

ナノ構造体における光励起電子ダイナミクス

Photoexcited Electron Dynamics in Nanostructures

代表者氏名: 飯田健二

所属: 分子研

1. 研究目的

数〜十数ナノメートルサイズのナノ構造体は、柔軟な電子構造や化学的性質の多様性を有し、更には光との相互作用の結果、小さな分子系もしくはバルクとは異なる多彩な光・電子機能を発現しうる可能性を秘めていることから、基礎学術的にもまた応用科学の観点からも高い関心もたれている。我々のグループでは、このような多様な性質を持つナノ構造体の光励起電子ダイナミクスを理論的・計算科学的手法を用いて明らかにし、光エネルギー変換、光エネルギー伝搬、光触媒活性等の光・電子機能を持った物質を理論設計することを目標として研究を進めてきた。これまで、ナノ構造体の実時間・実空間光誘起電子ダイナミクスを記述することができる第一原理計算プログラム(SALMON: Scalable Ab-initio Light-Matter simulator for Optics and Nanoscience)の開発に携わりつつ、数ナノメートル程度の大きさを持つナノ構造体(金属クラスター、金属有機骨格 (MOF)、半導体など)の光学応答の機構を解明してきた。

本年度も、これまでに引き続き、近接場光を用いたシリコンの光励起の研究を進めるとともに[1]、二次元層状物質を積層したヘテロ構造における光誘起電子移動について、グラフェンの欠陥に対する依存性を明らかにした。また、近接場光励起による高次高調波発生機構について、基礎的メカニズムを解明した[2]。

2. 研究成果の内容

二硫化モリブデン-グラフェン系における欠陥による光学応答の変化

グラフェンや遷移金属ダイカルコゲナイド等の二次元層状物質を用いた光検出器等のデバイス開発が急速に進められており、系を構成する個々の物質の物性だけからでは説明出来ない光学応答現象が徐々に見出されている。しかし、それらの系の光電子機能を理解し設計するには、界面電子系特有の光誘起電子ダイナミクスについての原子レベルの知見が求められる。そこで我々は、SALMONを用いてMoS₂-Grapheneヘテロ構造における光誘起電子移動の機構を解析した。

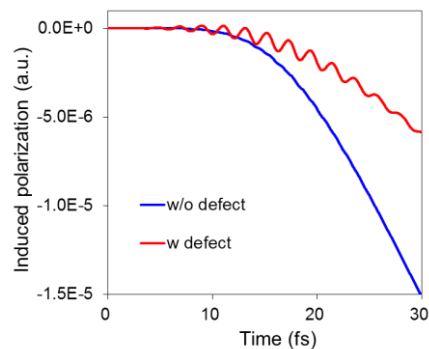


図 1. MoS₂-Graphene ヘテロ構造における光誘起電子移動。

図1に示したのは、グラフェンに欠陥がある場合とない場合の、原子層に垂直な方向の光誘起電子分極である。グラフェンから MoS_2 への電子移動に由来する大きな分極が生じており、グラフェンに欠陥が無い場合(青)に比べて欠陥が有る系(赤)では、電子分極の大きさが三分の一程度になっている。この欠陥に対する依存性を解析したところ、 MoS_2 からグラフェンの欠陥への光誘起電子移動が発現するために、グラフェンから MoS_2 への電子移動が打ち消されるということが明らかになった。

近接場光による高次高調波発生 [2]

第一原理計算に基づきナノ構造体の光学応答についての原子・分子レベルの理解を深めるとともに、それについての基礎的物理の探究を進めた。我々は、モデル系を用いて、近接場光と物質の相互作用によって発現する高次高調波発生の機構を解明した。従来のレーザー光(HF)、空間的に対称な近接場光(ONF(s))、空間的に非対称な近接場光(ONF(a))を量子系に照射した場合の光学応答の比較を行ったところ、等しいパリティを有する HF と ONF(s) では、奇数次の高次高調波が発生した。一方、パリティの異なる ONF(a)では、奇数次に加え、新たに偶数次の高次高調波が発生しており、新規な光学応答を示すことを明らかにした。ここで得られた知見を踏まえて、今後は、実在系の物質を対象として、近接場光を用いた高次高調波発生の研究を進めていく予定である。

3. 学際共同利用として実施した意義

Oakforest-PACS を始めとする最新のスパコンを利用することにより、大規模計算を前提としたシミュレーション法の開発を進めることができた。また、学際共同利用により、様々な所属機関の研究者が連携して研究に取り組むことで、ナノ構造体の光学応答についての理解が深められるとともに、その知見を踏まえてプログラムの開発が進められた。

4. 今後の展望

シリコンの近接場光励起について、これまでの研究[1]を踏まえて、ナノ粒子の大きさや形状に対する依存性を明らかにしていく。それにより、更に高機能な光電子デバイスの開発に資する知見を得ることを目指す。また、モデル系に対して明らかにした近接場光による高次高調波発生についての知見に基づき、SALMON を用いた実在系の光学応答の研究を進めることで、原子レベルの理解が深まっていくと期待される。

シリコン以外の物質を対象とした近接場光励起の機構解明も重要な課題である。特に、近接場光は空間的に局在した光なので、二次元層状物質の光励起を制御する際に有用であると予想される。これまで進めてきた近接場光励起と二次元層状物質の光励起の研究は、二次元層状物質と金属ナノ粒子からなる系の光学応答の機構解明やその電圧の印可による制御へと研究を広げる基盤となるものである。

5. 成果発表

(1) 学術論文

[1] M. Noda, et al., Phys. Rev. Applied, **11**, 044053 (2019).

[2] T. Takeuchi, et al., Phys. Rev. A, **98**, 053440 (2018).

(2) 学会発表

[3] K. Iida, Photoinduced Electron Dynamics of Heterointerface Systems Simulated by Massively Parallel Calculations, International Workshop on Nanoscale electron-phonon interactions via energy dissipation and fluctuation, Tokyo, Japan.

使用計算機	使用計算機 に○	配分リソース*	
		当初配分	追加配分
COMA			
Oakforest-PACS	○	500,000	0
※配分リソースについてはノード時間積をご記入ください。			