

「新機能創成に向けた光・光量子科学技術」
平成 17 年度採択研究代表者

堀 裕和

山梨大学大学院医学工学総合研究部 教授

ナノ光電子機能の創生と局所光シミュレーション

1. 研究実施の概要

新時代の高機能情報処理システムを構成する「光電子機能」の創生を目指し、ナノ空間固有の近接場光励起移動で機能し、これをマクロに接続する階層的インターフェースを持つ新概念デバイスの作成と、近接場光が生み出す機能に焦点を絞ったシミュレーション技術の開発を目標として、下記項目の基盤研究を推進した。これらを統合した「ナノ空間機能の科学」および「局所光電子系の科学」の構築を目指す。

「スピンチェーン制御励起移動デバイス製作」では、単一量子井戸構造と希薄磁性半導体細線を基本とするデバイス製作と機能開発を行った。磁性/非磁性半導体二重量子井戸構造を作製し、励起子発光の円偏光度計測により基本特性を調べるとともに、非磁性/磁性半導体層組合せ構造および非磁性/磁性半導体細線組合せ構造を作製し、非磁性井戸局在励起子の偏光磁気 PL 測定から次元性の特徴を見出した。並行してプローブ顕微分光装置によるナノ光励起輸送過程計測と階層的近接場光相関評価実験を推進した。「シミュレーション技術の開発」では、近接場光が生み出す機能を評価する数値計算法、特にその精度保証に関する研究を行い、さらに電磁界計算のモデリングと逆問題、近接場光の特徴的機能に関する数学的・物理的解析を行った。「量子機能創生のための分子架橋系およびスピクラスター系の基礎研究」では、分子架橋デバイスの開発原理、ポーラロン効果などを含め種々の伝導モードの解析、電極と分子との電子移動、発生する輻射場の性質についての理論研究を推し進めた。特に、チオフェンやポリアセンなどの有機分子結晶の構造とエネルギーバンド、分子架橋における擬ポーラロン伝導、単分子架橋系におけるポーラロン障壁を研究した。量子光電子機能探索の実験研究として、近接場ナノ光リソグラフィで作成したホールアレイを用いたナノスケール分子発光系の励起相関スペクトル計測実験を展開し、並行してスピクラスター形成に用いる高密度冷却スピン偏極原子生成実験システムの製作と、近接場光原子収集システム、近接場光双極子カトラップの開発を行った。「ナノ情報通信システム設計理論の構築」では、ナノ光電子機能の階層性の理論解析に基づくシステム設計をさら

に推し進め、アンギュラー・スペクトル展開を用いた理論解析とシステム設計を展開し、光励起移動を信号輸送の原理とするデバイスの優位性をエネルギー散逸と空間スケールに着目して解析し、デバイスの安全性(耐タンパー性)を明らかにした。量子系を含むナノ光電子機能探索のため、ナノスケールにおけるトンネルと散逸について、揺らぎを取り入れたマクロ変数の発展方程式導出に成功するとともに、関連の素過程研究を推進した。

これらの研究に基づき、さらにデバイス創生研究を進展させ、研究目標の達成を目指す。

2. 研究実施内容

(文中にある参照番号は 4. (1)に対応する)

研究全体の推進と取りまとめ

局所光による励起輸送および近接場光の階層的性質に基づく新機能デバイス創生の目標のもとに協力機関の研究を統合し、研究全体を推進した。今年度は特に、スケールされない階層構造と散逸過程に基づいて構築したデバイス機能原理を具体的に評価可能な、光近接場励起輸送機構を実現する素子製作と評価技術開拓に重点を置いて、スピントラップ励起移動型デバイスの試料製作と評価を行った。シミュレーション研究では、電磁界問題数値計算の精度保証法の基礎を確立するとともに、階層型機能と整合するシミュレーションアルゴリズムと機能表現の構築を推進した。ナノメートルスケール量子系における光電子機能の理論解析においても、基礎理論構築に大きな進展があった。実験と理論を融合するデバイス評価の技術整備も進展した。今後これらの成果に基づき、デバイス創生研究を進展させ、「ナノ空間機能の科学」「局所光電子系の科学」の構築を含む目標達成を目指す。

ナノ光電子機能の創生

スピントラップ埋め込み量子井戸構造をもつ、励起移動型デバイスの基本構造確立と素過程研究のため、磁性/非磁性半導体二重量子井戸構造の作成と、強磁場極低温スピントラップ評価装置による諸特性評価を行った。スピントラップ励起移動は、量子井戸局在励起子とその近傍に低次元配列する磁性イオンとの相互作用強さの外部磁界による変調を基本原理とする。本年度は局在励起子と磁性イオンの距離、エネルギー、次元性の影響を調べるために、磁性イオンを含む量子井戸と含まない量子井戸が非磁性スペーサー層を介して結合する二重量子井戸構造をMBE法で作製した。磁性井戸の影響でスピン偏極する非磁性井戸局在励起子の発光の円偏光度を評価した結果、励起子の偏極度のスペーサー層厚および励起子エネルギー差依存性を確認した[31]。非磁性半導体量子井戸(2次元励起子)と磁性半導体層(2次元配列磁性イオン)を組み合わせた構造の試料および非磁性半導体量子細線井戸(1次元励起子)と磁性半導体細線(1次元配列磁性イオン)を組み合わせた構造の試料を MBE 法で作製し、非磁性井戸局在励起子の偏光磁気 PL 測定から次元性の特徴を見出した。これと並行して、スケールされない階層構造と散逸過程の分析に基づくデバイス機能原理に基づいて[3,4]、具体的に評価可能な光近接場励起輸

送機構を実現する素子製作と評価技術開拓のために、超高真空極低温強磁場プローブ顕微分
光装置によるナノ光励起輸送過程計測と階層的近接場光相関評価実験を推進した。

局所光シミュレーション技術の開発

局所光シミュレーション構築の基盤である階層構造的デバイス構成と階層構造的計算手法に
基づく局所光機能開発のコンセプトを具体化し、機能と散逸過程の理論解析、情報通信システム
理論、計算機シミュレーション、相互作用モデル構築を推進した。

近接場光の効率的な数値シミュレーションに必要な基礎的知見を得るために、微分方程式の
差分化による解析誤差を詳細に分析し[6～9, 26,29,30]、特異積分方程式である
Lippmann-Schwinger 方程式を定式化して、その解の存在と一意性を数値計算機援用証明す
るためのベッセル関数とハンケル関数の精度保証付き数値計算法を開発した。並行して、順問題
的取り扱いを補完する Maxwell 方程式にまつわるモデリングと逆問題としての取り扱い、さらに近
接場光リソグラフィー技術開発に不可欠な順逆両問題の融合的利用のために有効な Kernel 関
数に基づく数理モデルを、他分野における数学的に同種の問題に適用し有用性を評価した [1,
10, 11]。併せて、ナノとマクロ、メゾを機能的に連結する階層性の概念を記述する数学的枠組み
の研究も行った [12, 25]。さらに、フォノン自由度を取り入れたナノ光電子系の基礎理論研究を
進展させ[13~15,17]、1次元モデルから2次元格子モデルへの展開、その擬1次元ナノ系への還
元手法と、これに基づく光・電子(分極)・フォノン相互作用系の振舞いの研究を推進し、光子のホ
ッピング定数と光子・フォノン相互作用定数に依存する繰込まれた光子の局在性を明らかにした
[27]。並行して、スピン自由度を考慮した量子ドット間の励起移動を検討し、光近接場に特徴的な
励起移動の素過程の解明を推し進め、III-V 族半導体を材料例として、励起移動後の電子のスピン
偏極度に関する数値解析を行い、量子ドット配置によるスピン偏極度制御の可能性を明らかに
するとともに[16]、緩和過程も含めた考察に着手した。

ナノ情報通信システム設計原理の構築

前年度に引き続き、局所光に特徴的な階層性に注目した環境設計による相関距離制御等の基
礎技術を構築し、光接続、固有性保証技術等の応用的観点に立ち、局在光に唯一到達可能な諸
原理を備えつつ社会の要求と適合したシステム基礎技術開発を進展させた。本年は特に、アンギ
ュラー・スペクトル展開を用いた階層性の理論解析およびシステム設計を進捗させた[5]。これを展
開して、光励起移動を動作原理とするデバイスと、配線構造を必要とする従来の電子デバイスに
おける信号輸送の原理的差異について、エネルギー散逸とそれに必要な空間スケールに着目し
た理論解析を行い、デバイスの安全性(耐タンパー性)を明らかにした[2]。また、局在光の階層性
を用いたナノ加工技術とその分析を試みた[3]。

量子機能創生

分子架橋の電子輸送における散逸と環境効果の理論を研究し、局所光の理論と電子系の理論
を融合したナノ光電子理論を展開した[18~20]。有機分子薄膜・分子架橋におけるポーラロン伝
導と非ポーラロン伝導の競合・共存を研究し、各種ポリアセン系の電圧-電流特性を解析した。固
有状態を変分法によって求めトランスファー積分が大きくなるにつれ擬ポーラロン型状態から非ポ

一ラロン状態へと移り変わる状況を解析した。固有状態間の振動励起を伴う遷移確率を算出し、キャリアの移動速度を解析した。擬ポーラロン状態は分子軌道成分による裾を持ち、これによりキャリアの移動速度が支配されることを明らかにした。このモデルによりポリアセン極薄膜モデルの非線形電流電圧特性を解析した。タンパク質 GFP を圧縮すると、蛍光強度が弱まる現象のメカニズムを理論的に解明した。単一分子架橋系について、クーロン障壁と類似したポーラロン障壁現象を予測した。各種ポリアセン誘導体の結晶構造とエネルギーバンドを理論的に計算し、有望な分子誘導体を予測した。実験研究では、量子光電子機能探索のために、トンネル電子注入による分子発光分光を進展させ、近接場ナノ光リソグラフィーで作成したホールアレイにカーボンナノチューブを介して発光分子を担持する構造を考案し、カーボンナノチューブを通じて電子励起した分子の発光をホールアレイを通して検出し、ナノスケール分子発光系の複雑な相関形成を解明しデバイス応用を目指す、励起相関スペクトル測定機構の構築と実験を行った[23]。局所光機能に量子効果を付与するスピクラスター創生の基礎技術開発では、2重磁気光学トラップから希ガス基板へのスピン偏極原子誘導系の整備を進め[22,23]、冷却原子集団のスピン偏極・計測、その高密度化を図る、2次元スピン偏極光近接場[28]表面トラップ開発と、30倍の濃縮を実現可能な近接場光デバイスの設計作製を行った[21]。希ガス単結晶基盤の電子線回折評価では特徴的な12回対称を観測しこれを分析するとともに、走査プローブ顕微鏡下での電子放出とMott散乱型電子スピン検出系の結合系に関わる要素技術研究をスピン系計測技術開発のために進展させた。

ナノ空間励起輸送・散逸過程の解析と局所光・電子系のサイエンス構築

理論研究では、ナノ光電子機能をより具体化し、多数の半導体量子構造間の励起輸送と相関制御機構の開拓、局所光電子機能システム設計理論、ナノ光電子機能に関わる散逸と階層的接続による情報伝達等について、広い視野に立つ融合科学の基礎概念構築を目指す研究を進展させた。今年度は特に、ナノスケールにおけるトンネルと散逸について、揺らぎを取り入れたマクロ変数の発展方程式(ランジュヴァン方程式)の導出に成功した。ナノスケールでは、巨視的変数に対する発展方程式において、揺らぎが無視できない効果として存在する。本年は、以前から懸案であった揺らぎの評価についてやや前進することができた。もともとマクロな熱力学的方程式は非線形であり、「森公式」のような線形ランジュヴァン方程式の解析は不可能であるが、局所平衡分布を導入し、その時間依存パラメータが時々刻々の変数の揺らぎに依存する、という形式にすることで、揺らぎを取り入れたマクロ変数に対する発展方程式が導かれた。この方法論は、量子系に対しても同じ形式となり、今後、量子系についての拡張を試みる。

3. 研究実施体制

(1)「堀」グループ

①研究分担グループ長:堀 裕和(山梨大学大学院、教授)

②研究項目

- ・ナノ電子機能の創生

(2)「大石」グループ

①研究分担グループ長:大石 進一(早稲田大学理工学術院、教授)

②研究項目

- ・局所光シミュレーション

(3)「小林」グループ

①研究分担グループ長:小林 潔(東京工業大学、特任教授)

②研究項目

- ・局在光励起輸送の理論展開

昨年度の研究内容を基礎にして、今年度は主に以下の内容について研究を進めた。

- (1) 光子と電子励起の重ね合わせ状態である準粒子を用いた局在光子の記述法を拡張して、フォノン励起を含有する局在光理論モデルを構築する。
- (2) ナノ領域に特徴的なスピン励起移動の素過程を解析する。

(4)「成瀬」グループ

①研究分担グループ長:成瀬 誠(独立行政法人 情報通信研究機構新世代ネットワーク研究センター、主任研究員)

②研究項目

- ・局所光を用いた情報処理システムの基盤技術の研究

(5)「北原」グループ

①研究分担グループ長:北原 和夫(国際基督教大学、教授)

②研究項目

- ・局所光励起輸送の電磁界及び統計力学理論の展開

(6)「塚田」グループ

①研究分担グループ長:塚田 捷(早稲田大学、教授)

②研究項目

- ・ナノ光電子系の理論とシミュレーション

(7)「根城」グループ

①研究分担グループ長:根城 均(物質・材料研究機構、主席研究員)

②研究項目

- ・電子トンネル励起型分子架橋ナノデバイスの研究

(8)「伊藤」グループ

①研究分担グループ長:伊藤 治彦(東京工業大学大学院、准教授)

②研究項目

- ・近接場光ファネルを用いたスピン偏極原子誘導とスピクラスタ形成

4. 研究成果の発表等

(1) 論文発表(原著論文)

(国内)

- [1] 田邊國士: 帰納推論機械 PLRM と dPLRM - - 方法論、モデル、アルゴリズムおよび応用, システム/制御/情報、Vo.51. No.2, pp.87-95, 2007.

(国際)

- [2] M. Naruse, H. Hori, K. Kobayashi, and M. Ohtsu: Tamper resistance in optical excitation transfer based on optical near-field interactions, *Optics Letters*, Vol. 32, Issue 12, pp. 1761-1763, June. 2007.
- [3] M. Naruse, T. Yatsui, H. Hori, K. Kitamura, and M. Ohtsu: Generating small-scale structures from large-scale ones via optical near-field interactions, *Optics Express* Vol. 15, pp. 11790-11797, Aug. 2007.
- [4] H. Hori: Function and fundamental processes of nano-optoelectronics devices, *Proc. SPIE*, vol. 6642, 664211 (2007).
- [5] M. Naruse, T. Inoue, and H. Hori: Analysis and Synthesis of Hierarchy in Optical Near-Field Interactions at the Nanoscale Based on Angular Spectrum, *Japanese Journal of Applied Physics*, Vol. 46, No. 9A, pp. 6095-6103, Sep. 2007.
- [6] S. Oishi, K. Tanabe, T. Ogita, S. M. Rump: Convergence of Rump's Method for Inverting Arbitrarily Ill-conditioned Matrices, *Journal of Computational and Applied Mathematics*, 205:1 (2007) 533-544.
- [7] T. Nishi, Y. Nakaya, T. Ogita, S. Oishi: A Class of Ill-conditioned Nonlinear Algebraic Equations, *Proceedings of 2007 International Symposium on Nonlinear Theory and its Applications*, Vancouver, Canada, (2007) 172-175.

- [8] T. Ogita, S. Oishi: Tight Error Bounds for Approximate Solutions of Linear Systems, Proceedings of 2007 International Symposium on Nonlinear Theory and its Applications, Vancouver, Canada, (2007) 345-348.
- [9] K. Ozaki, T. Ogita, S. M. Rump, S. Oishi: Accurate Matrix Multiplication with Multiple Floating-point Numbers, Proceedings of 2007 International Symposium on Nonlinear Theory and its Applications, Vancouver, Canada, (2007) 337-340.
- [10] Birkenes, T. Matsui, K. Tanabe and T.A. Myrvoll: N-best rescoring for speech recognition using penalized logistic regression machines with garbage class, Proceedings of 2007 International Conference on Acoustics, Speech, and Signal Processing (IEEE-ICASP2007), 2007.
- [11] T. Aso, B. Gustavsson, K. Tanabe, U. Braendstrom, T. Sergienko and I. Sandahl: A proposed Bayesian model on the generalized tomographic inversion of aurora using multimodal data, Proceedings of the Kiruna Optical Meeting. 2007.
- [12] A. Kitada, Y. Ogasawara, T. Yamamoto: On a dendrite generated by a zero-dimensional weak self-similar set, Chaos, Solitons & Fractals, 34 (2007) 1732-1735.
- [13] T. Yatsui, T. Kawazoe, K. Kobayashi, and M. Ohtsu: Near-field components and evaluation of the photoluminescence in Si nano-structure, Journal of Nanophotonics, Vol. 1, 011570-1-5 (2007).
- [14] T. Kawazoe, K. Kobayashi, and M. Ohtsu: Initial growth process of a Zn nanodot fabricated using nonadiabatic near-field optical CVD, Journal of Photopolymer Science and Technology Vol. 20, 129-131 (2007).
- [15] Y. Tanaka and K. Kobayashi: Spatial Localization of an Optical Near Field in One-Dimensional Nanomaterial System, Physica E Vol. 40, Issue 2, 297-300 (2007).
- [16] A. SATO, F. Minami, and K. Kobayashi, "Spin and Excitation Energy Transfer in a Quantum-Dot Pair System through Optical Near-Field Interactions," Physica E Vol. 40, Issue 2, 313-317 (2007).
- [17] A. Sato, Y. Tanaka and K. Kobayashi: Spatial Localization of an Optical Near Field Dressed by Coherent Phonons, AIP Conference Proceedings Vol. 893, 859-860 (2007).
- [18] U. Nagashima, T. Sasaki and M. Tsukada, Some Simulation Techniques for Surface Analysis, *Systems Modeling and Simulation Theory and Applications*, Asian Simulation Conference 2006 Proceedings, Springer (2007) 352-356

- [19] M.Tsukada, K.Tagami, Q.Gao and N.Watanabe, Theoretical Simulations of Scanning Probe Microscopy for Organic and Inorganic Materials Current Nanoscience 3, (2007) 57-62
- [20] K.Tagami and M.Tsukada, Atomistic simulation of compression of single human serum albumin molecule by AFM tip, , J. Phys, Conf. Ser. 61 (2007) 1122-1126
- [21] T. Sato, H. Ito: Sub-100-nm-wide slit for detecting ground state atoms with near-field photoionization, J. Nanophoton. Vol. 1, 011560, 2007.
- [22] S. Srinivas and E. Torikai: A Density Functional Study of the Structure and Self-Organization in Spin Clusters, J.Mag.Mag.Mat., 310 (2007) 2390-2391.
- [23] E. Hirose and E. Torikai: Spin Dependent Scattering of Cs Atoms from Ferromagnetic Surfaces, J. Mag. Mag. Mat., 310 (2007) 2740-2742.
- [24] H.Nejo, Y.Maeda and T.akasaka, The topological structures of the debundled dingle-walled carbon nanotubes on a grid, Materials Transactions 48, 711 (2007)
- [25] A. Kitada, Y. Ogasawara: Note on a property specific to the tent map, Chaos, Solitons & Fractals, 35 (2008) 104-105.
- [26] T.Yamamoto, S.Oishi and Q.Fang: Discretization principles for linear two-point boundary value problems, II. Numer. Funct. Anal. Optimz. 29 (2008) 213-224
- [27] Y. Tanaka and K. Kobayashi, "Optical near field dressed by localized and coherent phonons," Journal of Microscopy Vol. 229, Pt.2, 228-232 (2008).
- [28] Y. Ohdaira, T. Inoue, H. Hori, and K. Kitahara, "Local circular polarization observed in surface vortices of optical near-fields", Optics Express, Vol. 16, Issue 5, pp. 2915-2921, 2008.

(in press)

- [29] T. Ogita, S. Oishi: Tight Enclosures of Solutions of Linear Systems, International Series of Numerical Mathematics, Birkhauser Verlag, in press.
- [30] N. Yamanaka, T. Ogita, S. M. Rump, S. Oishi: A Parallel Algorithm for Accurate Dot Product, Parallel Computing, in press.
- [31] M. Ito, M. Tajima, K. Omori, T. Muranaka, Y. Nabetani, T. Kato and T. Matsumoto, Magneto-Optical Properties of ZnMnSe-ZnSe-ZnCdSe Quantum Structures, to be published in the II-VI 2007 conference proceeding.