

ナノ光応答理論と光・電子融合デバイスの理論設計

分子研 信定克幸
nobusada@ims.ac.jp

光と物質（電子系）の相互作用は物質の幾何学的構造、反応性、光応答特性等を決定するための非常に有用な現象であるが、同時に物質の光機能発現に強く関与しており、その詳細な理解は極めて重要である。物質科学研究において光と物質の相互作用を取り扱う場合、光の波長は物質系のサイズよりも十分に長く、物質には一様な外部電場が印加されているとする双極子近似を用いることが殆どである。一方、最近では数ナノメートルサイズの精密なナノ構造体の作成が可能となってきたが、光がこの様なナノ構造体と相互作用すると、“近接場光”と呼ばれる局所光がナノ構造体近傍に纏わり付く様に発生する。この近接場光が近傍の物質（電子系）と相互作用することによって、双極子近似を仮定した従前の光応答とは大きく異なる現象が起こり得る。近接場光はその発生源となるナノ構造体の局所構造を反映したナノメートルサイズの空間分布を持つため、近接場光と物質の相互作用の解明には、より一般的なナノ光応答理論が必要となる。

HPCI 戦略プログラムにおいて我々は、ナノ光応答理論の開発とその理論に基づくナノ構造体光励起電子ダイナミクス法（Grid-based Coupled Electron and Electromagnetic field Dynamics: GCEED）の開発を進めてきた[1]。GCEED は、時間依存コーン・シャム方程式を実空間グリッド上で差分法に基づいて直接的に解き、時間発展計算も差分法を用いて解く。固有値対角化や高速フーリエ変換等が含まれておらず、差分法のための簡便なアルゴリズムで構成されており、超並列計算にも非常に適している。この計算法を用いて、金クラスターの局所表面プラズモン共鳴の研究を行った[2]。実在系ナノ構造体の第一原理計算としては最大規模の Au_{1414} を扱うことができ、プラズモン共鳴の明瞭なサイズ依存性を明らかにした。GCEED は、実空間グリッド法に基づくために、孤立系、3次元周期系、界面・表面系等、対象系を問わず計算可能であり、電場、磁場、電圧等の静的・動的な外場を印加することも可能である[3,4]。また、量子ドットモデル系を対象として、従前の光励起では低効率もしくは本質的に困難とされている物質の光励起素過程（非線形光学応答、電子的禁制遷移、始・終状態で異なる波数を持つバンド状態間遷移等）を、近接場光を用いることによって陽的に励起できることを理論的に明らかにした[5,6]。近接場光励起は、プラズモン励起に伴う電場増強の観点からしばしば議論されるが、近接場光の本質はその電場勾配に起因する電場の2次の高調波成分や桁違いに大きな波数を持ち得ることであると考える。電場増強の観点にはこれらの近接場光励起ダイナミクスの物理が欠けていることも議論する予定である。現在、実在系ナノ構造体を対象として、第一原理計算 GCEED 法を用いてこれらの近接場光励起ダイナミクスの実証研究を進めている。光・電子機能デバイスの理論設計への展開についても紹介する予定である。

[1] M. Noda, K. Ishimura, K. Nobusada, K. Yabana and T. Boku, *J. Comp. Phys.* 265, 145 (2014). [2] K. Iida, M. Noda and K. Nobusada, *J. Phys. Chem. A* 118, 11317 (2014). [3] K. Iida, M. Noda and K. Nobusada, *J. Chem. Phys.* 141, 124124 (2014). [4] K. Iida, M. Noda and K. Nobusada, *J. Chem. Phys.* 142, 214702 (2015). [5] M. Yamaguchi, K. Nobusada, T. Kawazoe and T. Yatsui, *Appl. Phys. Lett.* 106, 191103 (2015). [6] M. Yamaguchi, K. Nobusada, and T. Yatsui, *Phys. Rev. A*, 92, 043809 (2015).