

論文の内容の要旨

論文題目 : Electronic Properties of Artificial Molecules (人工分子の電気的性質)

氏名 天羽 真一

半導体 2 重障壁構造を円形に切り出した縦型量子ドットでは、量子力学的閉じ込めと電子間相互作用に起因して、殻構造やフント則といった原子と同様な性質が見られる。このことから、縦型量子ドットは理想的な人工原子として知られており、軌道・スピン占有や電子相関の効果を調べる理想的な系として研究されている。

本論文では、中央の障壁の厚みが異なる 3 種類の半導体 3 重障壁構造を円形に切り出した縦型 2 重量子ドット (人工分子) を用いて分子的な電子状態の研究を行った。人工分子では、電子が 2 つの井戸 (人工原子) をトンネルすることによって、結合状態・反結合状態が生成される。トンネル方向の磁場 (縦磁場)、トンネル方向と直交した方向の磁場 (横磁場)、また、傾斜磁場を印加して、超低温での電気伝導 (励起スペクトロスコピー) を測定し、人工分子の電気的性質・電子状態を明らかにした。

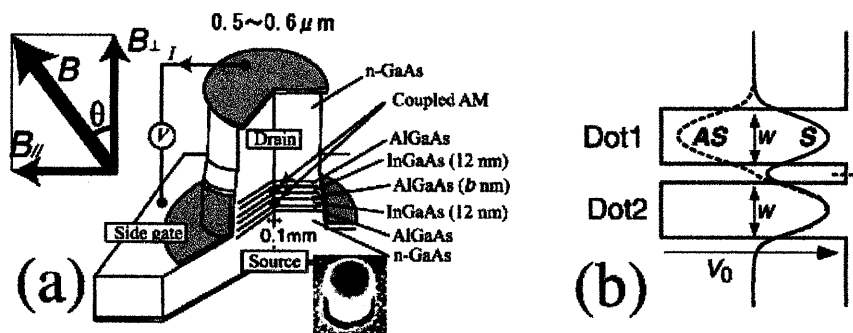


図 1 : 本研究で用いた人工分子の模式図と SEM 写真(a)。中央の 3 重障壁の間に電子が閉じ込められている。周りに付けたゲート電極で電子の化学ポテンシャルを変えながら Source-Drain 電極の電気伝導特性を測定する。縦磁場(B_{\perp})、横磁場(B_{\parallel})、傾斜磁場(B)に対する電気伝導の変化を測定することにより、人工分子の電子状態を検出する。(b)はトンネル結合による結合・反結合軌道の生成したもので、これにより、分子的性質が出現する。

本論文では、まず、電子数が 1,2 の状態を取り上げて議論(第 6 章)した。縦結合人工分子では、自然界の π 結合と同じく、同角運動量をもつもののみが混成するため、同じ縦磁場依存性をもつ。一方、横磁場下では、波動関数がおのおのの原子に局在し、結合が小さくなるため、反結合状態が安定化していく。この点に着目して、1,2 電子の電子状態を明らかにした。まず、同じ電子数 1 の状態において、結合状態の基底状態と同じ縦磁場依存性を持ち、横磁場印加によって安定化する励起状態を見出し、反結合状態の存在を明らかにした。また、その基底状態、励起状態のエネルギー差の横磁場依存性は、磁場の二乗に従うことを明らかにした。これは、理論的な予測と一致する。同様に、電子数 2 の縦磁場での電気伝導特性から、結合状態を 2 個の電子が占有した Singlet 基底状態と、結合・反結合を 1 電子ずつ占有した Triplet 励起状態の存在を明らかにした。そこに横磁場を印加するとそれらのエネルギー準位が逆転し、Singlet-Triplet 遷移が生じることを初めて観測した。その Singlet-Triplet 遷移におけるエネルギー差の磁場変化は、電子がおのおのの原子に局在したモデルである Hund-Mullikan の近似式に Zeeman エネルギーを加えたものと、状態遷移付近では比較的一致していた。これは、Singlet-Triplet の状態遷移付近での二電子状態は、結合状態に電子が埋まった非局在状態と比較的各原子に局在した状態の混在状態であることを示すものであると考察した。

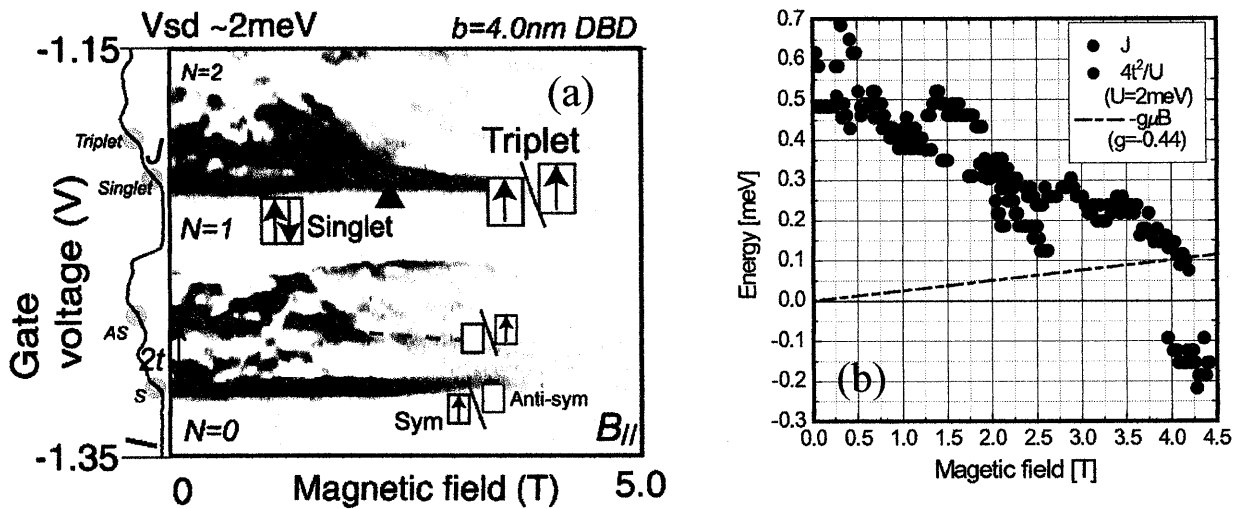


図 2 : 電子数 1,2 の横磁場印加下での励起スペクトロスコピーの結果(a)。青(赤)い四角の中の矢印は、結合(反結合)状態に電子が占有されていることを示している。電子数 1 においては、磁場印加に伴い、グラフ上、下方へ移動している励起状態が見取れ、これは、反結合状態に電子が占有された状態と同定される。一方、電子数 2 においては、基底状態は、結合状態に 2 電子埋まった、singlet 状態が基底状態であるが、横磁場印加に伴い、同様に下方へ移動するものが見られ、これは、結合・反結合軌道に電子が埋まった triplet 状態であると考えられる。そのエネルギー差 J は、Hubbard の式 $4t^2/U$ と比較的一致している。

次に電子数が 4,5,6 の状態に着目し、議論を進めた(第 7 章)。ここでは、自然界に存在する分子と比較し、結合エネルギーの違う人工分子を調べ、結合の強弱による電子状態の違いを明らかにした。量子化学では、分子の結合の強さを表すのに、“結合次数”が使われる。トンネル結合が弱まると、自然界の分子と同様、反結合状態に電子が占有され、イオン結合性を帯び、結合次数の低いものができると予想される。本研究では、反結合状態に電子が占有されやすくなる様子を、結合の強い(中央障壁の厚さ $b=2.5\text{nm}$)、比較的強い($b=3.2\text{nm}$)、弱い($b=4.0\text{nm}$)、3 つの人工分子の電子状態を比較することで、実験的に調べた。まず、結合の強い分子では、電気伝導特性は、人工原子とよく似ており、結合状態のみが占有されていると結論付けた。一方、比較的強い人工分子では、電子数 5 で、ある磁場領域で原子には見られない状態が基底状態(本論文では、“ β ”と呼ぶ)となっていることを明らかにした。その予想は、厳密対角化の理論計算からも裏付けられ、 β 相が、反結合状態の電子占有に起因した分子的な状態(分子相)であることが示された。さらに、傾斜磁場を用いることで横磁場を加えて結合を弱めると、この電子状態が安定化することを実験的に示した。これは、 β 相では、電子が反結合状態に占有されていることを示す一つの証拠となる。さらに結合の弱い分子においては、反結合状態占有やクーロン斥力の変化に伴い、より人工原子とは異なる電気伝導特性を示すことを明らかにした。この結果は、単一電子描像では理解できず、厳密対角化の計算結果を参照することで、電子状態の厳密な同定を行った。その結果、より結合次数の小さい状態が実現されていること、また、その電子密度を考えると、イオンの状態が実現されていると推測した。

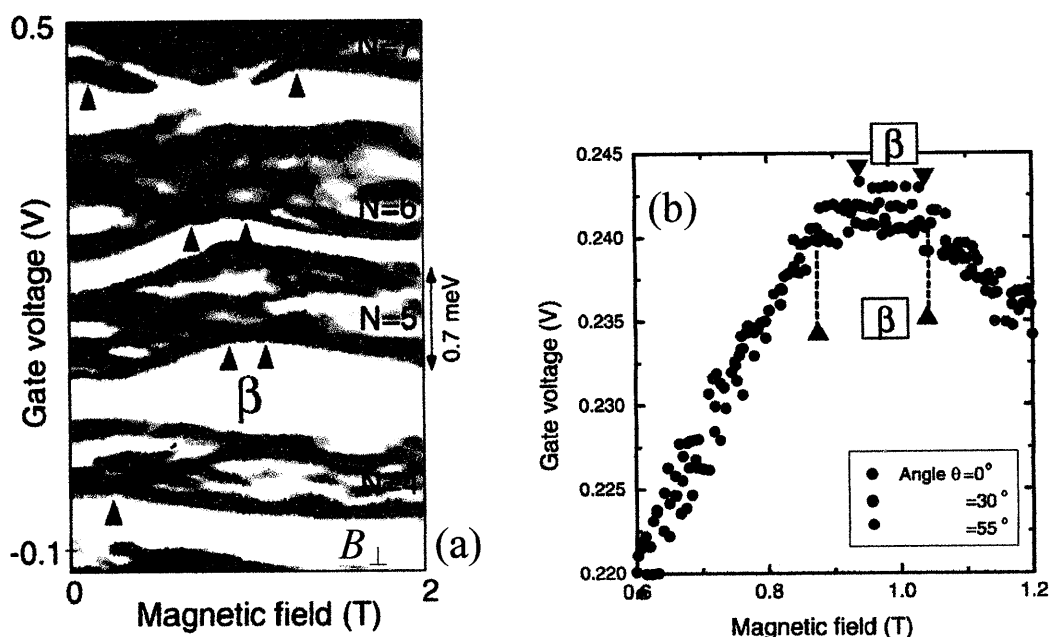


図 3：結合が比較的強い人工分子 $b=3.2\text{nm}$ の励起スペクトル(a).図の β と書かれた領域は、原子では見られなかった基底状態が生じており、分子的な状態：電子の反結合状態の占有に伴う状態であると考えられる。その β 相は、傾斜磁場を印加すると、傾斜角度 θ を大きく

して、横磁場成分を大きくすればするほど安定化することが示された(b)。これは、 β 相では、反結合状態に電子が占有されていることを反映したものである。

さらに、本研究では、結合の変化に伴う人工分子の電子相関の変化にも着目した(第8章)。まず、スピン-スピン相関に伴う状態遷移(電子数2の Singlet-Triplet 遷移、電子数4の Hund's coupling、多電子における Singlet-Triplet-Singlet 遷移)を調べ、電子間の交換相互作用が、人工原子にくらべ減少していることを明らかにした。これは、素子が人工原子に比べ、大きくなっていることに起因している。さらに、人工原子において強磁場領域で安定化する完全スピン偏極状態(MDD: Maximum density droplet)が、人工分子でどのように現れるかを調べた。結合の強い人工分子では、強磁場領域でも原子と似た電気伝導特性を示し、結合軌道からなる MDD 的な状態が実現できていると考えられる。一方、結合の弱い人工分子では、MDD 的な状態が実現されてはいるものの、その間に反結合に電子が占有された MDD 的な状態から、結合状態のみの MDD 的な状態への遷移(isospin flip)が生じるとされていた。しかし、MDD 特有の安定性の確認は行なわれていなかった。本研究では、isospin flip の見られる領域で励起スペクトロスコピーを行い、励起状態を確認することにより、どちらの MDD 的な状態でも、MDD 特有の大きな安定性が見られる傾向を確認した。さらに強い磁場領域では、人工原子の場合とは異なる電子数で人工分子状態の安定化が起こることを見出した。これは、未確認ながら分子に特有の性質と考えられる。

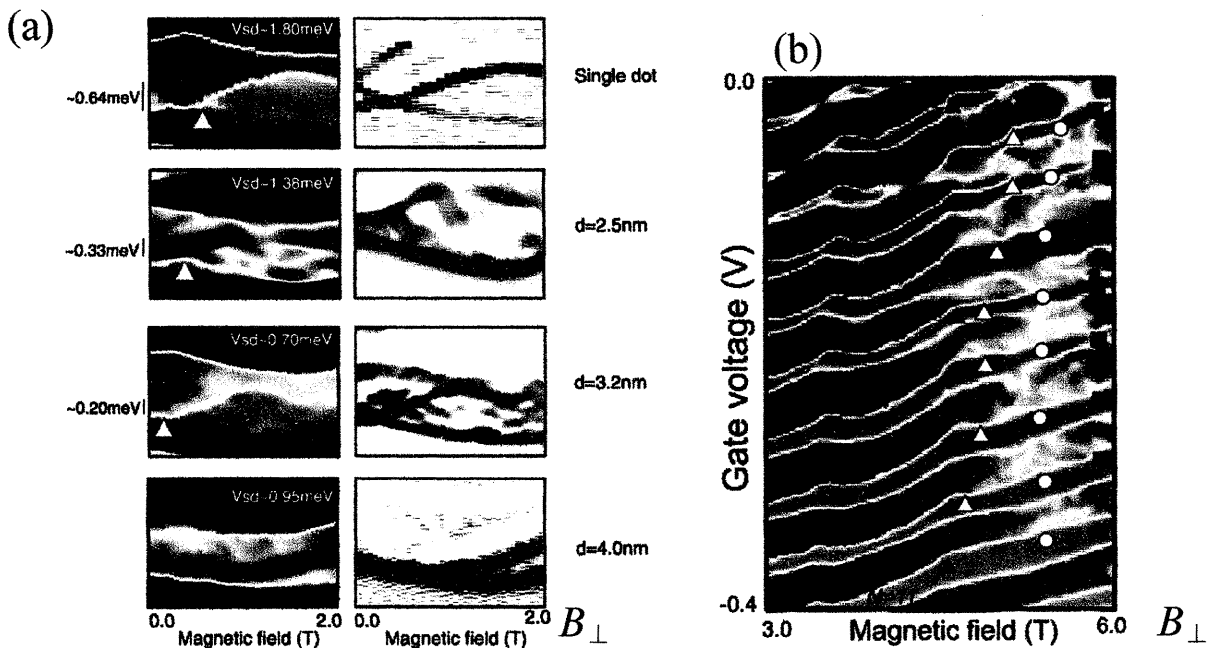


図4:さまざまな人工分子の Hund 結合の様子(a)。結合が弱くなると(図で下の方向)、左に示された Hund 結合のエネルギーは、小さくなっており、分子における電子間相互作用の減少が確認された。また、人工分子の MDD 的な状態での励起スペクトルでは、isospin flip と思われる状態遷移 \circ, \triangle が確認できる(b)。