

「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構築には、ナノ空間で固有の信号伝達機能を持つ基本素子と、これを複合的に機能させマクロな信号を得るインターフェースの開発が必須である。本研究では、信号情報伝達の本質が電磁氣的励起の輸送とその制御にあることに注目し、素子のナノ化から機能のナノ化へと研究を転換し、近接場光による励起移動で機能するデバイスの近接場光による作成と、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する。ナノ光電子機能創生の基盤となる「スピントランスポール制御励起移動デバイス製作」、「局所光シミュレーション技術の開発とナノリソグラフィへの適用」、「量子機能創生のための分子架橋系およびスピントランスポール系の基礎研究」、「ナノ情報通信システム設計理論の構築」を推進し、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。初年度は、全体計画に従い、ナノ光電子機能の創生に向けた素過程研究を推進するとともに、デバイス創生の基盤技術開発においては、実験環境の整備を行った。

スピントランスポール埋め込み量子井戸構造の作製と評価では、MBE 装置の整備改造と磁気光学特性測定装置の設計、近接場励起輸送計測の実験環境整備を行った。ナノリソグラフィの基盤として、近接場量子光学における逆問題のモデリングに関する基礎的検討を開始し、また局所光シミュレーションの基盤として、基礎方程式を離散化した方程式の数値計算精度を保証する基礎理論を構築した。近接場光学に基づくナノスケールの情報通信システムとして、階層型光電子機能システムを研究し、動作原理と諸特性を評価した。量子デバイス研究では、有機分子架橋系および有機分子薄膜における輸送現象の理論、特に分子振動の影響を明らかにし、分子架橋発光系の理論的設計の指針を得るとともに、分子架橋とナノ光電子デバイスを結合する光励起注入とトンネル電子注入励起の実験研究を推進した。あわせてスピントランスポール生成と計測の技術開発を進展させ、高密度の冷却スピントランスポール原子の生成系からの原子堆積の環境整備を進めた。量子系を含めたナノ光電子機能探索のために、ミクロとマクロを結びつける非平衡熱力学と局所平衡アンサンブル理論、多成分系ならびに輻射場を入れた非平衡熱力学ならびに非平衡統計理論を構築し、ナノスケールにおける揺らぎと非平衡現象の特徴、格子欠陥の動的現象とその量子性について検討した。

これらの研究基盤に基づき、18年度からデバイス創生研究を推進し、研究目標の達成を目指す。

2. 研究実施内容

研究全体の推進

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、ナノ光電子機能創生の基盤となる「スピントラップ制御励起移動デバイス製作」、「局所光シミュレーション技術の開発とナノリソグラフィへの適用」、「量子機能創生のための分子架橋系およびスピントラップ系の基礎研究」、「ナノ情報通信システム設計理論の構築」の研究課題を推進した。これらの成果を基礎として、18年度から、具体的なデバイス創生に向けて研究を推進する。

ナノ光電子機能の創生；スピントラップ制御励起移動デバイス製作

スピントラップ制御励起移動デバイスの製作と機能評価は、コアグループの松本、鍋谷、堀が中心となり推進する。スピントラップ励起移動は、単一量子井戸構造の近傍に作り込んだスピントラップと井戸内局在励起子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。スピントラップは微傾斜基板の原子ステップ上への分子線エピタキシー(MBE)技術で製作する。本年度はMBE装置の整備と並行して、量子井戸局在励起子の磁気光学特性をとおしてスピントラップの特性を評価するための「強磁場極低温スピントラップ評価装置」を設計した。これと並行して、スピントラップ埋め込み量子井戸構造における近接場光励起輸送を、ナノメーター分解能で計測するために、超高真空極低温走査型プローブ顕微鏡系の設計と基盤技術の整備を行った。

局所光シミュレーション技術の開発とナノリソグラフィへの適用

大石グループは、近接場量子光学における逆問題のモデリングに関し、基礎的な検討を開始した。具体的には、所定の構造を生み出すマスクパターンを逆算し、その作製を実現するための確率的学習機械を生成するのに必要な実験データを取得するための実験方式について検討を進めた。また、局所光シミュレーションの基礎として、基礎方程式を離散化した方程式の数値計算の精度を保証するための基礎理論を構築し、数万次元の大規模な連立一次方程式の新しい精度保証アルゴリズムの開発、疎行列を係数行列にもつ連立一次方程式の精度保証法の基礎的検討、さらに浮動小数点を成分とするベクトル間の内積をその条件数に応じて適応的に必要な精度まで計算する、浮動小数点演算だけで実現できる高速なアルゴリズムを開発した。

小林グループは、ナノ光電子機能の設計に必要な不可欠な動作原理・シミュレーションの基礎理論の構築と、ナノ領域に局在する光とナノ物質の相互作用する系の特徴を抽出し、光子と電子励起に加えて、フォノン、スピン自由度の働きを明らかにすることを目的とし、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記述法の拡張による、フォノン励起を含

有する局在光理論モデルの考察、これに基づくナノ領域に特徴的な励起移動の素過程の議論、その過程が顕著に現れる系の探究を行った。特に、励起子フォノンポラリトンモデルを立て、ナノ領域での近接場光化学反応を考察し、伝搬光では禁制な基底状態分子の振動励起が可能になること、その際コヒーレントフォノンが重要な役割を果たすことを示した。これらは近接場光のナノ領域での特徴的な励起移動と考えられるので、一次元系を対象により詳細に検討し、デバイス機能開発への適用を検討する。

ナノ情報通信システム設計原理の構築

成瀬グループとコアグループ堀、井上は、局在光の有する顕著な属性の一つである階層性に注目し、近接場光のアンギュラー・スペクトル展開に基づいて階層性の理論解析を試みた。その結果、分極の配置と階層性の関連性が見通しよく把握され、FDTD シミュレーションとよく一致する傾向を得た。この結果に基づいて、所望の階層性を実現するためのシステム設計論についてその初期的な形態に到達することができた。さらに、上記の階層性の設計を含む、相関距離の制御問題に関連して、微小球の寸法及び配置に依存した電磁場環境の変化をアンギュラー・スペクトル展開に基づいて解析した。これらの局所光に特徴的な階層性に基づいて、今後、電磁場環境設計による相関距離制御などの基礎技術を構築するとともに、社会の要求と適合したシステム基礎技術を開発する。

量子機能創生

塚田グループは、量子系のナノ光電子機能の基礎理論研究を推進し、分子架橋系の輸送現象では、チオフェン分子列の架橋系などを例にとり、分子振動と電子（または正孔）の相互作用によるポーラロン形成に伴うホッピング的な伝導機構への移行を解析した。まず、非ポーロン状態（分子軌道状態）とポーラロン状態の混成状態として、電場が印加されている系の固有状態を求めた。次に、各固有状態間の振動励起に伴う遷移確率を黄金則によって算出し、マスター方程式を数値的に解いて、空間的、エネルギー的な電子（または正孔）の輸送パスを解析した。結果としてコヒーレントな輸送と散逸的な輸送とが共存する様相が解明された。分子架橋系の理論設計では、発光中心に Zn ポルフィリンを用い、これに中心炭素原子を B または N で置換したフェナレニル誘導体分子鎖を、電子中または正孔注入鎖として用いる系を考案した。現象論的な分子軌道計算を行い、キャリアの発光中心への誘導に適していることを見出した。

根城グループは、分子架橋系による量子機能創生と、ナノ光電子デバイスの動作に不可欠な、光による励起注入とトンネル電子注入励起の基礎技術開拓を目指し、トンネル接合内の分子のトンネル電子注入発光の実験を発展させ、クローン・ブロッケイドに伴う分子における電磁場の散逸をラマン分光の手法で検出する方法を検討し、実験環境の整備を行った。今後、この原理を分子架橋構造にも適用し、デバイス化を目指し、局所光による量子機能を探求する。

コアグループ鳥養、堀と伊藤グループは、スピクラスター創生の基礎技術開発を推し進め、高出力周波数安定化レーザーを導入し、アトムフォトニクスによる原子堆積技術と組合せるた

めの実験計測環境の整備した。伊藤グループは、磁気光学トラップで生成した冷却Rb原子のスピンの偏極を行い、アルゴン原子基板上に堆積させてスピクラスタをつくることを目指して、磁気光学トラップ装置における冷却Rb原子の生成実験を行い、少数個の原子を検出する光イオン化に必要な高出力アルゴンイオンレーザを整備し、必要なパワーで発振できるようにした。スピンによる量子機能計測のために、コアグループの居島は、RHEEDモードスピンSEMを補完する計測法として、走査プローブ顕微鏡探針への光照射により試料から発生する光電子のスピン分析を考案し、超高真空環境で動作する原子間力顕微鏡系の構築を推し進めた。

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

理論研究はコアグループの堀、井上、安久が推進し、近接場光相互作用の量子光学理論を進展させ、成瀬グループ、大石グループと協働して、多数の半導体量子構造間の励起輸送の相関を制御する機構を開拓することで、ナノ光電子機能のコンセプトを研究グループ全体で共有する基盤を築いた。局所光の電磁界理論および量子光学理論においては、ナノメーター空間における散逸と励起輸送の素過程を局所的に記述する体系と、それに伴う先進波と遅延波の取り扱いなどの諸問題を分析し、今後取り組むべき課題を明らかにした。

北原グループは、ナノデバイスの機能評価の基礎として、非平衡統計力学の手法による研究を推進した。非平衡状態における巨視的変数（観測量）の時間発展について、エントロピー生成に寄与する不可逆過程は示強パラメータ（巨視的変数に関するエントロピーの微係数）の線形結合で表現できることが、オンサーガーの現象論から知られており、その結合の係数の対称性については、揺らぎの時間反転対称性に由来する対称性が知られている。本研究では、エントロピー生成に寄与しない可逆項が、示強パラメータについて反対称であることが、局所平衡アンサンブル理論から証明できることを示した。その反対称性を表す係数の表式も厳密に与えられる。従って、多成分系、ならびに、輻射場を含む系についての非平衡熱力学（すなわち、巨視的変数に関する現象論）の可能性がでてきた。多成分系としては、ナノスケールで、ホストの凝縮相と不純物からなる系であり、不純物の拡散などの運動を記述するものである。輻射場は、現象論的には、物質を特徴づける誘電率、透磁率と物質中の電場、磁場であるが、そのような平均値からの統計的揺らぎを記述する方向への拡張を18年度に行う。

3. 研究実施体制

「堀」グループ

- ① 研究分担グループ長：堀 裕和（山梨大学大学院医学工学総合研究部、教授）
- ② 研究項目：研究全体の推進と取りまとめ、スピチェーン励起移動デバイスの設計製作評価解析、スピクラスタの創生、局所光電磁界理論、局所光量子光学理論

「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：近接場量子光学における逆問題のモデリングと計算アルゴリズム、ナノ光リソグラフィ技術・微細構造作成技術シミュレーション

「小林」グループ

- ① 研究分担グループ長：小林 潔（東京工業大学大学院理工学研究科、特任教授）
- ② 研究項目：局在光励起輸送の理論展開
 - (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考察する。
 - (2) (1) に基づくモデルにより、ナノ領域に特徴的な励起移動の素過程を議論する。
 - (3) (2) の過程が顕著に現れる系を探究する。

「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 情報通信部門、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

「北原」グループ

- ① 研究分担グループ長：北原 和夫（国際基督教大学教養学部、教授）
- ② 研究項目：局所光励起の電磁界及び統計力学理論として、主として以下の三つの内容について研究を推進する。(1) ナノスケールにおけるトンネルと散逸 (2) ボーズアインシュタイン凝縮系の励起と緩和 (3) フォトニック結晶中の欠陥の影響

「塚田」グループ

- ① 研究分担グループ長：塚田 捷（早稲田大学理工学術院、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開発、トンネル電子励起分子架橋デバイスの開発

「根城」グループ

- ① 研究分担グループ長：根城 均（独立行政法人物質材料研究機構 ナノマテリアル研究所、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

「伊藤」グループ (研究機関別)

- ① 研究分担グループ長：伊藤 治彦 (東京工業大学大学院総合理工学研究科、助教授)
- ② 研究項目：冷却Rb原子のスピン偏極

4. 主な研究成果の発表

(1) 論文 (原著論文) 発表

- 安久 正紘、「遅延波と先進波 - 近接場光学における先進波の役割」, 0 plus E, Vol. 27, No. 12, pp. 1423-1426, 2005.
- 井上 哲也、「近接場光信号伝送の基礎過程- 近接場光と励起のトンネル現象」, 0 plus E, Vol. 27, No. 12, pp. 1418-1422, 2005.
- 宮島 信也, 荻田 武史, 大石 進一: 実対称行列の各固有値に対する精度保証付き数値計算法, 日本応用数学会論文誌, 15:3 (2005), 253-268.
- 太田 貴久, 荻田 武史, S. M. Rump, 大石 進一: 悪条件連立一次方程式の精度保証付き数値計算法, 日本応用数学会論文誌, 15:3 (2005), 269-287.
- 荻田 武史, 大石 進一: 大規模連立一次方程式のための高速精度保証法, 情報処理学会論文誌: 数理モデル化と応用, 46:SIG10 (TOM12) (2005), 10-18.
- 成瀬 誠、「近接場光からシステムへ - 近接場光相互作用を用いた光システム」, 0 plus E, Vol. 27, No. 12, pp. 1399-1403, 2005.
- 長嶋雲兵, 佐々木徹, 大谷泰昭, 上原正光, 塚田捷, 村上和彰, 科学技術計算専用ロジック組込み型プラットフォーム・アーキテクチャ技術をもちいた化学計算専用計算機の開発 - 概要と成果 -, 日本コンピュータ化学会誌 (J. Comput. Chem. Jpn.) 4 (2005) 131-138.
- 塚田捷, 表面・界面そしてナノ構造の理論、固体物理 41 (2006) 67-79.
- T. Inoue, Y. Ohdaira, and H. Hori, "Theory of transmission and dissipation of radiation near a metallic slab based on angular spectrum representation", IEICE Trans. Electron., vol. E88-C (2005) pp.1836-1844.
- E. Torikai, H. Hori, E. Hirose, K. Nagamine, "Electron transfer in DNA probed by the muon labeling method: A new interpretation", Physica B 374-375 (2006) 441-443.
- T. Yamamoto, S. Oishi: A Mathematical Theory for Numerical Treatment of Nonlinear Two-Point Boundary Value Problems, Japan Journal of Industrial and Applied Mathematics, 23:1 (2006), 31-62.
- T. Ogita, S. M. Rump, S. Oishi: Accurate Sum and Dot Product, SIAM Journal on Scientific Computing, 26:6 (2005), 1955-1988.
- R. Tamura, M. Ikuta, T. Hirahara and M. Tsukada, Positive magnetic susceptibility in polygonal nanotube tori, Phys. Rev. B71 (2005) 0454181-0454187.
- T. Matsui, H. Kambara, Y. Niimi, K. Tagami, M. Tsukada and H. Fukuyama, STS Observations of Landau Levels at Graphite Surfaces, Phys. Rev. Lett. 94 (2005) 2264031-2264034.

- Y.Niimi, T.Matsui, H.Kambara, K.Tagami, M.Tsukada and H.Fukuyama, Scanning tunneling microscopy and spectroscopy studies of graphite edges, *Appl. Surf. Sci.* 241 (2005) 43-48.
- M.Tsukada, K.Tagami, K.Hirose and N.Kobayashi, Theory of Quantum Conductance of Atomic and Molecular Bridges, *J. Phys. Soc. Jpn.* 74 (2005) 1079-1092.
- K.Mitsutake and M.Tsukada, Theoretical study of electron-vibration coupling on carrier transfer in molecular bridges, *e-J. Surf. Sci. Nanotechnol.* 4 (2006) 311-318.
- H. Ito, K. Yamamoto, A. Takamizawa, H. Kashiwagi, T. Yatsui, “Deflecting, focusing, and funneling atoms by near-field light,” (invited paper), *Journal of Optics A: Pure and Applied Optics*, SPECIAL ISSUE: Fundamentals of Nano. photonics, Vol. 8, No. 4, 2006, pp. S153-S160.