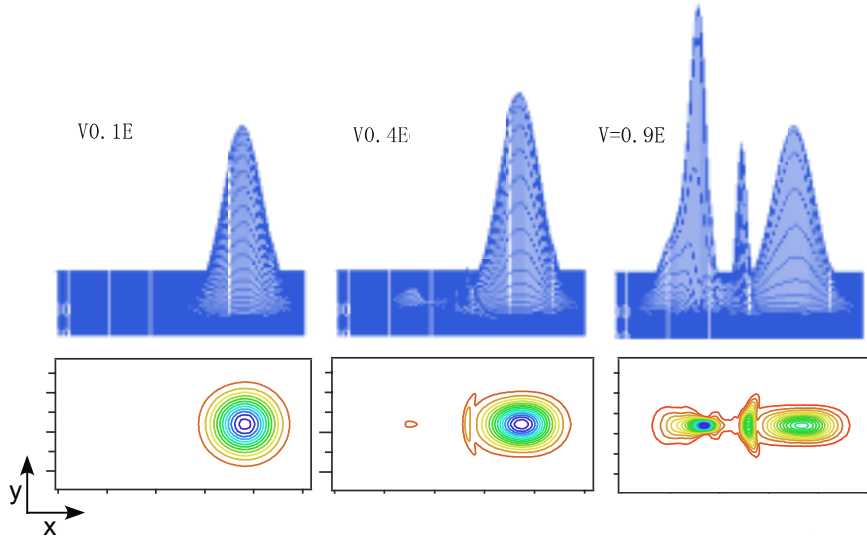


図 B.12 レンズ通過後における電子波束の密度分布の比較。左から  $V = 0.1E_0$ ,  $V = 0.4E_0$ ,  $V = 0.9E_0$

テンシャル高さ、曲率、その他のパラメーターを固定し、ソース、ドレイン各領域との界面に傾斜をつけることで、電子波束は焦点位置を保存したまま透過率のみを増量させることが可能であると考えた。

傾斜として以下のような形のポテンシャルを採用した。

$$V(x) = \frac{V}{1 + \exp(-x/a)} \quad x < 0 \quad (\text{B.30})$$

$$V(x) = \frac{V}{1 + \exp(x/a)} \quad x > 0 \quad (\text{B.31})$$

ここで  $a$  は傾斜の緩急を決めるパラメーターであり、 $a$  が大きいほど傾斜は緩やかになる。本研究では  $a=0.25$  a.u. を採用した。

#### 傾斜型ポテンシャル場に対する電子の透過率

図 B.13 は箱形ポテンシャルと傾斜をつけた箱形ポテンシャルにおける電子波束の透過率を比較したものである。すべてのポテンシャル高さにおいて傾斜付きのほうがなしのものよりも透過率が高くなっていることがわかる。またこの結果を見ると最も差が顕著となる領域が  $V = 0.6E$  付近であることがわかる。(ただしこれは系の設定によって変動し、どの条件でも普遍的に定まるものではないことに注意。)

#### 傾斜のあるポテンシャル場に対する電子波の屈折

ここではポテンシャルの高さが連続的に変化する場合の電子波の屈折を扱う。領域 I から領域 II へ電子波が入射する場合の屈折の法則は水平方向への運動量の保存を表す式

$$k_1 \sin \theta_1 = k_2 \sin \theta_2 \quad (\text{B.32})$$

から導かれるのであった。ポテンシャルが連続的に変化する場合、電子波のポテンシャルに対して垂直な成分はポテンシャルの高さに応じて連続的に変化し、電子波の進行方向も連続的に変化していくことが予想される。

次々とポテンシャルの高さが変化していくような階段状の系を考えることで、傾斜を上る電子波の屈折を考察する。まず各領域において電子波の水平方向成分は保存するので

$$k_1 \sin \theta_1 = k_2 \sin \theta_2 = \dots = k_n \sin \theta_n = Q \quad (\text{B.33})$$

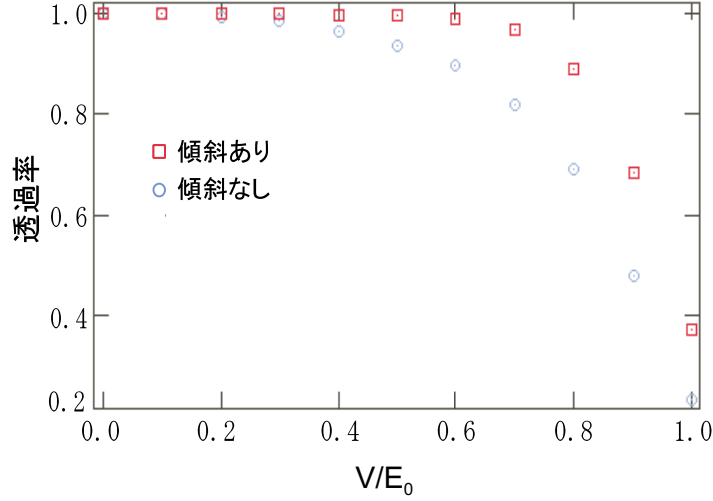


図 B.13 傾斜型ポテンシャルと傾斜なしポテンシャルにおける電子波束の透過率の比較。  $a = 0.25$  a.u.

とおける。ここで  $Q$  は定数であり、初期エネルギーを与えることで決まる。次に図で表したように

$$\frac{\partial x_i}{\partial y_i} = \tan \theta_i \quad (\text{B.34})$$

である。ここで  $\tan \theta_i$  を  $\sin \theta_i$  で表すことによって

$$\frac{\partial x_i}{\partial y_i} = \frac{Q}{\sqrt{k_i^2 + Q^2}} \quad (\text{B.35})$$

とできる。最後にこの式の両辺を積分すると

$$x = \int_{y_0}^y \frac{Q}{\sqrt{k_i^2 + Q^2}} dy \quad (\text{B.36})$$

となつて、傾斜が連続的に変化する場合の電子波の軌跡を求めることができた。結果としては、傾斜のあるポテンシャル壁に電子波が入射した場合には、傾斜の存在によってその軌道は階段型よりもゆっくりと変化するが、入射領域でのポテンシャルの高さと透過領域でのポテンシャルの高さが等しければ傾斜のあるなしにかかわらず、最終的な屈折角には変化はないということがわかった。そのためレンズを考える場合に傾斜があるなしに関わらず、その焦点の位置は変化しないと考えられる。

#### 界面傾斜型静電量子レンズに対する電子波束の収束性

図 B.14 は  $V = 0.6E$  における静電量子レンズを通過した電子波束の密度分布  $t=100$  a.u. をプロットしたものである。左が傾斜のある場合、右がない場合である。両者を比較するとわかるように傾斜のあるなしにかかわらずその収束位置は変化せず、これに対して透過率は傾斜がある場合に著しく増加していることがわかる。図には示していないが他の条件でも同様の結果を得ることができた。

以上の結果からポテンシャル界面の形状を緩やかに変化させることによって、デバイスとしての静電量子レンズの性能を高められる可能性を示すことができた。

#### まとめ

レンズ型ポテンシャルへの電子波束の入射を定量的に解析した。その結果、電子波が凹型レンズによって確かに収束することを示し、その中でデバイスとしての性能を評価する際には、収束位置の他に透過率の問題も併せて考慮す

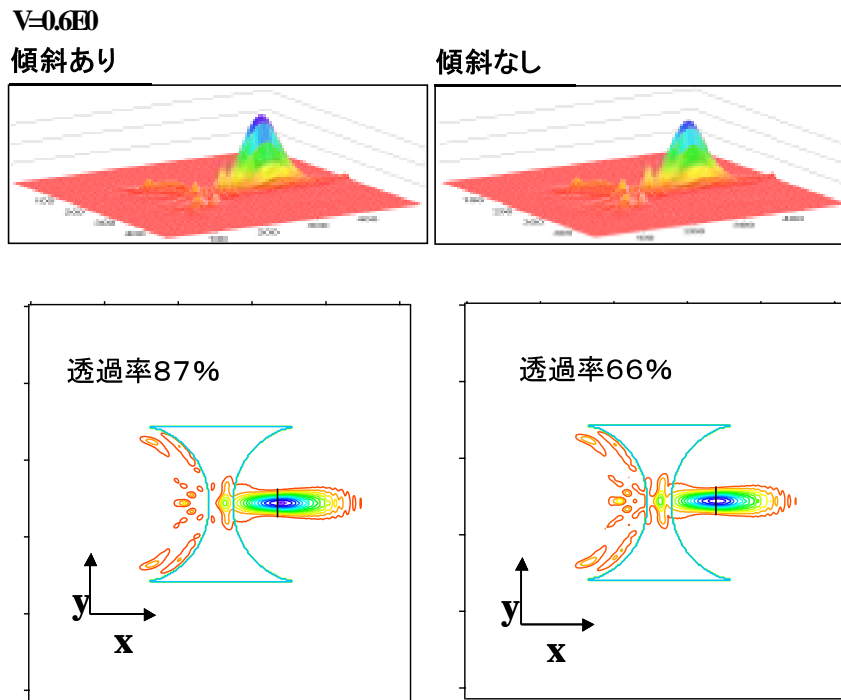


図 B.14  $V = 0.6E_0$  における静電量子レンズを通過した電子波束の密度分布  $t=100$  a.u.. 左が傾斜のある場合、右がない場合。

る必要があることを明らかにした。

**屈折** 電子波の屈折に対しては、物質波と光との屈折法則の違いが両者の支配方程式の時間微分に対する次数に起因した分散関係の違いによるものであることを明確化し、続いて波束の運動に対する屈折法則を検討した。その結果、屈折角がポテンシャルの高さを変化させることによって制御可能であるということが確かめられた。また電子波束の持つ  $k$  空間での波数分布によって波束がポテンシャル界面において分散を生じ、群速度に基づいて決めた臨界屈折角の期待値からずれることが明らかとなった。

**レンズ** 電子波束の屈折の検討によって得られた結果を基に静電量子レンズの設計を行い、静電量子レンズに対する電子波束の時間発展を調べた。その結果、屈折法則の違いから電子波が凹型レンズによって確かに収束することを、レンズ型ポテンシャルへの電子波束の入射を解析した結果からも示すことに成功した。また、電子波束の収束位置を考えた結果、ポテンシャルの高さを変化させることにより収束位置を制御できることも同時に明らかになった。さらにデバイスとしての性能を評価する際には、収束位置の他に透過率の問題も併せて考慮する必要があることを指摘し、ポテンシャル界面の形状に傾斜をつけることで収束位置を変えることなく透過率のみを増大出来ることを見出した。

## 付録 C

# Lanczos 法を用いた大行列の対角化

Lanczos 法を用いた大行列の対角化について述べる。Lanczos 法は大次元の実対称行列の最低固有値からいくつかの固有値を求める数値計算手法である。与えられた  $n$  次元の実対称行列  $A$  を Krylov 部分空間へ射影することにより三重対角行列へ変換する。このとき変換を途中で打ち切ってきた小さな三重対角行列に対する最低の固有値が元の行列の固有値のよい近似になっているという特徴があり、この性質から大行列を対角化する際によく使われる。

方法 まず、規格化された適当な  $n$  次元ベクトル  $\mathbf{u}_1$  を用意し、これに行列  $A$  を作用させ  $A\mathbf{u}_1$  を作る。この新しくできたベクトルは以下のように表すことが出来る。

$$A\mathbf{u}_1 = \alpha_1\mathbf{u}_1 + \beta_1\mathbf{u}_2 \quad (\text{C.1})$$

ここで  $\mathbf{u}_2$  は  $\mathbf{u}_1$  と直交する規格化されたベクトルである。このとき係数  $\alpha, \beta$  は以下の式で求められる。

$$\alpha_1 = \mathbf{u}_1^t (A\mathbf{u}_1) \quad (\text{C.2})$$

$$\beta_1 = \sqrt{(A\mathbf{u}_1 - \alpha_1\mathbf{u}_1)^t (A\mathbf{u}_1 - \alpha_1\mathbf{u}_1)} \quad (\text{C.3})$$

ただし、 $\alpha_1$  は  $A\mathbf{u}_1$  のうちの  $\mathbf{u}_1$  成分を取り出す操作によって求められ、 $\beta$  は  $A\mathbf{u}_1$  から  $\mathbf{u}_1$  成分を取り除いた成分の絶対値を求めることで得られる。またベクトル  $\mathbf{u}_2$  は

$$\mathbf{u}_2 = \frac{A\mathbf{u}_1 - \alpha_1\mathbf{u}_1}{\beta_1} \quad (\text{C.4})$$

から求められる。

次に  $A\mathbf{u}_2$  を考える。このベクトルは  $\mathbf{u}_1, \mathbf{u}_2$  に直交するベクトル  $\mathbf{u}_3$  を用いて以下のように表せる。

$$A\mathbf{u}_2 = \beta_1\mathbf{u}_1 + \alpha_2\mathbf{u}_2 + \beta_2\mathbf{u}_3 \quad (\text{C.5})$$

$\mathbf{u}_1$  の係数が  $\beta_1$  に等しいことは実際に上の式に左から  $\mathbf{u}_1^t$  を作用させたものと、 $\beta_1$  の二乗の両方を計算して確かめることが出来る。

$$\mathbf{u}_1^t A\mathbf{u}_2 = \frac{(\mathbf{u}_1^t A)(A\mathbf{u}_1 - \alpha_1\mathbf{u}_1)}{\beta_1} \quad (\text{C.6})$$

$$\beta_1^2 = (A\mathbf{u}_1 - \alpha_1\mathbf{u}_1)^t (A\mathbf{u}_1 - \alpha_1\mathbf{u}_1) \quad (\text{C.7})$$

$$= (A\mathbf{u}_1)^t (A\mathbf{u}_1) - (A\mathbf{u}_1)^t \alpha_1\mathbf{u}_1 - \alpha_1\mathbf{u}_1^t (A\mathbf{u}_1) + \alpha_1^2 \mathbf{u}_1^t \mathbf{u}_1 \quad (\text{C.8})$$

$$= (A\mathbf{u}_1)^t (A\mathbf{u}_1 - \alpha_1\mathbf{u}_1) \quad (\text{C.9})$$

行列が実対称だということがここで使われている。また  $\alpha_2, \beta_2$  および  $\mathbf{u}_3$  はそれぞれ以下のようにして求められる。

$$\alpha_2 = \mathbf{u}_2^t A\mathbf{u}_2 \quad (\text{C.10})$$

$$\beta_2 = \sqrt{(A\mathbf{u}_2 - \beta_1\mathbf{u}_1 - \alpha_2\mathbf{u}_2)^t (A\mathbf{u}_2 - \beta_1\mathbf{u}_1 - \alpha_2\mathbf{u}_2)} \quad (\text{C.11})$$

$$\mathbf{u}_3 = \frac{A\mathbf{u}_2 - \beta_1\mathbf{u}_1 - \alpha_2\mathbf{u}_2}{\beta_2} \quad (\text{C.12})$$

以下同じ手続きを踏むと

$$A\mathbf{u}_i = \beta_{i-1}\mathbf{u}_{i-1} + \alpha_i\mathbf{u}_i + \beta_i\mathbf{u}_{i+1} \quad (\text{C.13})$$

を満たす新しいベクトル  $\mathbf{u}_{i+1}$ , 係数  $\alpha_i, \beta_i$  を以下の式から決めることができる。

$$\alpha_i = \mathbf{u}_i^t A \mathbf{u}_i \quad (\text{C.14})$$

$$\beta_i = \sqrt{(A\mathbf{u}_i - \beta_{i-1}\mathbf{u}_{i-1} - \alpha_i\mathbf{u}_i)^t (A\mathbf{u}_i - \beta_{i-1}\mathbf{u}_{i-1} - \alpha_i\mathbf{u}_i)} \quad (\text{C.15})$$

$$\mathbf{u}_i = \frac{A\mathbf{u}_i - \beta_{i-1}\mathbf{u}_{i-1} - \alpha_i\mathbf{u}_i}{\beta_i} \quad (\text{C.16})$$

ここで  $A\mathbf{u}_i$  を3つの成分で表せるのは係数やベクトルの作り方から明らかである。このようにして得られた係数から三重対角行列を作ることができる。

$$A = \begin{pmatrix} \alpha_1 & \beta_1 & 0 & & \\ \beta_1 & \alpha_2 & \beta_2 & 0 & \\ 0 & \beta_2 & \alpha_3 & \beta_3 & 0 \\ & 0 & \beta_3 & \ddots & \ddots \\ & & & \ddots & \ddots \end{pmatrix} \quad (\text{C.17})$$

これは行列  $A$  の元の基底ベクトルに変えて  $\mathbf{u}_i$  を基底ベクトルにした表現とすることができる。ここで重要なのは三重対角行列への変換を途中で打ち切ったときに出来ている小さな三重対角行列の固有値が元の行列に対する近似解になっているということである。

近似解について 三重対角行列化の作業を  $m$  回行ったときに新しく張った基底ベクトル  $\mathbf{u}_i$  に十分多くの本来の固有ベクトル成分が含まれていればよい近似であることが期待できる。まず  $\mathbf{u}_1$  を本来の固有ベクトル  $\{\mathbf{x}_i\}$  で展開すると

$$\mathbf{u}_1 = c_1\mathbf{x}_1 + c_2\mathbf{x}_2 + \cdots \quad (\text{C.18})$$

とできる。これに  $A$  を  $m$  回作用すると

$$A^m\mathbf{u}_1 = c_1\lambda_1^m\mathbf{x}_1 + c_2\lambda_2^m\mathbf{x}_2 \quad (\text{C.19})$$

となつて、もし固有値の列が

$$\lambda_1 < \lambda_2 < \lambda_3 < \cdots \quad (\text{C.20})$$

となつていてかつ

$$|\lambda_1| > |\lambda_2| > |\lambda_3| > \cdots \quad (\text{C.21})$$

であるならばベクトル  $\mathbf{u}_i$  の張る空間に十分固有ベクトルが含まれていることが期待できる。どこまで行列を取ると十分であるかについては、実際に数値計算における行列の打ち切り次数を上げていき、固有値の値が収束する次数を見積もる必要がある。またこれらの次数は初期ベクトルの選び方にも依存することに注意が必要である。

二次元箱形ポテンシャルへの適用 Lanczos 法を二次元正方形ポテンシャルに適用することで計算精度の評価を行った。原子単位系をとり、系の大きさ  $L$  を 2 a.u. とした。このとき箱形ポテンシャルに閉じこめられた一電子の固有状態を求めることを行った。解くべき方程式は

$$-\frac{\hbar^2}{2m}\left(\frac{\partial}{\partial x^2} + \frac{\partial}{\partial y^2}\right)\psi(x, y) = \epsilon\psi(x, y) \quad (\text{C.22})$$



である。この固有値方程式の固有関数と固有値は

$$\psi(x, y) = \sqrt{\frac{4}{d_x d_y}} \sin\left[\frac{n_x \pi}{L_x}\right] \sin\left[\frac{n_y \pi}{d_y}\right] \quad (\text{C.23})$$

$$\epsilon_{n_x, n_y} = \frac{\hbar^2}{2m} \left[ \left( \frac{\pi n_x}{L_x} \right)^2 + \left( \frac{\pi n_y}{L_y} \right)^2 \right] \quad (\text{C.24})$$

であり、基底状態の固有値の値は  $L_x = L_y = 2.0$  a.u. として、2.4674011 a.u. である。これに対して、上の固有値方程式を実空間基底で表示し Lanczos 法を用いて対角化を行うことを試みた。実空間基底における 2 次元のハミルトニアンはかなり簡単な形を持つが、一方向の刻み数を  $N$  とするとハミルトニアンは  $N^2 \times N^2$  と  $N$  の 2 乗に比例して次元が増大する。これに対して、Lanczos 法を使った場合の打ち切り行列の次数と精度の関係を評価したのが表 C.1 である。

表 C.1  $L = 2$  a.u の二次元量子井戸の固有エネルギー

N	行列の打ち切り次数 p	基底状態のエネルギー
理論値		2.4674
16	16	2.1794
16	8	2.1794
32	32	2.3184
32	16	2.3184
64	32	2.3916
64	16	2.3916
128	64	2.4291
128	32	2.4291
256	64	2.4482
256	32	2.4482
256	16	6.40589
512	38	2.4578
512	32	2.4626
512	16	25.6235

Lanczos 法による三重対角化行列の次数  $p$  を変えて計算を行い、値が動かなくなった次数を調べた。

基本的には  $N$  が大きくなるほど打ち切り数をあげていかなくてはならないという結果が得られた (表 C.1)。また、ここには示していないが、初期ベクトルの選び方によっても必要な次数は変化した。さらに、今回評価したのは箱形ポテンシャルであるが、ポテンシャルの形状によっても結果が変わってくることが期待され、第一励起状態を評価する場合には条件はさらに厳しくになり、行列の打ち切り次数についてはその都度評価する必要がある。

## 付録 D

# Dressed 状態

電磁場を量子化し、二準位回転波近似の下でのハミルトニアンを与え、Dressed 状態を導出する。

ハミルトニアンの導出 二準位回転波近似の下での単一モードとの相互作用項を含むハミルトニアンを

$$H = \frac{1}{2}\hbar\omega_{ab}\sigma_z + \hbar\omega_{ab}a^\dagger a - \frac{1}{2}\hbar R_a b(a\sigma_+ + a^\dagger\sigma_-) \quad (\text{D.1})$$

とおけることを示す。

電気双極子近似のもとで全系のハミルトニアンは

$$H = H_A + H_F + H' \quad (\text{D.2})$$

$$H_A = \sum_i E_i |i\rangle\langle i| \quad (\text{D.3})$$

$$H_F = \sum_k \hbar\omega_k (a_k^\dagger a_k + \frac{1}{2}) \quad (\text{D.4})$$

$$H' = -e \cdot \mathbf{r} \cdot \mathbf{E} \quad (\text{D.5})$$

で与えられる。ここで  $|i\rangle$  はエネルギー固有値  $E_i$  を持つ電子系の  $i$  番目の固有状態、 $\mathbf{r}$  はポテンシャルの中心からの電子の位置座標をあらわす。まず相互作用部分について考えるとそれは電子系へ作用する  $e\mathbf{r}$  と電磁場に作用する部分  $\mathbf{E}$  に分けられる。演算子  $e\mathbf{r}$  を固有関数を用いて書くと次のように与えられる。

$$e\mathbf{r} = \sum_{i,j} e|i\rangle\langle i|\mathbf{r}|j\rangle\langle j| = \eta_{i,j}\sigma_{i,j} \quad (\text{D.6})$$

ここで  $\eta_{i,j}$  は電気双極子遷移の遷移行列要素、 $\sigma_{i,j}$  は状態を  $j$  から  $i$  へ変換する状態変換演算子である。一方、電場  $E$  は電子系の原点が固定されているとして

$$\mathbf{E} = \sum_k e_k \mathbf{E}_k (a_k + a_k^\dagger) \quad (\text{D.7})$$

と表せる。ここで電磁場を直線偏光としてまとめると

$$H' = \hbar \sum_{i,j} \sum_k g_k^{i,j} \sigma_{i,j} (a_k + a_k^\dagger) \quad (\text{D.8})$$

となる。ただし、 $g_k^{i,j} = -\frac{\eta_{i,j} \cdot e_k \mathbf{E}_k}{\hbar}$  とした。

二準位系に適用 上で考えたハミルトニアンを二準位系に対するものへ書き換える。基底状態を  $|g\rangle$ 、励起状態を  $|e\rangle$  とおき、それぞれのエネルギーを  $\hbar\omega_g, \hbar\omega_e$  とすると

$$\begin{aligned} H_A &= \hbar\omega_g|g\rangle\langle g| + \hbar\omega_e|e\rangle\langle e| \\ &= \frac{1}{2}\hbar(\omega_g + \omega_e) + \frac{1}{2}\hbar\omega_{eg}\sigma_z \end{aligned} \quad (\text{D.9})$$

$$H' = \hbar \sum_k g_k (\sigma_+ + \sigma_-)(a_k + a_k^\dagger) \quad (\text{D.10})$$

となる。ここで  $\omega_{eg} = \omega_e - \omega_g$ 、

$$\sigma_z = |e\rangle\langle e| - |g\rangle\langle g|, \quad \sigma_+ = |e\rangle\langle g|, \quad \sigma_- = |g\rangle\langle e| \quad (\text{D.11})$$

である。

相互作用ハミルトニアン  $H'$  を展開すると4つの項があらわれるがこのうち  $a_k^\dagger \sigma_+$  と  $a_k \sigma_-$  の項はそれぞれ電磁場の光子を一個増やして（減らして）電子系の状態を基底（励起）から励起（基底）状態へ遷移させる場合に相当する。これら二つの項はエネルギー保存則より起こる確率が非常に小さいとして表式から削除できる。これを回転波近似という。この近似のもとで  $H'$  は

$$H' = \hbar \sum_k g_k (\sigma_+ a_k + a_k^\dagger \sigma_-) \quad (\text{D.12})$$

となる。すると全系のハミルトニアンはエネルギーの定数項をのぞいて

$$H = \frac{1}{2}\hbar\omega_{eg}\sigma_z + \sum_k \hbar\omega_k (a_k^\dagger a_k) + \hbar \sum_k g_k (\sigma_+ a_k + a_k^\dagger \sigma_-) \quad (\text{D.13})$$

と与えられる。ここで、レーザー場が単一モードであると仮定するとハミルトニアンはさらに簡単に表すことが出来、

$$H = H_0 + H_1 \quad (\text{D.14})$$

$$H_0 = \frac{1}{2}\hbar\omega_{eg}\sigma_z + \hbar\omega a^\dagger a \quad (\text{D.15})$$

$$H_1 = \hbar g (\sigma_+ a + a^\dagger \sigma_-) \quad (\text{D.16})$$

となる。相互作用表示

$$\begin{aligned} H_I &= e^{iH_0 t/\hbar} H_I e^{-iH_0 t/\hbar} \\ &= \hbar g (\sigma_+ a e^{i(\omega_{eg}-\omega)t} a^\dagger \sigma_- e^{-i(\omega_{eg}-\omega)t}) \end{aligned} \quad (\text{D.17})$$

を取ると単一モードと二準位系との相互作用の問題は

$$i\hbar \frac{\partial \psi_I(t)}{\partial t} = H_I \psi_I(t) \quad (\text{D.18})$$

$$\psi_I(t) = e^{iH_0 t/\hbar} \psi(t) \quad (\text{D.19})$$

を解く問題に帰着する

## Dressed 状態

レーザー光などの強い光電場が原子の共鳴周波数付近に存在する場合を考える。上で見たように単一モードと二準位系との相互作用は

$$H = \frac{1}{2}\hbar\omega_{eg}\sigma_z + \hbar\omega(a^\dagger a) + \hbar g(\sigma_+ a + a^\dagger \sigma_-) \quad (\text{D.20})$$

で表せた。これを  $|g(e), n\rangle$  の固有関数系で行列表示すると

$$\begin{pmatrix} -\omega_{eg}/2 & & & & & \\ & \omega_{eg}/2 & g & & & \\ & g & -\omega_{eg}/2 + \omega & & & \\ & & & \omega_{eg}/2 + \omega & \sqrt{2}g & \\ & & & \sqrt{2}g & -\omega_{eg}/2 + 2\omega & \\ & & & & & \ddots \end{pmatrix} \begin{pmatrix} |g, 0\rangle \\ |e, 0\rangle \\ |g, 1\rangle \\ |e, 1\rangle \\ |g, 2\rangle \\ \vdots \end{pmatrix} \quad (\text{D.21})$$

となりこれは小行列

$$\begin{pmatrix} (n-1)\hbar\omega + \frac{1}{2}\hbar\omega_{eg} & \sqrt{n}\hbar g \\ \sqrt{n}\hbar g & n\hbar\omega - \frac{1}{2}\hbar\omega_{eg} \end{pmatrix} \begin{pmatrix} |g, n-1\rangle \\ |e, n\rangle \end{pmatrix} \quad (n = 1, 2, \dots) \quad (\text{D.22})$$

が対角に並んだ行列である。この各小行列は容易に対角化することが出来、固有関数、固有値はそれぞれ次のように与えられる。

$$|+, n\rangle = \cos(\phi_n/2)|e, n-1\rangle + \sin(\phi_n/2)|g, n\rangle \quad (\text{D.23})$$

$$|-, n\rangle = -\sin(\phi_n/2)|e, n-1\rangle + \cos(\phi_n/2)|g, n\rangle \quad (\text{D.24})$$

$$E(n) = (n - \frac{1}{2})\hbar\omega + \frac{1}{2}\hbar\Omega_{n-1}, \Omega_{n-1} = (\delta^2 + 4ng^2)^{1/2} \quad (\text{D.25})$$

ただし、 $\tan(\phi_n) = \pm 2\sqrt{n}g/\delta$  である。この状態は裸の電子の二準位と電磁場の単一モードの間で絶えず光子をやりとっている状態（誘導放出と吸収）をあらわし、Dressed 状態と呼ばれる。

## 付録 E

# 現象論的解析による共鳴状態寿命の検討

光支援トンネリングにおいては、量子ドットへ入射した電子の寿命は光電場の周波数、強度に対して単調に変化せず、複雑な変化を示した。第5章で議論したように、この複雑な寿命の変調は基本的には各準位の寿命がラビ振動によって重畳されることによるものであり、電場強度の強い領域ではこれらに加えてさらに複数の準位に対する光学遷移が折りたたまれることでさらに複雑な寿命の変調が現れた。ここではこれらの寿命の電場強度依存性が電子波のドット内への流入過程、流出過程まで含めて初めて理解可能であることを、時間発展計算結果を踏まえて現象論的に記述した Rate 方程式を用いて明らかにする。

ドット内部における波動関数  $\psi(x, y; t)$  を

$$\psi(x, y; t) = \sum_m c_m(t) \exp(-i\omega_m t) |\phi_m^0\rangle, \quad (\text{E.1})$$

と展開して表す。ここで  $|\phi_m^0\rangle$  と  $\omega_m$  はそれぞれ光電場の印加されていない量子ドットにおける  $m$  番目の共鳴状態とそれに対応した周波数をあらわす。このとき、各状態の係数  $c_n(t)$  は以下のような時間に対する微分方程式を満足する。

$$i\hbar \frac{d}{dt} c_n(t) = \sum_m \exp[i(\omega_n - \omega_m)t] \langle \phi_n^0 | V(\mathbf{r}, t) | \phi_m^0 \rangle c_m(t). \quad (\text{E.2})$$

以下ではこの微分方程式に実空間における時間発展計算の結果を用いて初期条件を与え、数値的に解くことで光支援トンネリングにおける寿命変調がどのようにして起きるのか詳細な検討を行う。

まず量子ドット内状態を二準位で展開出来るとして Rate 方程式を立てる。そうすると上の方程式は第4章におけるのと同様、以下のような二本の連立微分方程式で与えられる。

$$\begin{aligned} i\hbar \frac{d}{dt} c_1(t) &= V_{11}(t) c_1(t) + V_{12}(t) c_2(t), \\ i\hbar \frac{d}{dt} c_2(t) &= V_{21}(t) c_1(t) + V_{22}(t) c_2(t), \end{aligned} \quad (\text{E.3})$$

ただし、ここで  $V_{nm}(t)$  は準位間の電気双極子相互作用項  $V_0 x \sin(\omega t)$  を挟んだ遷移行列要素であり

$$V_{nm}(t) = \langle \phi_n^0 | E_0 x | \phi_m^0 \rangle \exp[i(\omega_m - \omega_n)t] \sin \omega t, \quad (\text{E.4})$$

と与えられる。ここで  $i = j$  の項は軌道の対称性からゼロであるとしている。その際、 $i$  番目の共鳴状態に対する電子の量子ドットへの流入と流出をあらわす項をそれぞれ  $\Gamma_i^{\text{in}}$ ,  $\Gamma_i^{\text{out}}$  として現象論的に方程式へ付加した。ただし、 $\Gamma_i^{\text{in}}$  は  $i$  番目の共鳴状態に対するガウス波束の入射割合をあらわし、 $\Gamma_i^{\text{out}}$  は  $i$  番目の状態からの電子の流出割合をあらわす項とした。これらの項を付加した連立方程式を

$$\begin{aligned} i\hbar \frac{d}{dt} c_1(t) &= V_{12}(t) c_2(t) - \frac{1}{2} \Gamma_1^{\text{out}} c_1(t) + \frac{1}{2} \Gamma_1^{\text{in}} c_1(t), \\ i\hbar \frac{d}{dt} c_2(t) &= V_{21}(t) c_1(t) - \frac{1}{2} \Gamma_2^{\text{out}} c_2(t), \end{aligned} \quad (\text{E.5})$$

と与えた。ここで  $\Gamma_i^{\text{in}}$  と  $\Gamma_i^{\text{out}}$  には時間発展計算から求めた各準位の寿命の逆数  $\Gamma = \hbar/\tau$  を与え、また電子の流入は準位  $i$  からのみであるとした。

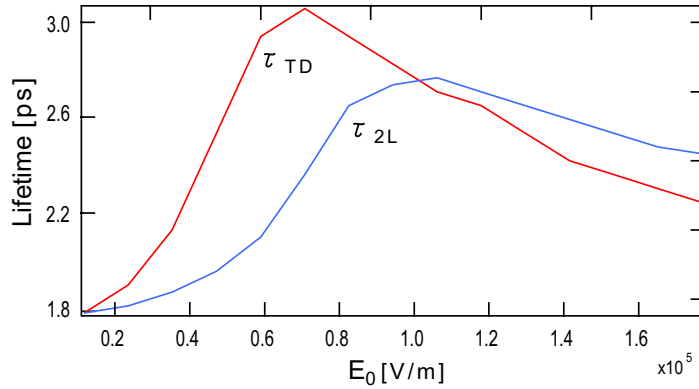


図 E.1 電場強度  $E_0$  に対する寿命の関係を図示した。二つの曲線のうち  $\tau_{2L}$  は上の連立方程式 (E.3) を解いて得られた結果を、 $\tau_{TD}$  は時間依存シュレディンガー方程式を実空間差分を用いて直接解いた結果をあらわす。

具体的に各量へ値を与え、第5章で扱った光支援トンネリングにおける有効寿命の電場強度依存性について議論を行う。上の二準位展開の表式を用いて L-mode の光電場における共鳴状態  $B_{3u}^4$  と  $A_g^4$  との間の光支援トンネリングを考える [図 5.6(a)]。表 5.1(b) をもとに、これら二つの状態からの単位時間あたりの流出量を現象論的にそれぞれ、 $\Gamma_1^{\text{out}} = 0.767$  [ $\tau_{\text{eff}}(B_{3u}^4) = 1.30$  ps],  $\Gamma_2^{\text{out}} = 0.243$  [ $\tau_{\text{eff}}(A_g^4) = 4.11$  ps] と与えた。現象論的解析の第一歩として電子の流入を無視した。この連立方程式に対して  $c_1(0) = 1$ ,  $c_2(0) = 0$  の初期条件を与え、係数の時間発展を評価することで電場強度  $E_0$  に対する共鳴状態寿命を調べた結果を図 E.1 に示した。定性的には電場強度依存性をよくあらわした結果となったが、時間依存シュレディンガー方程式を実空間差分で解いた結果とは電場強度が  $E_0 = 1.1 \times 10^5$  V/m よりも小さい領域で違いが大きくなった。これは電子の流入を無視して  $\Gamma_1^{\text{in}} = 0$  としたことによるものと考えられる。

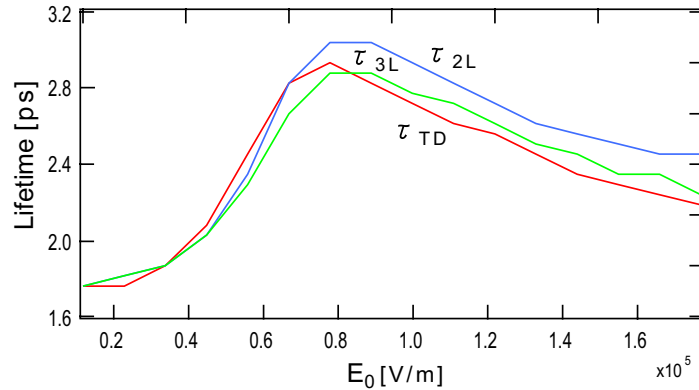


図 E.2 有効寿命の電場強度依存性。流出に加え流入も考慮に入れて計算。

次にガウス波束の量子ドットへの入射を考え、流入項  $\Gamma_1^{\text{in}}$  に値を入れて計算を行った。波束の流入は一つの共鳴状態 ( $B_{3u}^4$ ) からのみであるとした。 $\Gamma_1^{\text{in}} = 1.972 (= 1/\tau_{\text{eff}}^{\text{in}})$  の条件で計算を行ったが、流入は単純な指数的增加ではフィッティングできなかった。そこで我々は流入項をガウス波束の速度と幅を考慮して  $\frac{1}{2}\Gamma_1^{\text{in}'} \exp[-\alpha(t - t_0)^2]$  ( $\Gamma_1^{\text{in}'} = 1.544$ ) として計算を行った。ただし  $t_0 = 0.37$  を電子波束の初期位置から量子ドットの中心までの到達時間、

$\alpha = 1/t_0^2 = 7.30$  を波束の幅を考慮した減衰因子とし、以下のように連立方程式を書き直した。

$$\begin{aligned} i\hbar \frac{d}{dt} c_1(t) &= V_{12}(t) c_2(t) - \frac{1}{2} \Gamma_1^{\text{out}} c_1(t) + \frac{1}{2} \Gamma_1^{\text{in}'} \exp[-\alpha(t-t_0)^2] c_1(t) \\ i\hbar \frac{d}{dt} c_2(t) &= V_{21}(t) c_1(t) - \frac{1}{2} \Gamma_2^{\text{out}} c_2(t). \end{aligned} \quad (\text{E.6})$$

この条件のもとでの計算結果は図 E.2 に示したように有効寿命  $\tau_{\text{eff}}$  の  $E_0$  依存性をかなりよく再現したものとなった。しかし、それでも電場強度の強い領域では実空間差分の結果からのずれが生じた。射影による解析で明らかにしたように電場強度の強い領域では複数の準位が電子遷移に関与する（この場合では  $B_{3u}^4 \leftrightarrow A_g^7$ ）。これを踏まえて Rate 方程式を三準位系に対するものへ拡張し  $\Gamma_3^{\text{out}} = 1.00$  を与えて計算を行った結果、強電場領域における有効寿命の電場強度依存性もよく再現することに成功した。

まとめ 以上の結果から、光支援トンネリングにおける共鳴状態寿命の変調においては、電子の流出過程のみならず流入過程が大きく影響を与えることが明らかとなった。その傾向は電場強度の大きい領域で特に顕著であるという結果が得られた。第 3 章において明らかにした流入時間  $\tau_{\text{in}}$  の初期値依存性を考えると、同じ電磁場に対しても入射電子の初期条件によって、電子の寿命変調および透過波の波数分布に変化が現れることが期待される。この初期値依存性を検討することは今後の課題である。

## 付録 F

# 有効原子単位

原子単位 (atomic unit, a.u. ) の構成方法を述べる。以下に示すような水素原子に対するシュレディンガー方程式を考える。

$$\left[-\frac{\hbar^2}{2m_e}\nabla^2 - \frac{e^2}{4\pi\epsilon_0 r}\right]\phi = E\phi \quad (\text{F.1})$$

次にこの方程式を無次元化することを考える。長さを無次元化するために  $x, y, z \rightarrow \lambda x', \lambda y', \lambda z'$  とおいて上の方程式を書き直すと

$$\left[-\frac{\hbar^2}{2m_e\lambda^2}\nabla'^2 - \frac{e^2}{4\pi\epsilon_0\lambda r'}\right]\phi' = E\phi' \quad (\text{F.2})$$

と表される。ここで

$$\frac{\hbar^2}{m_e\lambda^2} = \frac{e^2}{4\pi\epsilon_0\lambda} = E_a \quad (\text{F.3})$$

となるように  $\lambda$  を置くと

$$\lambda = \frac{4\hbar^2\pi\epsilon_0}{m_e e^2} \quad (\text{F.4})$$

となってこれは Bohr 半径  $a_0$  に等しい。

$$E/E_a = E' \quad (\text{F.5})$$

と置くことにより、シュレディンガー方程式を

$$\left[-\frac{1}{2m_e}\nabla'^2 - \frac{1}{r'}\right]\phi' = E'\phi' \quad (\text{F.6})$$

と書き直すことが出来、これによって原子単位系を構成された。この単位系では長さの単位は Bohr 半径  $0.5 \text{ \AA}$ 、エネルギーは  $27.2 \text{ meV}$  が 1 原子単位 (a.u.) として取られることになる。

有効原子単位系の構成 上では電子の質量が  $m_e$ 、誘電率が  $\epsilon_0$  の場合を考えたが、GaAs 中に作成された二次元電子ガス系における電子の運動を有効質量近似を用いて考える場合には原子単位系を取り直して有効原子単位系とでもいべきものを構成し直すと後に便利である<sup>57)</sup>。GaAs の有効質量を  $m^* = 0.067m_0$ 、誘電率を  $\epsilon_s = 12.53\epsilon_0$  として単位を取り直すことを考える。取り直すのは簡単で  $\lambda$  を表す式中の  $m_e, \epsilon_0$  のかわりにそれぞれ  $m^*, \epsilon_s$  の値を代入することで単位系を取り直すことが出来る。



具体的な表式は以下の通りである。

$$\begin{aligned} a'_B &= \frac{\hbar^2 \epsilon_s}{m^* e^2} \\ E_a^* &= \frac{m^* e^4}{\hbar^2 \epsilon_s^2} \end{aligned} \quad (\text{F.7})$$

主な物理量の原子単位、有効原子単位と SI 単位との換算値、および換算式を表 F.1, F.2 にそれぞれまとめた。ただし、 $\alpha = \frac{e^2}{4\pi\epsilon_0\hbar}$  とした。

表 F.1 単位換算表 原子単位

物理量	原子単位	SI 単位
ディラック定数	$\hbar$	$1.05 \times 10^{-34} [\text{J}\cdot\text{s}]$
質量	$m$	$9.11 \times 10^{-31} [\text{kg}]$
電荷	$e$	$1.60 \times 10^{-19} [\text{C}]$
速度	$\alpha$	$2.19 \times 10^6 [\text{m/s}]$
運動量	$m\alpha$	$1.99 \times 10^6 [\text{m/s}]$
エネルギー	$m(\alpha)^2$	$4.36 \times 10^{-18} [\text{J}]$
長さ	$\hbar/m\alpha$	$5.29 \times 10^{-11} [\text{m}]$
時間	$\hbar/m(\alpha)^2$	$2.42 \times 10^{-17} [\text{s}]$
力	$m^2\alpha^3/\hbar$	$8.24 \times 10^{-8} [\text{N}]$
電場の強さ	$m^2\alpha^3/e\hbar$	$5.14 \times 10^{11} [\text{N/C}]$
角振動数	$m\alpha^2/\hbar$	$4.13 \times 10^{16} [1/\text{s}]$

表 F.2 単位換算表 有効原子単位

物理量	有効原子単位 (GaAs)	SI 単位
ディラック定数	$\hbar$	$1.05 \times 10^{-34} [\text{J}\cdot\text{s}]$
質量	$m^*$	$9.11 \times 10^{-31} [\text{kg}]$
電荷	$e$	$1.60 \times 10^{-19} [\text{C}]$
速度	$\alpha$	$1.746 \times 10^5 [\text{m/s}]$
運動量	$m^*\alpha$	$1.066 \times 10^{-26} [\text{kg m/s}]$
エネルギー	$(m^*)(\alpha)^2$	$1.861 \times 10^{-21} [\text{J}] (= 11.61 [\text{meV}])$
長さ	$\hbar/m^*\alpha$	$99.00 \times 10^{-10} [\text{m}]$
時間	$\hbar/(m^*)(\alpha)^2$	$5.634 \times 10^{-14} [\text{s}]$
力	$(m^*)^2\alpha^3/\hbar$	$1.889 \times 10^{-13} [\text{N}]$
電場の強さ	$(m^*)^2\alpha^3/e\hbar$	$1.18 \times 10^6 [\text{N/C}]$
角振動数	$m^*\alpha^2/\hbar$	$1.77 \times 10^{13} [1/\text{s}]$

# 参考文献

- [1] M. A. Reed, J. N. Randall, R. J. Aggarwall, R. J. Matyi, T. M. Moore, and A. E. Wetsel : Phys. Rev. Lett. **60** (1988) 535.
- [2] H. van Houten, B. J. van Wees, J. E. Mooij, C. W. J. Beenakker, J. G. Williamson and C. T. Foxon: Europhys. Lett. **5** (1988) 721.
- [3] C. Leforestier, R. H. Bisseling, C. Cerjan, M. D. Feit, R. Friesner, A. Guldberg, A. Hammerich, G. Jolicard, W. Karrlein, H. D. Meyer, N. Lipkin, O. Roncero, and R. Kosloff : J. Comput. Phys. **94** (1991) 59.
- [4] A. Asker, and A. S. Cakmak : J. Chem. Phys. **68** (1969) 1253 **54** (1971) 3592.
- [5] M. D. Feit, and J. A. Fleck, Jr. : J. Chem. Phys. **78** (1983) 301.
- [6] H. Tal-Ezer, and R. Kosloff : J. Chem. Phys. **81** (1984) 3967.
- [7] T. Iitaka : Phys. Rev. E **49** (1994) 4684.
- [8] T. J. Park, and J. C. Light : J. Chem. Phys. **85** (1986) 5870.
- [9] R. Kosloff : J. Phys. Chem. **92** (1988) 2087.
- [10] N. Watanabe and M. Tsukada, Phys. Rev. E **62** (2000) 2914
- [11] N. Watanabe and M. Tsukada, J. Jpn. Appl. Phys. **69** (2000) 2962
- [12] 夏目 雄平、植田 毅 : 計算物理 III (朝倉書店, 2003) p. 33.
- [13] M. Suzuki: Phys. Lett. A **146** (1990) 319.
- [14] M. Suzuki: J. Math. Phys. **32** (1991) 400.
- [15] M. Suzuki: Proc. Jpn. Acad. **69** (1993) 161.
- [16] 飯高 敏晃 : 量子ダイナミクス入門 (丸善, 1994).
- [17] 鈴木 増雄 : 統計力学 (丸善, 1994) p. 80.
- [18] 高見 穎郎 : 偏微分方程式の差分解法 (東京大学出版会, 1994).
- [19] 猪木 慶治、河合 光 : 量子力学 II (講談社, 1994).
- [20] J. J. Sakurai : 現代の量子力学 (吉岡書店, 1989).
- [21] 砂川 重信 : 電磁気学 (装華房, 1977) p. 244.
- [22] 栗原 進 編 : トンネル効果 (丸善, 1994).
- [23] D. K. Ferry : デバイス物理のための量子力学 (丸善, 1995).
- [24] J. Spector, H. L. Stormer, K.W. Baldwin , L. N. Pfeiffer and K. W. West, Appl. Phys. Lett., **56** (1990) 1290.
- [25] J. Spector, H. L. Stormer, K.W. Baldwin , L. N. Pfeiffer and K. W. West, Appl. Phys. Lett. **56** (1990) 2433.
- [26] U. Sivan, M. Heiblum, C. P. Umbach and H. Shtrikman, Phys. Rev. B, **41** (1990) 7937.
- [27] A. Endoh, S. Sasa, H. Arimoto and S. Muto, Appl. Phys. Lett. **61**, 52 (1992).
- [28] T. K. Gaylord and K. F. Brennan, J. Appl. Phys., **65**, 814 (1989).

- 
- [29] W. H. Press, S. A. Teukolsky, W.T. Vetterling, B. P. Flannery : NUMERICAL RECIPES in Fortran 77 ( Cambridge, 1986 )
  - [30] Yu. V. Sharvin: Sov. Phys. JETP. **21** (1965) 655.
  - [31] V. S. Tsoi: JEPT Lett. **19** (1974) 70.
  - [32] J. Spector, H. L. Stormer, K. W. Baldwin, L. N. Pfeiffer and K. W. West: Appl. Phys. Lett. **56** (1990) 1290.
  - [33] J. J. Heremans, S. von Molnár, D. D. Awschalom and A. C. Gossard: Appl. Phys. Lett. **74** (1999) 1281.
  - [34] H. van Houten, C. W. J. Beenakker, J. G. Williamson, M. E. I. Broeckaart, P. H. M. van Loosdrecht, B. J. van Wees, J. E. Mooij, C. T. Foxon and J. Harris: Phys. Rev. B. **39** (1988) 8556.
  - [35] T. Koiso, M. Muraguchi, and K. Takeda: Jpn. J. Appl. Phys. **44** (2005) 4252.
  - [36] I. I. Rabi: Phys. Rev. **51** (1937) 652.
  - [37] M. Wagner: Phys. Rev. Lett. **76** (1996) 4010.
  - [38] C. Cerjan, and R. Kosloff: Phys. Rev. A **47** (1993) 1852.
  - [39] J. E. Bayfield: Quantum Evolution (1999) p219.
  - [40] P. Lambropoulos, C. Kikuchi, and R. K. Osborn: Phys. Rev. **144** (1966) 1081.
  - [41] J. H. Shirley: Phys. Rev. **138** (1965) 979.
  - [42] H. Sambe: Phys. Rev. A **7** (1973) 2203.
  - [43] M. Holthaus, and B. Just: Phys. Rev. A **49** (1994) 1950.
  - [44] M. Holthaus: Phys. Rev. Lett. **69** (1992) 1596.
  - [45] M. Holthaus, and D. Hone: Phys. Rev. B **47** (1993) 6499.
  - [46] T. C. L. G. Sollner, E. R. Brown, W. D. Goodhue, and H. Q. Le: Appl. Phys. Lett. **50** (1987) 332.
  - [47] V. A. Chitta, R. E. M. de Bekker, J. C. Maan, S. J. Hawksorth, J. M. Chamberlain, M. Henini, and G. Hill: Surf. Sci. **263** (1992) 227.
  - [48] H. C. Liu: Phys. Rev. B **43** (1991) 12538.
  - [49] N. S. Wingreen, A. P. Jauho, and Y. Meir: Phys. Rev. B **48** (1993) 8487.
  - [50] A. P. Jauho, N. S. Wingreen, and Y. Meir: Phys. Rev. B **50** (1994) 5528.
  - [51] J. Inarrea, G. Platero, and C. Tejedor: Phys. Rev. B **50** (1994) 4581.
  - [52] R. Aguado, J. Inarrea, and G. Platero: Phys. Rev. B **53** (1996) 10030.
  - [53] P. Johansson, and G. Wendin: Phys. Rev. B **46** (1992) 1451.
  - [54] E. N. Bulgakov, and A. F. Sadreev: J. Phys.: Condens. Matter **6** (1996) 8869.
  - [55] A. P. Jauho: Phys. Rev. B **41** (1990) 12327.
  - [56] K. Yakubo, S. Feng, and Q. Hu: Phys. Rev. B **54** (1996) 7987.
  - [57] M. Fujito, A. Natori, and H. Yasunaga : Phys. Rev. B **53** (1996) 9952.

# 謝辞

本論文作成にあたり、ご指導を頂いた早稲田大学理工学部物質開発工学科教授 武田京三郎博士に感謝いたします。飽きっぽく仕事の遅い私を暖かく見守り、励めてくださったおかげでここまでやり遂げることが出来ました。本論文を無事に書き上げることが出来たのは武田教授の御指導によるものに他なりません。表裏のない率直な人柄、何事にも全力を持ってあたるという座右の銘には多大な感銘を受けました。武田教授の下で研究を行った7年間は何ものにも代え難い財産です。

本論文の審査をお引き受け頂いた早稲田大学理工学部物質開発工学科教授 山中由也博士には私の拙い原稿を熟読して頂き、多くの有益なご助言および内容に関するご指摘を頂きましたこと感謝致します。

同じく、本論文の審査をお引き受け頂いた早稲田大学理工学部物質開発工学科助教授 山本博士に感謝します。山本博士からは何を明らかにしたのかを明確化する研究姿勢の大切さを教わりました。また励ましの言葉頂きましたこと重ねて感謝致します。

早稲田大学理工学部物質開発工学科教授 北田韶彦博士からは Floquet 状態についてご助言を賜りましたこと感謝致します。また、もっと勉強をなさいという言葉、胸に沁みました。重ねて感謝します。

早稲田大学理工学部コンピュータ・ネットワーク工学科教授 大石進一博士からは大規模行列の対角化における計算精度についてご助言賜りましたこと感謝致します。

予備公聴会、公聴会、論文回覧などを通して御指導を頂いた早稲田大学理工学部物質開発工学科教授一同に感謝申し上げます。

みずほ総研の渡辺尚貴博士には時間依存シュレディンガー方程式の数値解法について多大な助言を賜りました。氏の研究を拝見したことをきっかけに時間依存問題に取り組みはじめて6年間、良いテーマを選べたこと感謝致します。

物質材料研究機構研究員の浅利裕介研究員には筆舌には尽くしがたいほどお世話になりました。研究の立ち上げから内容に対する助言と議論、果ては学会発表の準備に至るまで、本研究のほとんど全てに渡って氏から御指導を頂きました。感謝申し上げます。

武田研究室では小山紀久博士(物質材料研究機構研究員)岡本創博士(NTT 基礎研究所)高橋憲彦博士(富士通)宮城島規氏(富士フイルム)をはじめ多くの先輩・後輩にお世話になりました。特に時間発展計算の研究を共に行い議論した小磯 K. 卓児君、大塚雄介君、佐竹哲郎君、奥西拓馬君、杉山功太君、木下健志君に感謝いたします。奥西君、木下君、杉山君には博士論文の校正を手伝ってもらったこと感謝します。同期の信田拓哉君、鈴木健君、葉桐郁也君、中西務君には在学中、就職後も含めて、飲み、語り、応援して頂きました。改めて感謝します。

最後にこれまで支援してくれた両親に感謝します。

# 研究業績

## 論文

1. M. Muraguchi, T. Koiso, Y. Asari, and K. Takeda  
”Theoretical study on quantum phenomena of an electron wave packet injected into various potential walls”  
TOWARDS THE CONTROLLABLE QUANTUM STATES, World Scientific Publishing, edited by H. Takayanagi and J. Nitta, 475 (2003).
2. T. Koiso, M. Muraguchi, Naoki Watanabe, and K. Takeda  
”Time-dependent Ballistic Phenomena of Electron Injected into Half-Ellipse Confined Room”  
Jpn. J. Appl. Phys. 44 (2005) 4252.
3. M. Muraguchi, and K. Takeda  
”First-Principles Study on Time-dependent Phenomena in Photon-Assisted Tunneling I: An Electron Injected into 2D Lozenge Quantum Dot”  
Jpn. J. Appl. Phys. 46 (2007) (To be published).

## 国内会議

1. 村口正和、浅利祐介、小磯卓児、武田京三郎  
”静電量子レンズによる電子波束の時間発展”  
日本物理学会第59回年次大会春季、2004年3月27日～3月30日、九州大学箱崎キャンパス、27pYF-3.
2. 村口正和、浅利祐介、大塚雄介、佐竹哲郎、渡辺尚貴、武田京三郎  
”2次元放物型量子ドット内電子の振動外場に対する動的応答”  
日本物理学会第59回年次大会秋季、2004年9月12日～9月15日、青森大学、13pYC-9.
3. 佐竹哲郎、村口正和、浅利祐介、大塚雄介、武田京三郎  
”量子細線内電子波束の時間発展と電気伝導”  
日本物理学会第59回年次大会秋季、2004年9月12日～9月15日、青森大学、12pPSA-5.

- 
4. 大塚雄介、村口正和、浅利祐介、佐竹哲郎、武田京三郎  
”2次元ポテンシャル場に束縛された電子の変調外場に対する動的応答”  
日本物理学会第59回年次大会秋季、2004年9月12日～9月15日、青森大学、12pPSA-6.
  5. 村口正和、浅利裕介、武田京三郎  
”共鳴トンネル構造内における光電場により変調された電子波のダイナミクス”  
第66回応用物理学会学術講演会、2005年9月7日～9月11日、徳島大学、9p-W-17.
  6. 村口正和、浅利裕介、武田京三郎  
”2次元閉じこめ場内における電子励起および光励起支援にともなう電子の時間発展”  
日本物理学会第61回年次大会秋季、2005年9月18日～9月22日、同志社大学、19aYC-8.
  7. 大塚雄介、村口正和、武田京三郎  
”二次元リング型ポテンシャル場に入射された単一電子波束の第一原理動力学”  
第53回応用物理学関係連合講演会、2006年3月22日～3月26日、武蔵工業大学、24-a-G-2.
  8. 奥西拓馬、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”  
日本物理学会第62回年次大会秋季、2006年9月23日～9月26日、千葉大学、23pXL-9.

## 国際会議

1. M. Muraguchi, T. Koiso, Y. Asari, and K. Takeda  
”**Theoretical study on quantum phenomena of an electron wave packet injected into various potential walls**”  
International Symposium on Mesoscopic Superconductivity and Spintronics, NTT Basic Research Laboratories, March 4-6, 2002 P17.
2. M. Muraguchi, T. Koiso, Y. Asari, and K. Takeda  
”**Theoretical Possibility of Electron Focusing by Quantum Lens**”  
The American Physical Society March Meeting, Indianapolis, March 18-22, 2002 C33 134.
3. M. Muraguchi, N. Watanabe, Y. Asari, and K. Takeda  
”**Time-dependent quantum process for electrons assisted by oscillating electric field**”  
The American Physical Society March Meeting, Los Angeles, March 21-25, 2005, A25-9.
4. M. Muraguchi, Y. Otuka, T. Satake, Y. Asari, and K. Takeda  
”**Dynamical Quantum Properties of Electrons Controlled by Time-Dependent External Field**”  
Material Research Society (MRS) Fall Meeting, Boston, November 27-December 2, 2005, P13.27.

5. M. Muraguchi, and K. Takeda  
"Non-linear dynamics of the electron wave packet propagating through the resonant tunneling structure under the presence of the electron-photon and inter-electron interaction"  
The American Physical Society March Meeting, Baltimore, March 13-17, 2006, B32-9.
6. T. Satake, M. Muraguchi, and K. Takeda  
"Time-dependent phenomena of electron-electron and electron-hole pairs confined in quantum dots"  
The American Physical Society March Meeting 2006, Baltimore, March 13-17, 2006, Q1-173.
7. M. Muraguchi, and K. Takeda  
"First-Principles Study on Time-Dependent Phenomena in Photon-Assisted Tunneling: Electrons Injected into 2D Lozenge Quantum Dot"  
International Conference on Quantum Simulators and Design, Hiroshima University, December 3-6, 2006, P-53.
8. T. Okunishi, M. Muraguchi, and K. Takeda  
"Orbital Interference of an Electron Wave Packet Tunneling through the 2D Quantum Ring"  
International Conference on Quantum Simulators and Design, Hiroshima University, December 3-6, 2006, P-54.