

シリコン量子ドットにおける電子状態の理論研究

波田陽子

2004年度

目次

第1章	序論	3
1.1	半導体量子ドット	3
1.2	シリコン量子ドット	6
1.3	研究目的と本論文の構成	8
第2章	シリコン単一量子ドットにおける電子・スピン状態	11
2.1	序	11
2.2	モデルと計算方法	11
2.3	Si量子ドットにおける電子状態	15
2.3.1	電子状態	15
2.3.2	一電子付加エネルギー	17
2.4	異方的な閉じ込めの影響	21
2.5	谷間結合の影響	23
2.6	結論と議論	26
第3章	シリコン二重量子ドットにおける電子・スピン状態と交換結合	30
3.1	序	30
3.2	モデル	32
3.3	計算結果	35
3.3.1	異なる谷間のトンネル結合がない場合	35
3.3.2	異なる谷間のトンネル結合がある場合	37
3.3.3	異なる谷間のトンネル結合と量子ドット内での谷間結合の両方がある場合	38
3.4	交換結合の大きさの評価	41
3.5	結論	42
第4章	原子スケールから見たシリコン量子ドットにおける電子状態	43
4.1	序	43
4.2	モデルと計算方法	44
4.2.1	tight-bindingモデル	44
4.2.2	閉じ込めのモデル	44

4.3	計算結果	47
4.3.1	制御可能なポテンシャルの場合	47
4.3.2	水素終端の場合	48
4.4	結論と議論	48
第5章	結論	55
付録A	有効質量近似による一電子準位と電子間相互作用の計算	62
A.1	一電子準位	62
A.2	クーロン積分	63
A.3	交換積分	67
A.4	異方的な閉じ込めの場合の計算	68
A.5	谷間結合がある場合の電子間相互作用の計算	68
付録B	異なる谷の電子間の交換積分の評価	71
付録C	シリコン二重量子ドットにおけるトンネル結合の位相	76
付録D	経験的 $spds^*$ tight-binding モデルについて	77

第1章 序論

1.1 半導体量子ドット

近年の半導体微細加工技術の進歩により，サブミクロン ($0.1\mu\text{m}$) からナノメートル (nm) サイズの構造が作製可能になった．これらナノ構造は，その電氣的，光学的性質が精力的に研究されている．その中でも量子ドットと呼ばれる系は，様々な物理現象を見ることができる物理的興味と，デバイスへの応用の可能性の両面から注目されている．量子ドットは，非常に小さな領域に電子を閉じ込めた系である．そのため電子のエネルギー準位が離散的になり，電子間のクーロン相互作用が強くはたらく．この点が原子に類似しているため，量子ドットを人工原子と呼ぶこともある．更に量子ドットを複数重ねた人工分子も作られている．

量子ドットでは電子間のクーロン相互作用が強くはたらくために，帯電エネルギーが大きい．その結果，ドット内に新たに1つ電子を入れるのに大きなエネルギーを必要とする．この新たに1つ電子を入れるのに必要な一電子付加エネルギーが，熱エネルギー $k_B T$ よりもずっと大きいとき，リードのフェルミ準位よりも下のドット内の準位が全て埋まり，

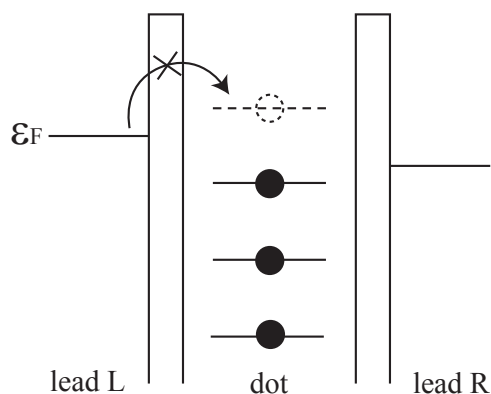


図 1.1: クーロンブロッケイドのしくみ．リード L のフェルミ準位 ϵ_F よりも量子ドット内の空の準位の方がエネルギーが高いため，電子はドットに入ることが出来ない．また量子ドット内の占有されている準位が，リード R のフェルミ準位よりもエネルギーが低いため，電子はリード R へ抜けることが出来ない．この結果，電子の輸送がおこらず，電流が流れない．

それ以上電子がドット内に入ることをできない状態ができる (図 1.1) . これをクーロンブロッケイドと呼ぶ . この時ゲート電極を使ってドット内の静電ポテンシャルを制御すると , ドット内に電子が入れる状態と入れない状態が交互に起き , 「クーロン振動」と呼ばれる電流の振動が起きる . これを利用することにより電子を1つずつドットに入れたり , 出したりの制御が可能となり , single electron transistor (SET) などの単電子デバイスへの応用が期待される . このクーロン振動の間隔は , ドット内に電子が多数いて , ドット内準位のエネルギーが主に帯電エネルギーによる場合はほぼ等間隔となるが , ドット内の電子が少数の場合や , サイズが小さくなり量子閉じ込め効果が無視できなくなると等間隔ではなくなる .

化合物半導体 , 例えばガリウム砒素 (GaAs) の縦型量子ドットを例に挙げる . 図 1.2(a) は GaAs 縦型量子ドットの模式図で , AlGaAs/InGaAs/AlGaAs の 2 重障壁ヘテロ構造を円筒状に微細加工して作製され , InGaAs の領域に電子が閉じ込められる . その大きさは円筒の断面の直径が 500 nm 程度である . 図 1.2(b) はゲート電圧の変化に対する , ドットを流れる電流の変化 (クーロン振動) である . ピークとピークの間でクーロンブロッケイドが起き , その領域では量子ドット中の電子数 N がほぼ確定している . この量子ドット

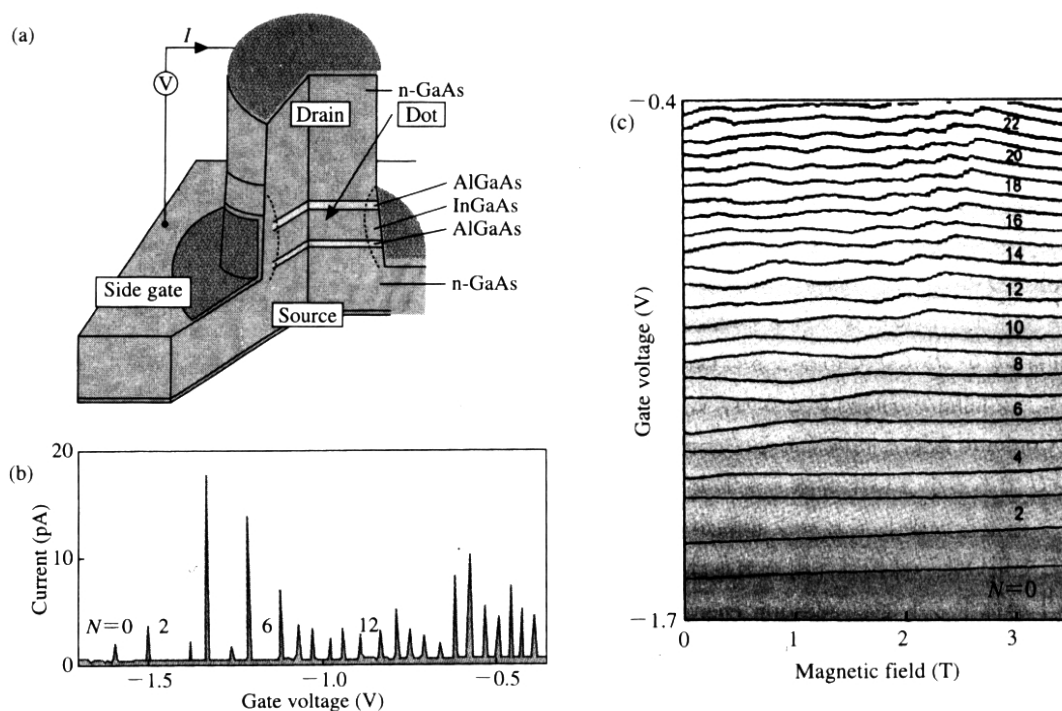


図 1.2: (a) GaAs 縦型量子ドットの模式図 . (b) 電流のゲート電圧依存性 (クーロン振動). (c) 電流のピークが現れるゲート電圧の磁場依存性 [1].

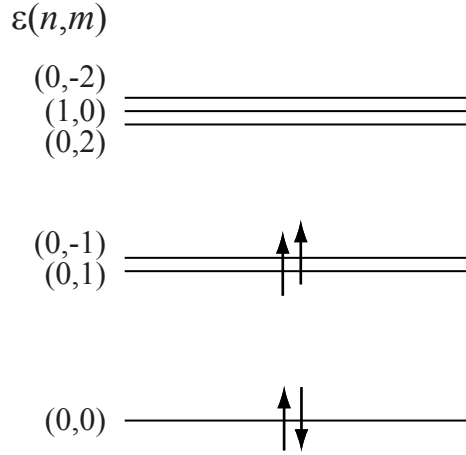


図 1.3: GaAs 縦型量子ドットにおける一電子準位の殻構造と Hund 則．ここで n, m は軌道量子数．磁場がない時，準位 $\varepsilon(0, -1)$ と $\varepsilon(0, 1)$ ，および $\varepsilon(0, -2)$, $\varepsilon(1, 0)$, $\varepsilon(0, 2)$ はそれぞれ縮退し，殻構造を形成している．電子はこれらの準位を下から順に占有するが，量子ドット内の電子数 $N = 4$ で殻が部分的に満たされている時，電子は全スピンの最大になるように，軌道量子数の異なる準位を占有する (Hund 則) ．

の閉じ込めポテンシャルは，有効質量 m^* を用いて，2次元調和型のポテンシャル

$$V(\mathbf{r}) = \frac{1}{2}m^*\omega_0^2\mathbf{r}^2,$$

で良く近似されることが知られている．このポテンシャルによる一電子エネルギー準位は

$$\varepsilon(n, m) = \hbar\omega_0(2n + |m| + 1)$$

(ただし $n = 0, 1, 2, \dots$, $m = 0, \pm 1, \pm 2, \dots$) となり，図 1.3 のような，原子に類似の殻構造を示す [1]．またそれらは N の増加に伴って，下から順に占有される．図 1.3 に示したように，殻が部分的に満たされている場合，原子の周期表に見られるように，電子は縮退した準位をスピンを平行にして占有する (Hund 則)[1, 2]．これらの原子に類似の性質を指して，量子ドットを「人工原子」と呼ぶこともある．これらの人工原子では準位間隔等を人工的に制御可能である点が天然原子とは異なり，興味深い．また図 1.2(c) は量子ドットに流れる電流のピークが現れるゲート電圧の磁場依存性である．これは電子を 1 つずつドットに入れるのに必要な一電子付加エネルギーの磁場による変化に対応する．これを見ると磁場の変化に伴い，折れ曲がりを示すところがある．先ほど，この量子ドットの閉じ込めポテンシャルは，2次元調和型のポテンシャルで良く近似されると述べた．このポテンシャルを用いると，磁場 B 下での一電子準位のハミルトニアンは， $B = \nabla \times \mathbf{A}$ を満たすベクトルポテンシャル \mathbf{A} と電子の電荷 $-e$ を用いて

$$H = \frac{1}{2m^*}(\mathbf{p} + e\mathbf{A})^2 + \frac{1}{2}m^*\omega_0^2\mathbf{r}^2, \quad (1.1)$$

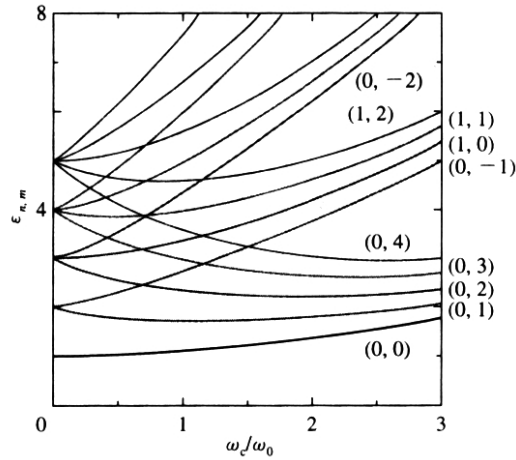


図 1.4: 2次元調和型ポテンシャル中の一電子準位の磁場依存性 [3]. $\varepsilon_{n,m}$ は $\hbar\omega_0$ で規格化してある．ここで $\omega_c = eB/m^*$ はサイクロトロン振動数， (n, m) は軌道量子数．

となる．よってエネルギー準位は

$$\varepsilon(n, m) = \hbar\Omega(2n + |m| + 1) - \frac{1}{2}\hbar\omega_c m, \quad (1.2)$$

となる．ただしここで $\Omega = \sqrt{\omega_0^2 + \omega_c^2/4}$, $\omega_c = eB/m^*$ である．式 (1.2) の磁場依存性 [3] を図 1.4 に示す．これと図 1.2(c) を比較することによって，上で述べた折れ曲がりや，磁場を印加したことによる軌道磁性効果によって縮退していた準位が分裂し，準位が交差するところで基底状態の変化が起きるため現れると説明できる．実際は電子間相互作用が一電子準位と同程度なので，これを考慮した厳密対角化の方法による理論計算が行われ，実験結果が定量的に説明されている [3, 4, 5, 6, 7, 8, 9]．

GaAs 量子ドットを 2 つ結合させた二重量子ドット系は「人工分子」と呼ばれる．実験で結合・反結合分子軌道の形成が観測されており [10, 11]，理論研究も行われている [12]．

1.2 シリコン量子ドット

このような GaAs 量子ドットにおける電子状態と比較して，シリコン (Si) 量子ドットにおける電子状態は十分に理解されていない．Si 量子ドットは GaAs 縦型量子ドットとは作製方法が異なる．例えば，基板上に Si の細いワイヤーを作り (図 1.5)，熱酸化を行い表面に酸化層を作る．すると，酸化層との境界に応力が生じて内部の Si が歪み，結果として，自然に量子ドットが形成されることが知られている．このように，人工的にバリア構造を作らなくても量子ドットが形成されるため，およそ 10 nm 程度の，化合物半導体量子ドットよりも小さいサイズの系が作製可能である [13, 14, 15, 16, 17, 18, 19]．このよう

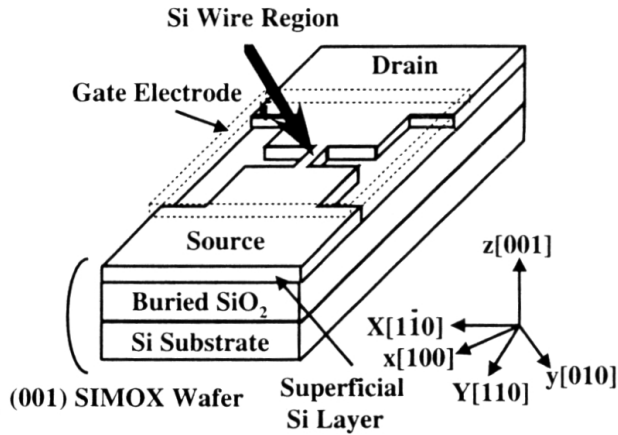


図 1.5: Si 量子ドットの模式図 [14].

な小さい量子ドットでは，電子間相互作用が非常に強く，量子閉じ込め効果もこれと比べて無視できない大きさになる．その結果，新たに電子を一つ量子ドット内に加えるために必要な一電子付加エネルギーが，100 K 程度での熱エネルギーを超える大きさになる．このため，室温で動作する単電子デバイスの応用に向けて，精力的に研究が行われている．電流のピークの磁場依存性では，量子ドット中で様々なスピン状態があることを示唆している [17, 18, 19]．他の実験では，伝導バンドの多谷構造による縮退したエネルギー準位が原因と思われる近藤効果が見えていると推測されるものもある [20]．しかしこれらの量子ドットでは，上記のような方法で作製されるため，個々のドットの正確な形状が分からず，電子状態の基礎的な研究が妨げられている．

また Si 量子ドットは，スピントロニクスデバイスや量子計算装置への応用でも注目されている．量子情報処理の固体素子での実現に向けては，Si 中のドナー原子の核スピン [21]，Si の核スピン [22]，1 つのクーパー対を含む箱 [23, 24, 25]，などを量子ビット (キュービット) として利用した方法が提案されている．Loss と DiVincenzo は，量子ドット中の電子スピンを使って，1 キュービットおよび 2 キュービットゲートの実現方法を提案した [26]．この場合のキュービットは，量子ドット中に電子が一つあり，その電子スピンの磁気量子数 $\pm 1/2$ の 2 つの固有状態を用いて表現される．1 ビット操作は ESR 技術と呼ばれる，共鳴周波数の交流磁場の印加によるスピン回転によって行うことができる．2 キュービットゲートでは，隣り合う量子ドットの電子スピン， S_1, S_2 ，が反強磁性 Heisenberg ハミルトニアン，

$$H_{\text{eff}} = JS_1 \cdot S_2, \quad (1.3)$$

によって実効的に結合する．交換結合 J は量子ドット間の電極を時間の関数としてオンオフすることで制御する．1 および 2 キュービット操作の組み合わせで，量子計算の基本的な論理ゲートである，量子排他的論理和 (XOR) ゲートを作ることが出来る [27]．

Si 量子ドットは量子計算装置への応用において，次のような利点がある．まず Si ナノ構

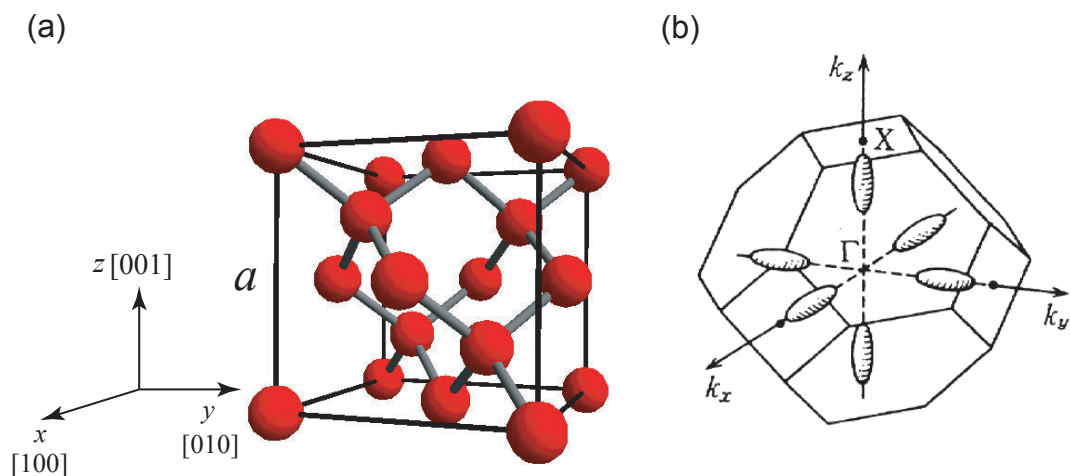


図 1.6: (a) バルク Si の結晶構造．結晶はダイヤモンド構造で，単位構造の立方体内に 8 個の Si 原子を含む．格子定数は $a = 0.543 \text{ nm}$. x, y, z 軸はそれぞれ結晶の $[100], [010], [001]$ 方向にとる．(b) Si の Brillouin ゾーンと伝導バンドの多谷構造．バルクの Si の伝導バンドは， k 空間の x, y, z 軸の正と負方向にそれぞれ，計 6 つの等価な底 (谷) を持つ．

造の進んだ作製技術が，このような新しいデバイスに利用可能である点が挙げられる [28]．次に Si へのナノサイズ加工と酸化技術により，典型的な GaAs 量子ドットよりもずっと小さい，10 nm 程度の量子ドットが作製可能である点が挙げられる [13, 14, 15, 16, 17, 18, 19]．3 番目に，Si 中の電子スピンは長い緩和時間を持つ点が挙げられる．緩和時間は量子計算において，ゲートの操作時間よりもずっと長くなければならない．半導体中の電子スピン緩和の主な原因はスピン軌道相互作用と核スピンとの超微細相互作用である．前者は GaAs 中よりも Si 中の方がずっと弱い．後者は，核スピン同位体工学によって，核スピンが 0 である純粋な ^{28}Si の結晶を作ることにより [29]，無視することが出来る．

1.3 研究目的と本論文の構成

これまで述べてきたように，応用上有益な点が多いと考えられる Si 量子ドットであるが，その理論研究は意外と少ない．Natori, Uehara, および Sano らによって，多谷構造を考慮した Si 量子ドットを用いた単電子トランジスタにおける輸送特性が論じられているが [30]，彼らは電子間相互作用に対し帯電モデルを用いており，Si 量子ドット内のスピン状態を無視している．Si 二重量子ドット系 [31, 32] における電子状態についても同様で，理論研究はあまりない．最近では，Koiller らが Si 中のドナー電子に対する交換結合を調べているが [33]，これは量子ドットに対してではない．

Si の大きな特徴として，まず伝導バンドの多谷構造が挙げられる．図 1.6(a) に示した

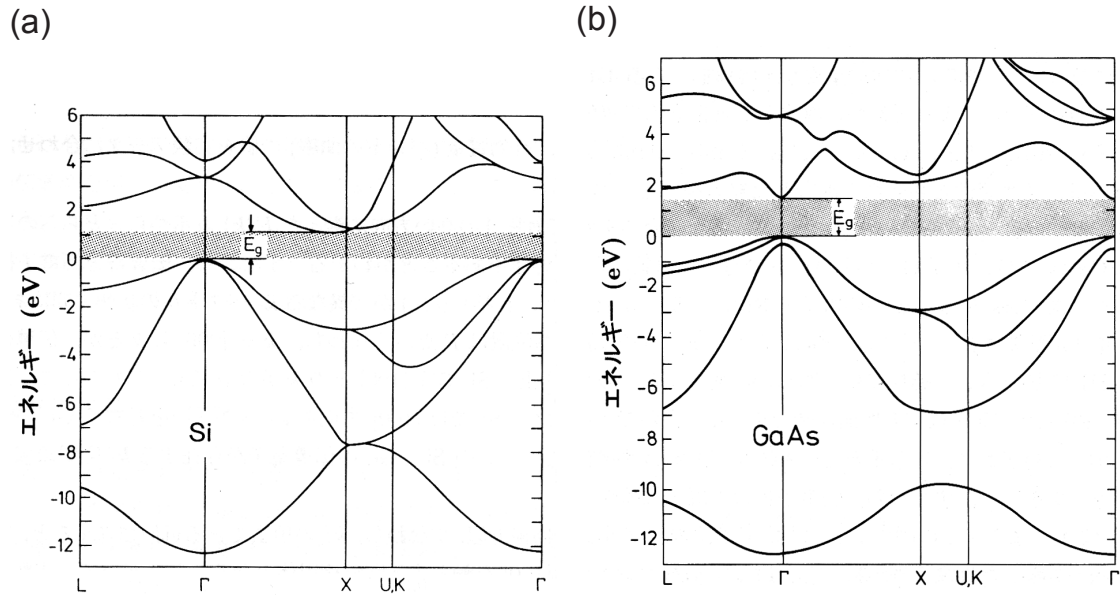


図 1.7: バルク Si および GaAs のバンド構造 [34, 35] . (a)Si, (b)GaAs . Si は Γ 点と X 点の途中に伝導バンドの底を持つ . GaAs は Γ 点に伝導バンドの底を持つ .

ように，バルクの Si はダイヤモンド構造で，格子定数は $a = 0.543 \text{ nm}$ であり，Brillouin ゾーンは図 1.6(b) に示した通りである．Si の伝導バンドは，図 1.7(a) に示したように， Γ 点から X 点¹ に向かう途中でエネルギー最小値を取る．よって図 1.6(b) にあるようにバルクでは 6 つ，Si-MOS で 2 つの等価な点が存在し，これら複数の異なる k 点でエネルギーが最低となる．このエネルギー最小値の k 点をバンドの底，あるいは谷と呼ぶが，Si のように複数の谷を持つものを多谷構造という．一方，よく知られている GaAs 量子ドットは，図 1.7(b) に示したように， Γ 点に谷を一つしか持たない構造となっている．多谷構造は，谷を一つしか持たない量子ドットの電子状態とは異なる性質を生むに違いない．2 番目の特徴として，これらの谷における有効質量の異方性が挙げられる．GaAs では等方的で $m^* = 0.067m_0$ (m_0 は電子の質量) と軽いのに対し，Si では縦有効質量が $m_l^* = 0.98m_0$ ，横有効質量が $m_t^* = 0.19m_0$ ，と異方性を持ち，軽い方の横有効質量 m_t^* でさえ GaAs と比べると重い．3 番目の特徴として，Zeeman 効果による磁場依存性が挙げられる．これは上で述べたように有効質量が重いために軌道磁性の効果が小さく，かつ Si 中の実効 g 因子が $g^* \simeq 2$ と，GaAs の $g^* \simeq 0.4$ と比べ，大きいことによる．

これらの特徴を取り入れた，Si 単一量子ドットおよび Si 二重量子ドットにおける電子・スピン状態の理論研究を行うことが，本研究の目的である．Si 単一量子ドットについては，有効質量近似 [36] を用いて Si が持つ特徴が電子・スピン状態に与える影響を調べる [37] . 最後に経験的 tight-binding モデル [38] を用いた結果と比較して，有効質量近似の妥

¹ Γ 点は $k = (0, 0, 0)$, X 点は $k = (2\pi/a)(0, 0, 1)$.

当性を検討する．Si 二重量子ドットについては，単一量子ドットの結果を踏まえたモデルを考え，応用上重要であると考えられる交換結合 J について調べる [39]．

本論文の構成は以下の通りである．まず次章で有効質量近似を用いて，上記の性質を考慮した Si 単一量子ドットにおける電子・スピン状態について論じる．3 章では，2 章で得られた結果をもとに二重量子ドットのモデルを考え，Si 二重量子ドットにおける電子・スピン状態と交換結合について議論する．次に 4 章で再び Si 単一量子ドットに戻って，経験的 tight-binding モデルを用いて，原子サイズの構造を考慮した電子状態の計算を行う．これによって有効質量近似の計算結果と比較，議論をする．最後の章では，本論文のまとめを行う．

第2章 シリコン単一量子ドットにおける電子・スピン状態

2.1 序

本章の目的は多谷構造をもつ人工原子である Si 量子ドットにおける電子状態とスピン配置の基本的性質を明らかにすることである．ここでは量子ドットのサイズは格子定数に比べて十分大きいとして，Si の次の性質，

1. 伝導バンドに複数の谷を持つ多谷構造であること
(バルクでは 6 つ，Si-MOS 系では 2 つ)
2. 谷での有効質量が異方性を持つこと
($m_l^* = 0.98m_0$, $m_t^* = 0.19m_0$)
3. Zeeman 効果が大きいこと
(有効 g 因子が GaAs では $g^* \simeq 0.4$ に対し，Si では $g^* \simeq 2$)

を考慮する．これらの性質は有効質量近似によって扱うことができる．GaAs のような，谷が 1 つしかない量子ドットでは，1.1 節で述べたように，一電子準位の殻構造，軌道縮退がある場合の高スピン状態の出現 (Hund 則)，磁場による基底状態の転移などが見られた．Si 量子ドットでは，これらに類似の現象が見られるのか，あるいは上記の性質に由来する新しい現象が見られるのかを調べるのが，本章のねらいである．

この章の構成は，まず次の節で Si 量子ドットのモデルと有効質量近似を用いた計算方法を説明する．2.3 節で等方的な Si 量子ドットに対する電子状態の計算結果を示し，サイズを変えてその基本的性質について議論する．更に 2.4 節では異方性を持つ Si 量子ドットについて調べ，2.5 節では谷間結合が電子状態に与える影響を議論する．2.6 節ではまとめと，結果や計算についていくつかの考察を行う．

2.2 モデルと計算方法

Si の伝導バンドの谷は，図 1.6(b) に示したように，バルクで 6 重縮退している．しかし，量子ドットを作製する際に酸化を行った場合，酸化層との境界面に生じる応力により Si が歪むため，バルクの状態と比べて対称性が下がり，分裂を起こす．本研究では Si の伝導バンドの多谷構造に関して， $k_0 = 0.85 \times 2\pi/a$ (a は格子定数で 0.357 nm) として，バル

くで6つある等価な谷のうち k 空間の z 方向の2つの谷 [図 1.6(b) 参照] , $\mathbf{k} = (0, 0, \pm k_0)$ が縮退していて, 他の谷 $\mathbf{k} = (\pm k_0, 0, 0)$ と $(0, \pm k_0, 0)$ よりも ΔE_{valley} だけ低いとする. このような状況は, 例えば図 1.5 に示したような, [110] 方向に長さを持つ Si ワイヤーを酸化した場合に起きる. ΔE_{valley} は酸化歪みの効果 [14, 40] を考えて $\Delta E_{\text{valley}} = 100 \text{ meV}$ とする. 谷が6重縮退している場合については2.6節でコメントする. これらの谷を今後,

$$\begin{aligned} \mathbf{k} = (\pm k_0, 0, 0) & \text{ を } \pm k_x, \\ \mathbf{k} = (0, \pm k_0, 0) & \text{ を } \pm k_y, \\ \mathbf{k} = (0, 0, \pm k_0) & \text{ を } \pm k_z, \end{aligned}$$

と呼ぶ.

量子ドットの閉じ込めポテンシャルのモデルとして, 3次元調和型ポテンシャル $V(x, y, z)$ を用いる.¹ まずは Si 量子ドットにおける電子状態の一般的な性質を調べるために, 等方的な閉じ込め,

$$V(x, y, z) = \frac{1}{2}K(x^2 + y^2 + z^2), \quad (2.1)$$

について調べる. 異方的な閉じ込めについては後ほど2.4節で述べる.

まず, 電子間相互作用を考慮しない—電子準位とそのエネルギーを計算する. 有効質量近似 [36] では, 例えば $\pm k_z$ の谷の付近の電子に対する波動関数は, その谷での Bloch 関数と包絡関数 $F_{\pm k_z}$ との積で表される.

$$\psi_{\pm k_z}(\mathbf{r}) = F_{\pm k_z}(\mathbf{r})e^{\pm i\mathbf{k}_z \cdot \mathbf{r}} u_{\pm k_z}(\mathbf{r}). \quad (2.2)$$

ここで $\mathbf{k}_z = (0, 0, k_0)$ で $u_{\pm k_z}(\mathbf{r})$ はブラベ格子の周期性を持つ関数である. 包絡関数 $F_{\pm k_z}$ は次の有効質量方程式を満たす.

$$\left[-\frac{\hbar^2}{2m_t^*} \left(\frac{\partial^2}{\partial x^2} + \frac{\partial^2}{\partial y^2} \right) - \frac{\hbar^2}{2m_l^*} \frac{\partial^2}{\partial z^2} + V(x, y, z) \right] F_{\pm k_z}(\mathbf{r}) = \varepsilon_{\pm k_z} F_{\pm k_z}(\mathbf{r}). \quad (2.3)$$

ここでエネルギー $\varepsilon_{\pm k_z}$ は伝導バンドの $\pm k_z$ の底からはかったものである. 同様に $\pm k_x$, $\pm k_y$ の谷まわりの有効質量方程式はそれぞれ,

$$\begin{aligned} \left[-\frac{\hbar^2}{2m_l^*} \frac{\partial^2}{\partial x^2} - \frac{\hbar^2}{2m_t^*} \left(\frac{\partial^2}{\partial y^2} + \frac{\partial^2}{\partial z^2} \right) + V(x, y, z) \right] F_{\pm k_x}(\mathbf{r}) &= \varepsilon_{\pm k_x} F_{\pm k_x}(\mathbf{r}), \\ \left[-\frac{\hbar^2}{2m_l^*} \frac{\partial^2}{\partial y^2} - \frac{\hbar^2}{2m_t^*} \left(\frac{\partial^2}{\partial z^2} + \frac{\partial^2}{\partial x^2} \right) + V(x, y, z) \right] F_{\pm k_y}(\mathbf{r}) &= \varepsilon_{\pm k_y} F_{\pm k_y}(\mathbf{r}), \end{aligned}$$

となる. これらの場合のエネルギー $\varepsilon_{\pm k_x}$, $\varepsilon_{\pm k_y}$ は $\pm k_x$, $\pm k_y$ の底からはかったものである. つまり同じ ε の準位でも, 相対的に $\pm k_z$ の底の準位よりも ΔE_{valley} だけ高いことを述べ

¹この研究では調和型ポテンシャルを調べたが, ここで論じた電子状態の性質は, 閉じ込めポテンシャルが十分に滑らかであればその詳細な形には依らない. もしドットの端が滑らかでないならば, 谷間結合を考慮せねばならない(4章).

ておく．ここでは閉じ込めポテンシャル $V(x, y, z)$ は十分に滑らかで，そのポテンシャルが持つ波数の大きさが $1/a$ 程度のフーリエ成分は無視できるほど小さいとして，谷間結合を無視する．ドット内の不純物，ドットの端などの理由による谷間結合の効果については 2.5 節および 4 章で議論する．式 (2.1) の $V(x, y, z)$ を使って，式 (2.3) よりエネルギー固有値

$$\varepsilon(\pm k_z; n_x, n_y, n_z) = \hbar \sqrt{\frac{K}{m_t^*}} \left(n_x + \frac{1}{2} \right) + \hbar \sqrt{\frac{K}{m_t^*}} \left(n_y + \frac{1}{2} \right) + \hbar \sqrt{\frac{K}{m_l^*}} \left(n_z + \frac{1}{2} \right), \quad (2.4)$$

を得る．ここで $n_x, n_y, n_z = 0, 1, 2, \dots$ である.² 準位 $(\pm k_z; n_x, n_y, n_z)$ に対する包絡関数は，

$$\begin{aligned} F_{\pm k_z}^{n_x, n_y, n_z}(\mathbf{r}) &= \left(\frac{1}{2^{n_x+n_y+n_z} n_x! n_y! n_z!} \right)^{\frac{1}{2}} \left(\frac{1}{\pi \hbar} \right)^{\frac{3}{4}} (a_{ix} a_{iy} a_{iz})^{\frac{1}{4}} \\ &\quad \times H_{n_x} \left(\sqrt{\frac{a_{zx}}{\hbar}} x \right) H_{n_y} \left(\sqrt{\frac{a_{zy}}{\hbar}} y \right) H_{n_z} \left(\sqrt{\frac{a_{zz}}{\hbar}} z \right) \exp \left[-\frac{1}{2\hbar} (a_{zx} x^2 + a_{zy} y^2 + a_{zz} z^2) \right], \end{aligned}$$

で与えられる (他の谷の準位に対する包絡関数は付録 A.1 参照)．ここで $H_n(q)$ はエルミート多項式， a_{zj} ($j = x, y, z$) はそれぞれ

$$\begin{aligned} a_{zx} &= (m_t^* K)^{1/2}, \\ a_{zy} &= (m_t^* K)^{1/2}, \\ a_{zz} &= (m_l^* K)^{1/2}, \end{aligned}$$

である．例えば，最低準位 $(\pm k_z; n_x, n_y, n_z) = (\pm k_z; 0, 0, 0)$ に対する包絡関数は

$$F_{\pm k_z}^{0,0,0}(\mathbf{r}) = \left(\frac{1}{\pi \hbar} \right)^{\frac{3}{4}} (m_t^{*2} m_l^* K^3)^{\frac{1}{8}} \exp \left[-\frac{1}{2\hbar} \left(\sqrt{m_t^* K} x^2 + \sqrt{m_t^* K} y^2 + \sqrt{m_l^* K} z^2 \right) \right], \quad (2.5)$$

となる．

閉じ込めポテンシャルのサイズを

$$l = 2 \sqrt{\frac{\hbar}{m_t^* \omega_t}}, \quad (2.6)$$

で表す．ここで ω_t は小さい方の有効質量 m_t^* を用いて $\omega_t = \sqrt{K/m_t^*}$ である．以下で数値計算を行う際には，3つの場合， $l = 5$ nm, 10 nm, 15 nm について調べた．

²同様に $\pm k_x, \pm k_y$ の谷の準位に対するエネルギー固有値はそれぞれ，

$$\begin{aligned} \varepsilon(\pm k_x; n_x, n_y, n_z) &= \hbar \sqrt{\frac{K}{m_l^*}} \left(n_x + \frac{1}{2} \right) + \hbar \sqrt{\frac{K}{m_t^*}} \left(n_y + \frac{1}{2} \right) + \hbar \sqrt{\frac{K}{m_t^*}} \left(n_z + \frac{1}{2} \right), \\ \varepsilon(\pm k_y; n_x, n_y, n_z) &= \hbar \sqrt{\frac{K}{m_t^*}} \left(n_x + \frac{1}{2} \right) + \hbar \sqrt{\frac{K}{m_l^*}} \left(n_y + \frac{1}{2} \right) + \hbar \sqrt{\frac{K}{m_t^*}} \left(n_z + \frac{1}{2} \right). \end{aligned}$$

次に電子数 $N \geq 2$ の多体状態の取り扱いについて述べる．多体状態の近似としてよく知られている方法に，Hartree-Fock 近似がある．これは多体状態を一電子波動関数を用いた単一の Slater 行列式で表し，これに対するハミルトニアン³の期待値の各一電子波動関数に関する変分極小条件の式を求める．これをセルフコンシステントになるように解くことで一電子波動関数を求め，多体状態を表す方法である．また Hartree-Fock 近似などの一電子近似を超えた精度で計算を行う方法として，多体状態の波動関数を一電子近似で求めた波動関数の線形結合で近似する，配置間相互作用の方法がある．しかしここではそれらの方法は行わず，準定量的議論のために，多体状態を先ほど求めた一電子準位を用いた単一の Slater 行列式で近似する．このため配置間相互作用は無視するが，それに関しては 2.6 節で考察する．

まず一電子準位の N 電子による全ての可能な占有の配置を考える．次にその配置に対応する Slater 行列式が持つエネルギーを求める．この際に，電子間相互作用としてクーロン相互作用および交換相互作用を計算した． $(k_i; n_x, n_y, n_z)$ と $(k_j; n'_x, n'_y, n'_z)$ の準位にある電子間のクーロンおよび交換積分はそれぞれ

$$\begin{aligned} & \int \int d\mathbf{r}_1 d\mathbf{r}_2 |\psi_{k_i}^{n_x, n_y, n_z}(\mathbf{r}_1)|^2 \frac{e^2}{4\pi\epsilon |\mathbf{r}_1 - \mathbf{r}_2|} |\psi_{k_j}^{n'_x, n'_y, n'_z}(\mathbf{r}_2)|^2 \\ &= \int \int d\mathbf{r}_1 d\mathbf{r}_2 |F_{k_i}^{n_x, n_y, n_z}(\mathbf{r}_1)|^2 \frac{e^2}{4\pi\epsilon |\mathbf{r}_1 - \mathbf{r}_2|} |F_{k_j}^{n'_x, n'_y, n'_z}(\mathbf{r}_2)|^2, \end{aligned} \quad (2.7)$$

および

$$\begin{aligned} & \int \int d\mathbf{r}_1 d\mathbf{r}_2 \psi_{k_i}^{n_x, n_y, n_z*}(\mathbf{r}_1) \psi_{k_j}^{n'_x, n'_y, n'_z*}(\mathbf{r}_2) \frac{e^2}{4\pi\epsilon |\mathbf{r}_1 - \mathbf{r}_2|} \psi_{k_j}^{n'_x, n'_y, n'_z}(\mathbf{r}_1) \psi_{k_i}^{n_x, n_y, n_z}(\mathbf{r}_2) \\ &= \int \int d\mathbf{r}_1 d\mathbf{r}_2 e^{i(\mathbf{k}_j - \mathbf{k}_i) \cdot \mathbf{r}_1} e^{i(\mathbf{k}_i - \mathbf{k}_j) \cdot \mathbf{r}_2} \frac{e^2}{4\pi\epsilon |\mathbf{r}_1 - \mathbf{r}_2|} F_{k_i}^{n_x, n_y, n_z*}(\mathbf{r}_1) F_{k_j}^{n'_x, n'_y, n'_z*}(\mathbf{r}_2) \\ & \quad \times F_{k_j}^{n'_x, n'_y, n'_z}(\mathbf{r}_1) F_{k_i}^{n_x, n_y, n_z}(\mathbf{r}_2) u_{k_i}^*(\mathbf{r}_1) u_{k_j}^*(\mathbf{r}_2) u_{k_j}(\mathbf{r}_1) u_{k_i}(\mathbf{r}_2), \end{aligned} \quad (2.8)$$

と書ける．³ ここで Si における誘電率は真空中での誘電率 ϵ_0 を用いて， $\epsilon = 11.9\epsilon_0$ である．これらの項は数値的に計算した（具体的な計算方法は付録 A 参照）．こうして全ての可能な配置に対し全エネルギーを計算して，それらのうち最低エネルギーを持つものを N 電子に対する基底状態の配置と決めた．

次に磁場下での取り扱いを考える．1.3 節で述べた理由から磁場 $B = (0, 0, B)$ 下で Zeeman 効果，

$$E_{\text{Zeeman}} = -g^* \mu_B S_{\text{tot}, z} B, \quad (2.9)$$

を考える．ここで，Si の場合 $g^* = 2$ ， μ_B はボーア磁子， $S_{\text{tot}, z}$ は全スピンの z 成分である．軌道磁性効果は Si の有効質量が大きいことから無視する．

³式 (2.7) において， $u_{k_i}(\mathbf{r})$ が単位胞 Ω での積分に関して $\frac{1}{\Omega} \int_{\Omega} d\mathbf{r} |u_{k_i}(\mathbf{r})|^2 = 1$ であることを使った．式 (2.8) で， $\mathbf{k}_j \neq \mathbf{k}_i$ の項は無視できるほど小さい (2.3.1 節)． $\mathbf{k}_j \neq \mathbf{k}_i$ の時，積分すると直交性によって関数 $u_{k_i}(\mathbf{r})$ は消える．

2.3 Si量子ドットにおける電子状態

この節では式 (2.1) の等方的な閉じ込め，すなわち球形 Si 量子ドットから得られる電子状態の基本的性質を明らかにする．

2.3.1 電子状態

まず一電子準位について述べる．式 (2.4) に見られるように，一電子準位は谷のインデックスと軌道運動量に対する量子数 (n_x, n_y, n_z) でラベル付けされる (図 2.1 の水平線)． $+k_z$ あるいは $-k_z$ の谷に属する最低準位は $(n_x, n_y, n_z) = (0, 0, 0)$ である．次の準位は $(0, 0, 1)$ で，これらは等方的な閉じ込めにもかかわらず， $(\pm k_z; 1, 0, 0)$ および $(\pm k_z; 0, 1, 0)$ の準位より低い．これは有効質量の異方性によるもので，準位間隔は，

$$\varepsilon(\pm k_z; 1, 0, 0) - \varepsilon(\pm k_z; 0, 0, 1) = \hbar \left(\sqrt{\frac{K}{m_t^*}} - \sqrt{\frac{K}{m_l^*}} \right),$$

である．また，先に述べた全てのドットサイズに対して， $N = 1 \sim 5$ の全ての電子が $\pm k_z$ の谷を占有し， $\pm k_x$ ， $\pm k_y$ の谷には入らないことが分かった.⁴

次に電子数 $N \geq 2$ における電子間相互作用の効果について考える．異なる谷の電子間相互作用に関して，2つの重要な結果を得た．

1. $(\pm k_z; n_x, n_y, n_z)$ と $(\pm k_z; n'_x, n'_y, n'_z)$ の間のクーロン積分は， $(\pm k_z; n_x, n_y, n_z)$ と $(\mp k_z; n'_x, n'_y, n'_z)$ の間のそれと同じである．これは式 (2.7) において $+k_z$ と $-k_z$ の谷に対する包絡関数が同じ形をしているために

$$\begin{aligned} & \int \int d\mathbf{r}_1 d\mathbf{r}_2 |F_{\pm k_z}^{n_x, n_y, n_z}(\mathbf{r}_1)|^2 \frac{e^2}{4\pi\varepsilon |\mathbf{r}_1 - \mathbf{r}_2|} |F_{\pm k_z}^{n'_x, n'_y, n'_z}(\mathbf{r}_2)|^2 \\ &= \int \int d\mathbf{r}_1 d\mathbf{r}_2 |F_{\pm k_z}^{n_x, n_y, n_z}(\mathbf{r}_1)|^2 \frac{e^2}{4\pi\varepsilon |\mathbf{r}_1 - \mathbf{r}_2|} |F_{\mp k_z}^{n'_x, n'_y, n'_z}(\mathbf{r}_2)|^2, \end{aligned} \quad (2.10)$$

になるからである．

2. 量子ドットのサイズが格子定数に比べて大きい時，異なる谷の電子間の交換積分，式 (2.8) は

$$\begin{aligned} & \int \int d\mathbf{r}_1 d\mathbf{r}_2 e^{\mp 2i\mathbf{k}_z \cdot \mathbf{r}_1} e^{\pm 2i\mathbf{k}_z \cdot \mathbf{r}_2} \frac{e^2}{4\pi\varepsilon |\mathbf{r}_1 - \mathbf{r}_2|} F_{\pm k_z}^{n_x, n_y, n_z^*}(\mathbf{r}_1) F_{\mp k_z}^{n'_x, n'_y, n'_z^*}(\mathbf{r}_2) \\ & \times F_{\mp k_z}^{n'_x, n'_y, n'_z}(\mathbf{r}_1) F_{\pm k_z}^{n_x, n_y, n_z}(\mathbf{r}_2) u_{\pm k_z}^*(\mathbf{r}_1) u_{\mp k_z}^*(\mathbf{r}_2) u_{\mp k_z}(\mathbf{r}_1) u_{\pm k_z}(\mathbf{r}_2), \end{aligned} \quad (2.11)$$

⁴一電子準位の位置関係は下から順に， $(n_x, n_y, n_z) = (0, 0, 0)$ ， $(0, 0, 1)$ ， $(0, 0, 2)$ ， $(1, 0, 0)$ と $(0, 1, 0)$ ， \dots であるが，後述の図 2.1 から 2.3 では準位 $(0, 0, 2)$ の図示を省略した．ドットサイズが $l = 15$ nm，電子数 $N = 3, 4$ の基底状態では，準位 $(0, 0, 2)$ よりも先に $(1, 0, 0)$ ， $(0, 1, 0)$ が占有される．この理由は，準位 $(0, 0, 1)$ を占有した電子とのクーロン相互作用が，準位 $(0, 0, 2)$ を占有した電子よりも $(1, 0, 0)$ ， $(0, 1, 0)$ を占有した電子の方が小さいためである．

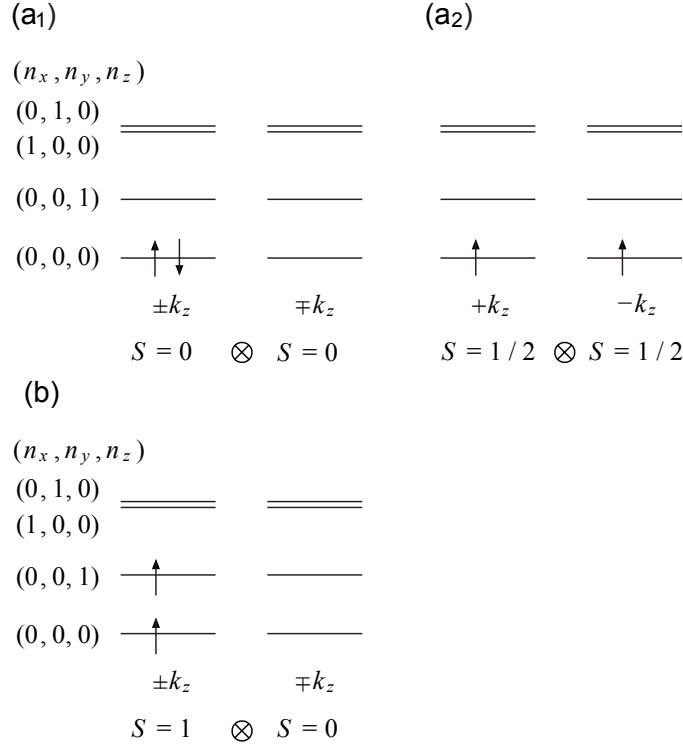


図 2.1: 球形量子ドットにおける $N = 2$ の基底状態に対する電子配置. $\pm k_z$ は谷のインデックスで, (n_x, n_y, n_z) は各一電子準位に対する軌道量子数. 配置 (a₁) と (a₂) は, ドットサイズが $l = 5$ nm と 10 nm の時に基底状態となる. これらは磁場がない時, エネルギー縮退している. 全スピンはそれぞれ, $S_{\text{tot}} = 0$ と $S_{\text{tot}} = 1/2 \otimes 1/2 = 0 \oplus 1$. 配置 (b) は $l = 15$ nm で基底状態となり, 全スピンは $S_{\text{tot}} = 1$.

となり, 格子間隔程度の距離で速い振動因子 $e^{\mp 2i\mathbf{k}_z \cdot \mathbf{r}_1} e^{\pm 2i\mathbf{k}_z \cdot \mathbf{r}_2}$ 等を積分しているために, 一電子準位間隔やクーロン積分, 熱エネルギーに比べ無視できるほど小さくなる (詳細な議論は付録 B 参照). 従って異なる谷間にスピン結合 (Hund 結合) がほとんどはたらかない. 以下では異なる谷間の交換相互作用をゼロとして議論する.

これらを踏まえて, まず電子数 $N = 2$ の場合の基底状態について議論する. 上で述べたように, 異なる谷間の Hund 結合がはたらかないために, ドットサイズが $l = 5$ nm と 10 nm の基底状態は 2 つの電子が縮退した最低準位のいずれかを占有したものになり, 異なるスピン状態のエネルギーが縮退する. 図 2.1(a₁) の配置は全スピン $S_{\text{tot}} = 0$ に対し, 図 2.1(a₂) では $S_{\text{tot}} = 1/2 \otimes 1/2 = 0 \oplus 1$ であるが, これらの配置は同じエネルギーを持つ. 弱磁場下では, Zeeman 効果, 式 (2.9) により, 高スピン $S_{\text{tot}} = 1, S_{\text{tot},z} = 1$ が出現する.

ドットサイズが $l = 15$ nm の時, $N = 2$ の基底状態は別の配置, 図 2.1(b) になる. 一つの電子はもう一つの電子と交換相互作用を得るために, スピンを平行に揃えて同じ谷の上

の準位を占める．この時，同じ谷の電子間の交換積分は式 (2.8) から

$$\int \int d\mathbf{r}_1 d\mathbf{r}_2 F_{\pm k_z}^{n_x, n_y, n_z*}(\mathbf{r}_1) F_{\pm k_z}^{n'_x, n'_y, n'_z*}(\mathbf{r}_2) \frac{e^2}{4\pi\epsilon |\mathbf{r}_1 - \mathbf{r}_2|} F_{\pm k_z}^{n'_x, n'_y, n'_z}(\mathbf{r}_1) F_{\pm k_z}^{n_x, n_y, n_z}(\mathbf{r}_2),$$

となり，交換相互作用がはたらくことを強調しておく．

概して，電子状態は電子間相互作用と一電子準位間隔の競合によって決まる．量子ドットのサイズが l の時，電子間相互作用と一電子準位間隔はそれぞれ， $E_{\text{int}} = e^2/(4\pi\epsilon l)$ ， $E_{\text{levels}} = \hbar^2/(m_t^* l^2)$ ，で特徴付けることが出来る．3つのサイズに対する，これらのエネルギーの比，

$$\frac{E_{\text{int}}}{E_{\text{levels}}} = \frac{m_t^* e^2 l}{4\pi\epsilon \hbar^2}, \quad (2.12)$$

の値は次の通りである．

l	5 nm	10 nm	15 nm
$E_{\text{int}}/E_{\text{levels}}$	1.52	3.04	4.56

この比が大きくなると交換相互作用を得るために多くの電子が同じ谷にスピンを揃えて入るようになる．

図 2.2 の， $N = 3$ に対する基底状態も同様に理解することができる． $l = 5$ nm の小さい量子ドットでは，図 2.2(a) にあるように，3つの電子は最低準位を占有し， $S_{\text{tot}} = 1/2$ である． $l = 15$ nm の大きいドットでは，交換相互作用を得るために，図 2.2(b) にあるように，一つの谷の上の準位に $S_{\text{tot}} = 3/2$ となって占有する．中間のサイズ ($l = 10$ nm) では，2つの電子は一つの谷の2つの準位を占有してスピン3重項を作り，図 2.2(c₁) のように他の電子は同じ谷の最低準位に入るか，図 2.2(c₂) のように等価な別の谷の最低準位に入る．これらの配置は同じエネルギーを持つが，(c₁) は $S_{\text{tot}} = 1/2$ ，(c₂) は $S_{\text{tot}} = 1 \otimes 1/2 = 1/2 \oplus 3/2$ ，と異なるスピンを持ち，磁場下では最大スピンを持つものが現れる．

磁場を増加させていくと，Zeeman 効果，式 (2.9) によって高スピン状態が現れる．ドットサイズが $l = 7.5$ nm の時， $B_c = 9.47$ T を境として $N = 3$ の基底状態が， $B < B_c$ では図 2.2(a) の配置 ($S_{\text{tot}} = 1/2$) だったのが， $B > B_c$ では図 2.2(c₂) の配置 ($S_{\text{tot}} = 3/2$) へと変化する．同じ転移は $l = 5$ nm でもずっと大きい B_c で起きる．同様にドットサイズが $l = 7.5$ nm, $N = 4$ の時，図 2.3 に示したように， $B_c = 3.44$ T で $S_{\text{tot}} = 1$ から $S_{\text{tot}} = 2$ へ転移が見られる．

2.3.2 一電子付加エネルギー

実験結果との比較の為に，クーロン振動のピーク間隔 [1, 2] に対応する一電子付加エネルギーを計算した．これは電気化学ポテンシャルとも呼ばれる．ドット内の N 番目の電子の一電子付加エネルギーは

$$\mu_N = E_N - E_{N-1}, \quad (2.13)$$

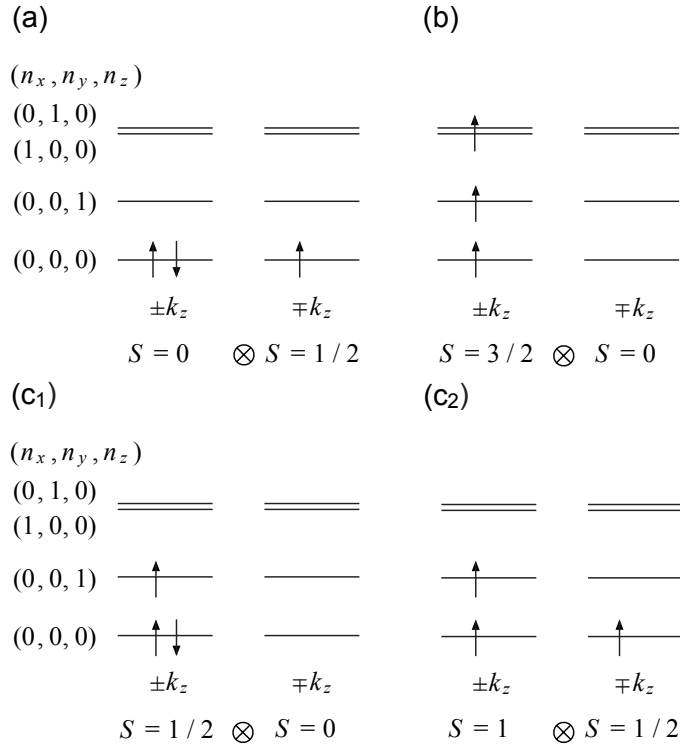


図 2.2: 球形量子ドットにおける $N = 3$ の基底状態に対する電子配置. $\pm k_z$ は谷のインデックスで, (n_x, n_y, n_z) は各一電子準位に対する軌道量子数. 配置 (a) と (b) はドットサイズがそれぞれ $l = 5$ nm と 15 nm の時, 基底状態となる. 配置 (c₁) あるいは (c₂) は $l = 10$ nm の時, 基底状態となる. ドットサイズが $l = 7.5$ nm の時, $B < 9.47$ T では配置 (a) が, $B > 9.47$ T では (c₂) が基底状態となる.

で与えられる. ここで E_N は N 電子系基底状態のエネルギーで, 一電子準位のエネルギー, 電子間相互作用, 磁場による Zeeman エネルギーからなる. 磁場を印加していった時の, 一電子付加エネルギーの変化を考える. 図 2.4 に磁場 B の関数としての μ_N ($N = 1 \sim 5$) を示した. 全エネルギーのうち, 磁場に依存するのは Zeeman 効果によるもののみなので, $\mu_N(B)$ の傾きは

$$-g^* \mu_B [S_{\text{tot}}(N) - S_{\text{tot}}(N - 1)],$$

で与えられ, N 電子での全スピン $S_{\text{tot}}(N)$ を反映する.

図 2.4(a) では, ドットサイズは最も小さく $l = 5$ nm である. 一電子準位は電子数 N の増加に伴って下から順に占有される. $N = 2$ に対しては前に述べたように, 磁場下で電子はスピンを揃えて異なる谷に入る. その結果, $N = 1 \sim 5$ に対してそれぞれ $S_{\text{tot}}(N) = 1/2, 1, 1/2, 0, 1/2$ となる. これにより傾きは, $\mu_1(B), \mu_2(B), \mu_5(B)$ に対しては $-g^* \mu_B/2$ となり, $\mu_4(B), \mu_3(B)$ に対しては $+g^* \mu_B/2$ となる.

図 2.4(b) はドットが大きい場合で, $l = 15$ nm である. 交換エネルギーを得るために, 電

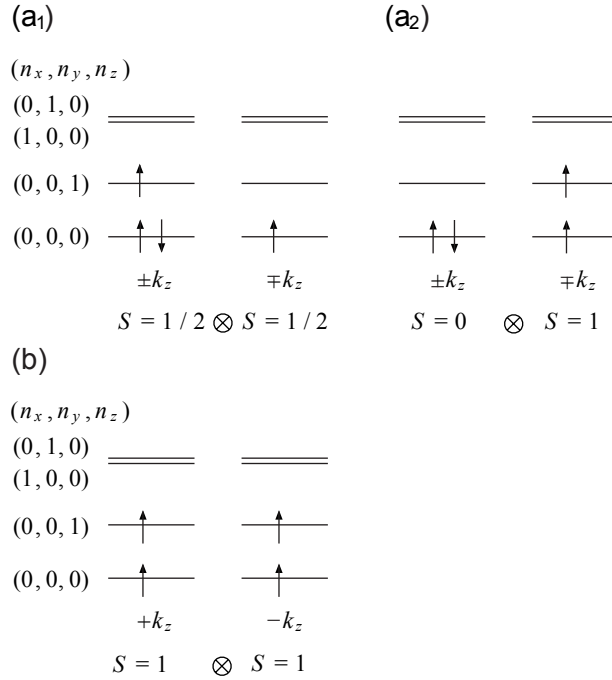


図 2.3: ドットサイズ $l = 7.5$ nm の球形量子ドットにおける, $N = 4$ の基底状態に対する磁場による電子配置の違い. $\pm k_z$ は谷のインデックスで, (n_x, n_y, n_z) は各一電子準位に対する軌道量子数. $B < 3.44$ T では配置 (a₁) と (a₂) が, $B > 3.44$ T では (b) が基底状態となる.

子は高スピン $S_{\text{tot}}(N) = N/2$ を作って一つの谷の上の準位を占有する. 従って $N = 1 \sim 5$ に対し, $\mu_N(B)$ は互いに平行で, 同じ傾き $-g^* \mu_B/2$ を持つ. ドットサイズが $l = 10$ nm でも同様に, $N = 1 \sim 5$ に対し, 高スピン $S_{\text{tot}}(N) = N/2$ が現れる. $\mu_N(B)$ の傾きは図 2.4(b) のそれと同じである.

図 2.4(c) では, ドットサイズは $l = 7.5$ nm である. $\mu_3(B)$ は $B_c = 9.47$ T に折れ曲がりを持つが, これは $N = 3$ の基底状態が $S_{\text{tot}}(3) = 1/2$ から $3/2$ へと転移する為である. $S_{\text{tot}}(2) = 1$ なので, $\mu_3(B)$ の傾きはそれぞれ $B < B_c$ で $g^* \mu_B/2$, $B > B_c$ で $-g^* \mu_B/2$ となる. この転移は同じ磁場の値で $\mu_4(B)$ に折れ曲がりを生ずる. $S_{\text{tot}}(4) = 2$ なので, $\mu_4(B)$ の傾きは $B < B_c$ で $-3g^* \mu_B/2$, $B > B_c$ で $-g^* \mu_B/2$ となる. 同様に $N = 4$ の基底状態の転移は, $\mu_4(B)$ と $\mu_5(B)$ に $B_c = 3.44$ T で折れ曲がりの組を生じさせる. このような隣り合った一電子付加エネルギーの折れ曲がりの組はクーロン振動の実験 [17] でも観測されている.

図 2.4(c) の 3.44 T $< B < 9.47$ T で, $\mu_4(B)$ は傾き $-3g^* \mu_B/2$ を持つ (図の点線部分). この時量子ドットを介するコンダクタンスは抑制される. 何故なら $N = 3$ は $S_{\text{tot}} = 1/2$ で $N = 4$ は $S_{\text{tot}} = 2$ であるため, 1 つの電子を加えた時の全スピンの変化が $3/2$ となるからである. これは 4 番目の電子の追加に伴ってドット内のスピンの反転が同時に起こらない

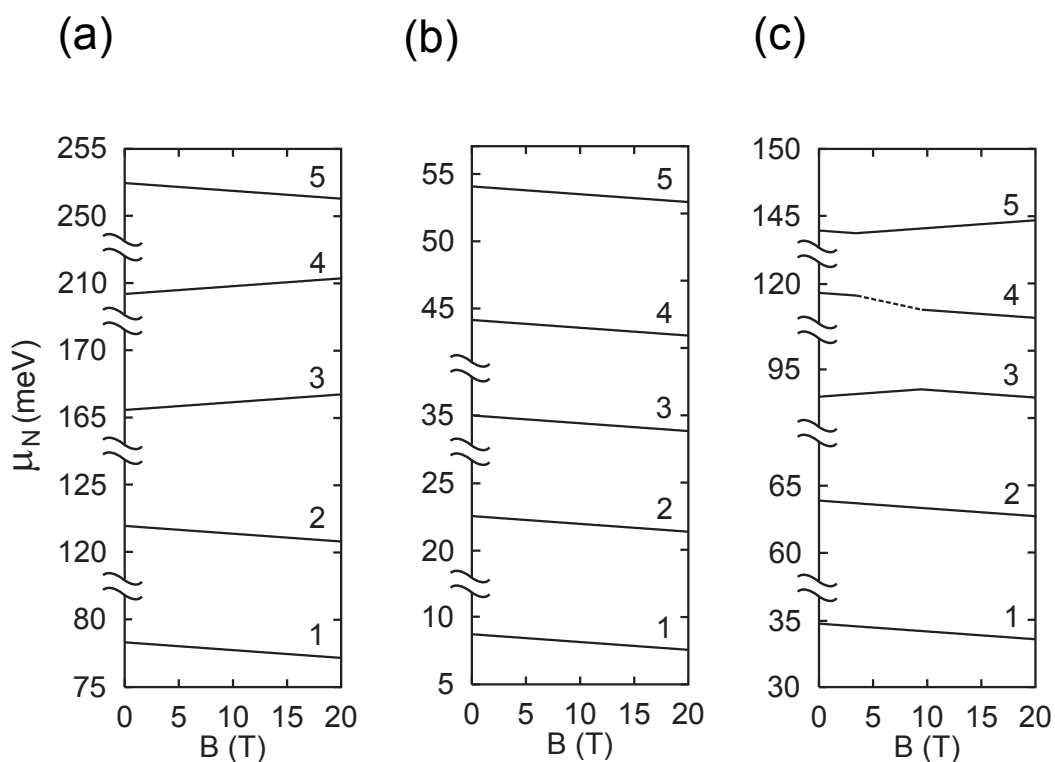


図 2.4: 球形量子ドットにおける, 一電子付加エネルギー, μ_N ($N = 1 \sim 5$) の磁場 B に対する振る舞い. ドットサイズは (a) $l = 5$ nm, (b) 15 nm, (c) 7.5 nm. (c) では, $\mu_4(B)$ の $3.44 \text{ T} < B < 9.47 \text{ T}$ (点線) で, $S_{\text{tot}}(4) - S_{\text{tot}}(3) > 1/2$ となるために量子ドットに電子を流すことができず, スピンブロックイドが起きる.

と実現しないため，4番目の電子の追加が禁止される．これはスピントロケイドと呼ばれ [41]，Si 量子ドットの実験でも観測されている [17]．

2.4 異方的な閉じ込めの影響

前節では Si 量子ドットの基本的性質を調べる為，等方的な閉じ込めについて調べた．この節では異方的な閉じ込めについて調べる．酸化技術 [13, 14, 15, 17, 18, 19] によって Si ワイヤー中に作られた量子ドットは，ワイヤーの長さ方向に沿ってサイズ (閉じ込めの幅) が長いと推測される．ここでは格子の [110] 方向に長い [14]，回転楕円体のポテンシャル

$$V(x, y, z) = \frac{1}{2} \left[K' \left(\frac{x+y}{\sqrt{2}} \right)^2 + K \left(\frac{-x+y}{\sqrt{2}} \right)^2 + Kz^2 \right], \quad (2.14)$$

を考える．ここで $K' < K$ である． $X = (x+y)/\sqrt{2}$, $Y = (-x+y)/\sqrt{2}$ の座標変換により，このポテンシャルは

$$V(X, Y, z) = \frac{1}{2} (K'X^2 + KY^2 + Kz^2),$$

と書き直せる． $\pm k_z$ の谷に対し，一電子準位は，

$$\begin{aligned} \varepsilon(\pm k_z; n_X, n_Y, n_z) \\ = \hbar \sqrt{\frac{K'}{m_t^*}} \left(n_X + \frac{1}{2} \right) + \hbar \sqrt{\frac{K}{m_t^*}} \left(n_Y + \frac{1}{2} \right) + \hbar \sqrt{\frac{K}{m_t^*}} \left(n_z + \frac{1}{2} \right), \end{aligned} \quad (2.15)$$

で与えられる．(包絡関数等の計算方法は付録 A.4 参照)． $[\bar{1}10]$ および $[001]$ 方向のサイズは， $\omega_{Yt} = \omega_{zt} = \sqrt{K/m_t^*}$ としてそれぞれ，

$$\begin{aligned} l_Y &= 2\sqrt{\frac{\hbar}{m_t^* \omega_{Yt}}}, \\ l_z &= 2\sqrt{\frac{\hbar}{m_t^* \omega_{zt}}}, \end{aligned}$$

で与える．これらを $l_Y = l_z = 5$ nm に固定したまま， $\omega_{Xt} = \sqrt{K'/m_t^*}$ を用いて表される， $[110]$ 方向の閉じ込めポテンシャルのサイズ，

$$l_X = 2\sqrt{\frac{\hbar}{m_t^* \omega_{Xt}}},$$

を 5 nm, 10 nm, 15 nm と変化させ調べた．

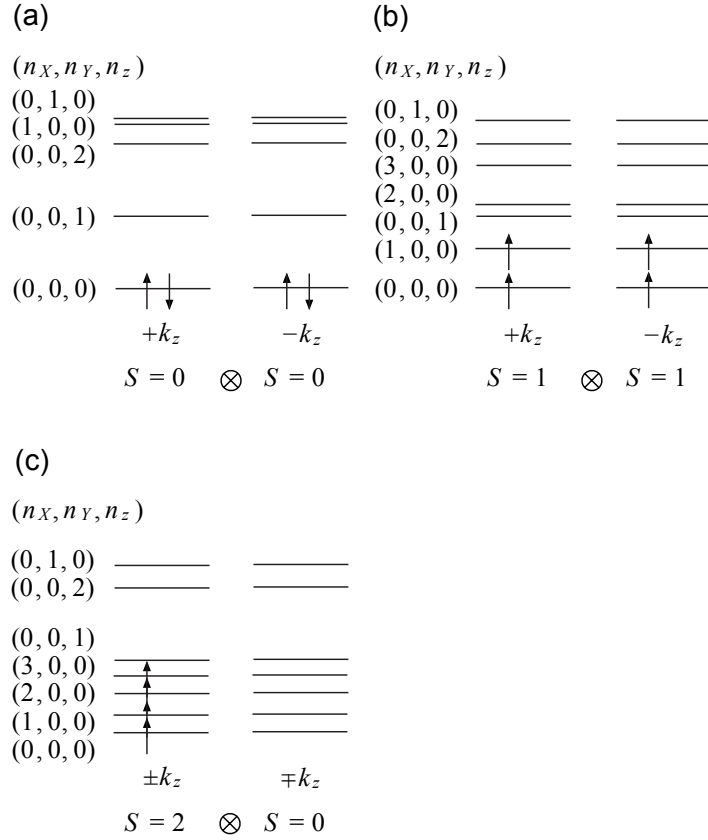


図 2.5: 形状異方性を持つ量子ドットにおける $N = 4$ の基底状態に対する電子配置． $\pm k_z$ は谷のインデックスで， (n_x, n_y, n_z) は各一電子準位に対する軌道量子数． $[110]$ 方向のドットサイズは (a) $l_X = 5$ nm, (b) 10 nm, (c) 15 nm で，他の方向は $l_Y = l_z = 5$ nm に固定．

図 2.5 は $N = 4$ の基底状態の電子配置で，それぞれ (a) $l_X = 5$ nm (等方的なドット), (b) $l_X = 10$ nm, (c) $l_X = 15$ nm である．量子ドットの形状が $[110]$ 方向に長くなるにつれ，エネルギー準位 $(n_X, 0, 0)$ ($n_X = 1, 2, 3, \dots$) は下がってくる．これは式 (2.15) における K' が小さくなるからである．電子はこれらの準位のうち (a) では $(\pm k_z; 0, 0, 0)$, (b) では $(\pm k_z; 0, 0, 0)$ と $(\pm k_z; 1, 0, 0)$, (c) では $\pm k_z$ のどちらかの谷の $(0, 0, 0)$ から $(3, 0, 0)$ を占める．このことから，電子は量子ドットが長い方向に沿って分布する傾向を示すことが分かる．また， $(n_X, 0, 0)$ 間の準位間隔が小さいことを反映して，(a) $S_{\text{tot}} = 0$, (b) $S_{\text{tot}} = 1 \otimes 1 = 0 \oplus 1 \oplus 2$, (c) $S_{\text{tot}} = 2$ と，より高スピン状態が現れる．磁場下で $l_X = 10$ nm と 15 nm ($l_Y = l_z = 5$ nm) の量子ドットでは， $N = 1 \sim 5$ に対し，基底状態は $S_{\text{tot}}(N) = N/2$ の高スピン状態であることが分かった．

一電子付加エネルギー μ_N の磁場依存性は図 2.4(b) と同じように全て同じ傾き $-g^* \mu_B/2$ を示す．

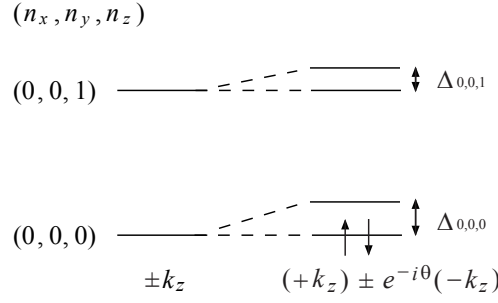


図 2.6: 谷間結合が一電子エネルギー準位に与える影響 . $(\pm k_z; n_x, n_y, n_z)$ の縮退した準位は 2 つに分裂する .

2.5 谷間結合の影響

谷間結合は量子ドットのサイズが格子定数に比べずっと大きく、閉じ込めポテンシャルが滑らかであれば起きない.⁵ しかしながら量子ドット内に不純物があったり、閉じ込めポテンシャルの端が急峻であると起き、異なる谷の電子状態を混ぜる . 急峻な端に起因する谷間結合については 4 章で調べるとして、ここでは、量子ドット内の位置 \mathbf{R} にある不純物ポテンシャル、

$$V_{\text{imp}}(\mathbf{r}) = V_0 \delta(\mathbf{r} - \mathbf{R}), \quad (2.16)$$

を摂動の最低次で考え、谷間結合が電子・スピン状態に与える効果を調べる .

図 2.6 に示したように、縮退した $(\pm k_z; n_x, n_y, n_z)$ の準位はこのポテンシャルで、

$$\varepsilon(a; n_x, n_y, n_z) = \varepsilon(\pm k_z; n_x, n_y, n_z),$$

および

$$\varepsilon(b; n_x, n_y, n_z) = \varepsilon(\pm k_z; n_x, n_y, n_z) + \Delta_{n_x, n_y, n_z},$$

に分裂する.⁶ ここで、

$$\Delta_{n_x, n_y, n_z} = 2V_0 |F_{\pm k_z}^{n_x, n_y, n_z}(\mathbf{R})|^2 |u_{\pm k_z}(\mathbf{R})|^2,$$

⁵閉じ込めポテンシャルによる谷間結合は

$$\int d\mathbf{r} \psi_{\pm k_z}^{n_x, n_y, n_z*}(\mathbf{r}) V(\mathbf{r}) \psi_{\mp k_z}^{n'_x, n'_y, n'_z}(\mathbf{r}) = \int d\mathbf{r} e^{\mp 2i\mathbf{k}_z \cdot \mathbf{r}} F_{\pm k_z}^{n_x, n_y, n_z*}(\mathbf{r}) u_{\pm k_z}^*(\mathbf{r}) V(\mathbf{r}) F_{\mp k_z}^{n'_x, n'_y, n'_z}(\mathbf{r}) u_{\mp k_z}(\mathbf{r}),$$

で与えられる . この積分値は速い振動因子のために無視できるほど小さくなる .

⁶ $\psi_{+k_z}^{n_x, n_y, n_z}(\mathbf{r}), \psi_{-k_z}^{n_x, n_y, n_z}(\mathbf{r})$ に対する摂動ハミルトニアン行列要素は

$$H' = \begin{pmatrix} \frac{1}{2} \Delta_{n_x, n_y, n_z} & \frac{1}{2} \Delta_{n_x, n_y, n_z} e^{i\theta} \\ \frac{1}{2} \Delta_{n_x, n_y, n_z} e^{-i\theta} & \frac{1}{2} \Delta_{n_x, n_y, n_z} \end{pmatrix},$$

で、対角要素のためにエネルギーが $\frac{1}{2} \Delta_{n_x, n_y, n_z}$ 上がり、そこから上下に $\frac{1}{2} \Delta_{n_x, n_y, n_z}$ 分裂する .

対応する波動関数はそれぞれ，

$$\begin{aligned}\psi_a^{n_x, n_y, n_z}(\mathbf{r}) &= \frac{1}{\sqrt{2}} \{ \psi_{+k_z}^{n_x, n_y, n_z}(\mathbf{r}) - e^{-i\theta} \psi_{-k_z}^{n_x, n_y, n_z}(\mathbf{r}) \}, \\ \psi_b^{n_x, n_y, n_z}(\mathbf{r}) &= \frac{1}{\sqrt{2}} \{ \psi_{+k_z}^{n_x, n_y, n_z}(\mathbf{r}) + e^{-i\theta} \psi_{-k_z}^{n_x, n_y, n_z}(\mathbf{r}) \},\end{aligned}$$

となる．ただし，

$$\theta = \arg \left[\int d\mathbf{r} \psi_{+k_z}^{n_x, n_y, n_z*}(\mathbf{r}) V_{\text{imp}}(\mathbf{r}) \psi_{-k_z}^{n_x, n_y, n_z}(\mathbf{r}) \right],$$

である．

次に 2.3.1 項の結果を用いて計算を行うことにより，電子間相互作用について次の特徴を持つことが分かった（詳細な計算方法は付録 A.5 参照）．

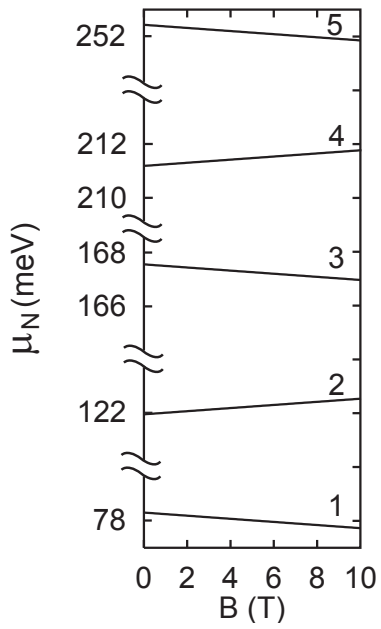
1. $(a; n_x, n_y, n_z)$ と $(a; n'_x, n'_y, n'_z)$ の間のクーロン積分は， $(b; n_x, n_y, n_z)$ と $(b; n'_x, n'_y, n'_z)$ ， $(a; n_x, n_y, n_z)$ と $(b; n'_x, n'_y, n'_z)$ の間のそれと等しい．
2. 量子ドットのサイズが格子定数に比べて大きい時， $(a; n_x, n_y, n_z)$ と $(b; n'_x, n'_y, n'_z)$ の間の交換積分は一電子準位間隔やクーロン積分，熱エネルギーと比べて無視できるほど小さい．

谷間結合は $l = 5$ nm の球状量子ドットでスピン状態に影響を与える．谷間結合がない時，電子数 $N = 2$ では異なるスピン状態を持つ配置が縮退し，磁場下では，図 2.1(a₂) に示したように，2つの電子は $(\pm k_z; 0, 0, 0)$ の縮退した準位をスピンを平行にして $S_{\text{tot}}(2) = 1$ で占有する．谷間結合がある時は，図 2.6 に示したように，2つの電子は $(a; 0, 0, 0)$ の最低準位にスピンを反平行にして $S_{\text{tot}}(2) = 0$ で占有し，弱磁場下でもこの配置が基底状態となる． $N = 1 \sim 5$ に対し，一電子準位は下から順に占有されるため，スピン状態はそれぞれ $S_{\text{tot}}(N) = 1/2, 0, 1/2, 0, 1/2$ となる．

$\Delta_{0,0,0} = 2$ meV の場合について， $N = 1 \sim 5$ における一電子付加エネルギーの磁場に対する振る舞いを図 2.7(a) に示した．全スピンは $S_{\text{tot}}(N) = 1/2, 0, 1/2, 0, 1/2$ と変化するので，式 (2.13) より， μ_N の傾きは N の増加に伴い， $-g^* \mu_B/2$ と $+g^* \mu_B/2$ が交互に現れる． $\Delta_{0,0,0} = 0.4$ meV の場合では，一電子準位のエネルギーと Zeeman 効果の競合により， $g^* \mu_B B_c = \Delta_{0,0,0}$ となる $B_c = 3.45$ T で， $N = 2$ の基底状態の転移が起きる． $B < B_c$ では，図 2.6 に示したように，2つの電子は $S_{\text{tot}}(2) = 0$ となって $(a; 0, 0, 0)$ を占有している． $B > B_c$ では Zeeman エネルギーで得をするために，一方の電子は $(a; 0, 0, 0)$ の準位を，他方の電子は $(b; 0, 0, 0)$ の準位をスピンを平行にして $S_{\text{tot}}(2) = 1$ で占有する．この転移は，図 2.7(b) にあるように， μ_2 と μ_3 に折れ曲がりの組を作る．

ドットサイズが 10 nm よりずっと大きい場合，谷間結合はスピン状態を変化させない．電子は $(a; 0, 0, 0)$ ， $(a; 0, 0, 1)$ ， $(a; 1, 0, 0)$ ， \dots の準位を，交換相互作用を得るためにスピンを平行にして占有する． $(b; n_x, n_y, n_z)$ を占有しないのは， $(b; n_x, n_y, n_z)$ と $(a; n'_x, n'_y, n'_z)$ の間には交換相互作用がはたらかないためである．この時，最大スピン状態 $S_{\text{tot}}(N) = N/2$

(a)



(b)

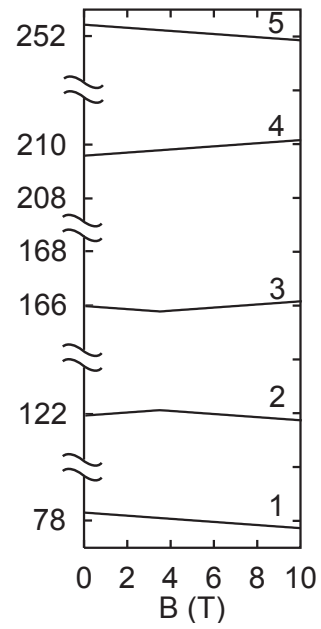


図 2.7: 谷間結合がある場合の, $l = 5$ nm の等方的な量子ドットにおける, 一電子付加工ネルギー, μ_N ($N = 1$ から 5) の磁場 B に対する振る舞い. 谷間結合によるエネルギー分裂は (a) $\Delta_{0,0,0} = 2$ meV, (b) $\Delta_{0,0,0} = 0.4$ meV.

が現れる．一電子付加エネルギー $\mu_N(B)$ は， $N = 1 \sim 5$ に対し，図 2.4(b) と同じように，全て同じ傾き $-g^* \mu_B/2$ を持つ．

2.6 結論と議論

多谷構造を持つ人工原子である，Si 量子ドットにおける電子・スピン状態を理論的に調べた．

1. 10 nm より小さい球状量子ドットでは，電子数 N の増加に伴い，等価な谷の一電子準位は下から順に占有される．この時，異なる谷間のスピン結合がないために，磁場の下では高スピン状態が現れる．これは，高スピンは軌道縮退がある場合のみ交換相互作用によって現れる (Hund 則) GaAs 量子ドットの場合 [1, 2] とは極めて異なる．
2. 10 nm よりずっと大きい球状量子ドットでは，電子は交換エネルギーを得るために最大スピン $S_{\text{tot}} = N/2$ を作って，同じ谷の上の準位を占有する．
3. 形状異方性を持つ量子ドットでは，電子はドットが長い方向に沿って分布する．
4. 谷間結合がある場合，異なる谷の縮退していた準位は混ざり，分裂する．小さな量子ドットでは，これは最低スピン状態 $S_{\text{tot}} = 0$ または $1/2$ を生む．大きな量子ドットでのスピン状態は谷間結合によって影響を受けない．

伝導バンドの多谷構造について，我々は $\pm k_z$ の 2 つの等価な谷が他の谷 $\pm k_x$ と $\pm k_y$ より低いと仮定した．しかし，例えば chemical vapor deposition で作成された他の Si 量子ドット [16] では，6 つの谷が等価であると推測される．このような量子ドットの電子状態について簡単に述べる．等方的なドットでは，最低準位は $(\pm k_x; 0, 0, 0)$, $(\pm k_y; 0, 0, 0)$, $(\pm k_z; 0, 0, 0)$ で，6 重縮退である．

1. 量子ドットのサイズが 5 nm 以下の時 [式 (2.12) の $E_{\text{int}}/E_{\text{levels}}$ が 1 程度以下の時]，一電子準位間隔が電子間相互作用よりも十分大きいために，最初の 6 つの電子はこれらの最低準位を占有する．異なる谷間の交換相互作用がないために，異なるスピン状態が縮退する．例えば $N = 6$ に対し，2 つの電子によって準位 $(\pm k_i; 0, 0, 0)$ [$k_i = k_x, k_y, k_z$] が $S = 0$ または 1 となって占有される.⁷ 全スピンは $S_{\text{tot}} = (1 \oplus 0) \otimes (1 \oplus 0) \otimes (1 \oplus 0) = 0, 1, 2, 3$ となるが，これらのエネルギーは全て縮退する．磁場下ではこれらのうち最大スピンのものが出現するが，2.5 節で述べたように，谷間結合があると低スピン状態が現れる．
2. ドットサイズが 5 nm より十分に大きい時 [式 (2.12) の $E_{\text{int}}/E_{\text{levels}}$ が 10 程度より大きい時]，電子間相互作用で得をするために，全ての電子は一つの谷に入る．それらは

⁷ $(\pm k_i; n_x, n_y, n_z)$ と $(\pm k_j; n'_x, n'_y, n'_z)$ の間のクーロン相互作用は $(\pm k_i; n_x, n_y, n_z)$ と $(\mp k_j; n'_x, n'_y, n'_z)$ ($i, j = x, y, z$) の間のそれと等しい． $(\pm k_i; n_x, n_y, n_z)$ と $(\pm k_i; n'_x, n'_y, n'_z)$ の間のクーロン相互作用は $(\pm k_i; n_x, n_y, n_z)$ と $(\pm k_j; n'_x, n'_y, n'_z)$ ($k_i \neq k_j$) のそれとは異なる: $(n_x, n_y, n_z) = (0, 0, 0)$ に対して，前者の方が後者よりも大きい．何故ならば，有効質量の異方性の為に，包絡関数 $(\pm k_i; 0, 0, 0)$ は i 方向に縮んでいるからである．[例えば， $\pm k_z$ の谷に対する式 (2.5) 参照．]

交換エネルギーを得る為に，最大スピン $S_{\text{tot}} = N/2$ を作る．形状異方性を持つ量子ドットでは，6つの谷が等価であるにもかかわらず，有効質量の異方性を反映して，最低エネルギー準位は2重縮退である．この時，電子状態は2つの等価な谷がある場合のそれと似ている．

本研究では準定量的議論のために，多体状態を N 電子による一電子準位の占有の配置に対応する単一の Slater 行列式によって表現し，配置間相互作用を無視した．これに関して述べておく．

1. 2.3節で述べたように，量子ドットのサイズが小さい場合，電子は谷を問わず下の一電子準位から順に占有する．そのため $N = 2$ の基底状態は，2つの電子が同じ谷の $(0, 0, 0)$ の準位に入る ($S_{\text{tot}} = 0$) 配置 [図 2.1(a₁)] と，異なる谷の $(0, 0, 0)$ の準位に入る ($S_{\text{tot}} = 1/2 \otimes 1/2 = 0 \oplus 1$) 配置 [図 2.1(a₂)] が縮退しており，磁場をかけると $S_{\text{tot}} = 1$, $S_{\text{tot},z} = 1$ が実現すると述べた．配置間相互作用を考慮することで，前者は，励起状態が混合してエネルギーが下がる．ところが，異なる谷の電子間の配置間相互作用は，異なる谷の電子間の交換相互作用が式 (2.11) で速い振動因子を積分するため無視できるのと同じ理由で無視できるため，その配置は同じ谷の中の励起状態に限られる．一方，図 2.1(a₁) の配置に混合する励起状態の配置に対応して，図 2.1(a₂) の配置に混合する異なる谷の励起状態の配置がある．結果として，両者の場合でエネルギーの上がり方は同じになる．よって，配置間相互作用を考慮しても，同じ谷にある場合と異なる谷にある場合の異なるスピン状態が縮退し，磁場下では最大スピンを持つものが実現するという結果は変わらない．
2. 量子ドットのサイズを大きくしていった際の基底状態の決定には，電子が同じ谷の上の準位に高スピンを作って占有した状態 [図 2.1(b)] と，同じ谷の同じ準位に低スピン状態を作って占有した状態 [図 2.1(a₁)，ただし図 2.1(a₂) と同じエネルギーを持つ] を比較しなければならない．この場合には，配置間相互作用を考慮することによって，低スピン状態の方が高スピン状態よりもエネルギーが下がる．このため，今回の計算で，配置間相互作用を無視したことで，同じ谷にある場合の低スピン状態のエネルギーは，高スピン状態のエネルギーに比べて，多めに見積られている．ゆえに高スピンの現れるドットのサイズを過小に見積っている可能性がある．

Si 量子ドットにおける，多谷構造がある場合の配置間相互作用の考察は今後の研究を必要とする．

Si 量子ドットでのスピン状態は，今まで述べてきたように，サイズと形の両方に依存する．個々の量子ドットの正確な形が分からないので，我々の計算結果を直接クーロン振動の実験結果 [17, 18, 19] と比較することは出来ないが，参考に，図 2.9 に，Rohinson らによる実験結果 [17] を示す．この実験で用いられた量子ドットの詳細な作製方法は文献 [42] に述べられているが，簡単に説明すると，シリコンの微細加工技術を利用し，図 2.8 に示したように，中央部分をふくらませてあるワイヤーを用意し，これを酸化して作製される．実際の量子ドットは，ゲート酸化を行った後，酸化されないで残った Si の部分に相

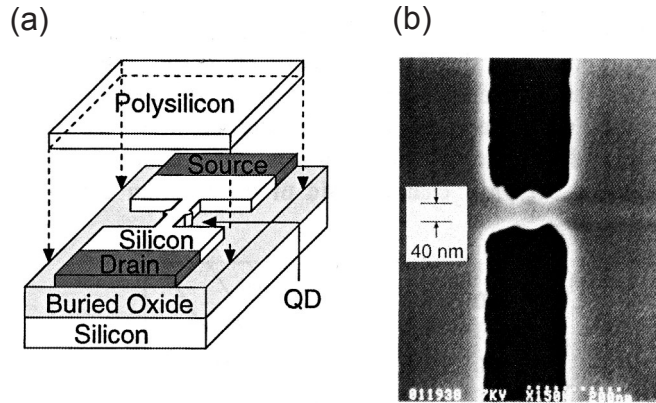


図 2.8: (a)Si 量子ドットの模式図 . (b) ゲート酸化前のエッチングされたチャンネルの SEM 映像 . 量子ドットのサイズと細く絞り込まれた部分の幅は , ゲート酸化により , より小さくなる . とともに [42] より引用 .

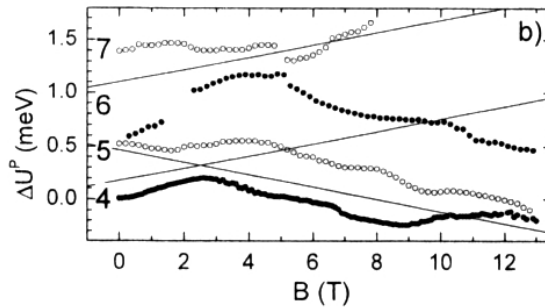


図 2.9: $N = 4, 5, 6, 7$ に対する , クーロン振動のピークの変化 $\Delta U^P(B) = [V_g^p(B) - V_g^p(0)]/\alpha$ の磁場依存性 [17] . $V_g^p(B)$ は磁場 B 下における電流のピークが現れるゲート電圧の位置 , 磁場は電流に平行に印加している . ゼロ磁場での位置はオフセットしている . ピークコンダクタンスが $0.01 \mu S$ 以下の点は省略してある . 図中の線は傾き $\pm 1/2\mu_B$ を持つ .

当するので , 詳細な形状は分からない . しかし , バイアス下でのスペクトロスコピーを使って測定される一電子準位間隔から見積ると , およそのサイズは $10 \sim 19 \text{ nm}$ であり , リソグラフィーのサイズとつじつまが合う . またこの量子ドットでは先に述べた一電子準位間隔が $1 \sim 4 \text{ meV}$, 帯電エネルギーが 10 meV と , その大きさが同程度になっている . 実際の測定ではゲート電圧を制御して電流のピーク位置を測定するが , このピーク位置のゲート電圧 V_g^p からゲート電圧 / エネルギー変換係数 α を介して , 量子ドットの一電子付加エネルギーが見積られる . 電子数 $N = 4 \sim 7$ に対するピーク位置の変化

$$\Delta U^P(B) = [V_g^p(B) - V_g^p(0)]/\alpha$$

の磁場依存性を図 2.9 に示す．ゼロ磁場下での値はオフセットしてある．この $\Delta U^P(B)$ の傾きは 2.3.2 項で述べた $\mu_N(B)$ の傾きに当たる．この結果では，傾きは弱磁場下で右上がりのものと右下がりのものが交互に現れる傾向がある．これは図 2.4(a)-2.4(c) よりも図 2.7(a), 2.7(b) のそれに似ていて，量子ドットのサイズは小さく，谷間結合が存在し，低スピン状態が実現していると考えられる．また，図 2.4(c) あるいは 2.7(b) のような，磁場の増加による基底状態の転移を示唆するような折れ曲がりの組が $N = 4$ と 5, 6 と 7 に見られる． $N = 6$ の弱磁場では，傾きが他のものより大きく，電流が流れない部分が見られるが，これは $|S_{\text{tot}}(N+1) - S_{\text{tot}}(N)| > 1/2$ のスピنبロケイド [図 2.4(c) の点線] に当たると考えられる．我々は谷間結合によってスピン状態が変化することを指摘したが，もし谷間結合の強さを STM 装置などで調節することが出来るなら，Si 量子ドットでのスピン状態が制御可能になるかも知れない．

第3章 シリコン二重量子ドットにおける 電子・スピン状態と交換結合

3.1 序

量子ドット中の電子スピンをビットに用いた量子コンピュータデバイスでの2ビット操作は、隣り合った量子ドットの電子スピン、 S_1, S_2 間での反強磁性 Heisenberg ハミルトニアン

$$H_{\text{eff}} = JS_1 \cdot S_2, \quad (3.1)$$

による結合を利用して行う。この章での目的は、多谷構造を考慮した二重量子ドットでの電子・スピン状態を議論し、この交換結合の強さ J を評価することである。その際、電子間のクーロン相互作用を厳密に取り入れる。量子ドット間の異なる谷間のトンネル結合が、局在スピン間の交換結合に重要な役割を果たすことを示す。

Si の二重量子ドットを扱う前に、まず伝導バンドに谷を1つしか持たない GaAs の二重量子ドットのモデルを考え、交換結合がどのように見積られるかを示す [12]。2つの電子が、2つの量子ドット L と R のいずれかに存在する場合を考える。それぞれの電子は量子ドット $j = L, R$ の最低準位を、スピンを $\sigma = \uparrow$ または \downarrow にして占有する。この状態を $|j, \sigma\rangle$ で表す。図 3.1 にあるように、ゲート電極 L と R を用いて、エネルギー準位は ε_0 に揃えておく。量子ドット間のトンネル結合を t とすると、ハミルトニアンは、

$$\begin{aligned} H = & \varepsilon_0 \sum_{j=L,R} \sum_{\sigma=\uparrow,\downarrow} n_{j,\sigma} \\ & + U_L n_{L,\uparrow} n_{L,\downarrow} + U_R n_{R,\uparrow} n_{R,\downarrow} + U_1 \sum_{\sigma_1, \sigma_2=\uparrow,\downarrow} n_{L,\sigma_1} n_{R,\sigma_2} \\ & - t \sum_{\sigma=\uparrow,\downarrow} \left[d_{L,\sigma}^\dagger d_{R,\sigma} + d_{R,\sigma}^\dagger d_{L,\sigma} \right], \end{aligned} \quad (3.2)$$

と書ける。ここで $d_{j,\sigma}^\dagger$ と $d_{j,\sigma}$ はそれぞれ、 $|j, \sigma\rangle$ に対する生成および消滅演算子で、 $n_{j,\sigma} = d_{j,\sigma}^\dagger d_{j,\sigma}$ は数演算子である。同じ量子ドット内にある電子間のクーロン相互作用、 U_L と U_R は、簡単の為に $U_L = U_R \equiv U_0$ で等しいとし、異なる量子ドットにある電子間のクーロン相互作用は U_1 と表す。ハミルトニアン、式 (3.2) を厳密に対角化し、基底および励起状態を得た。基底状態はスピン 1 重項で、

$$|g\rangle = |L \uparrow; L \downarrow\rangle + |R \uparrow; R \downarrow\rangle$$

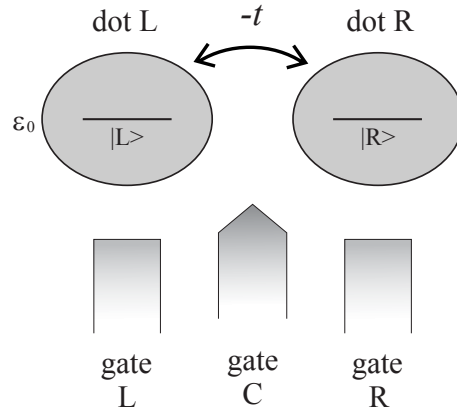


図 3.1: 伝導バンドに谷を一つしか持たない化合物半導体からなる二重量子ドット系．量子ドット L と R の最低準位は，ゲート電極 L と R を用いて揃えられている．量子ドット間のトンネル結合 t は中央のゲート C で調節出来る．

$$+\frac{1}{4} \left(\bar{U} + \sqrt{\bar{U}^2 + 16} \right) [|L \uparrow; R \downarrow\rangle - |L \downarrow; R \uparrow\rangle], \quad (3.3)$$

で与えられる．ここで $\bar{U} = (U_0 - U_1)/t$ である．これ以降，2 電子状態については規格化因子を省略する．基底状態のエネルギーは

$$E_{\text{ground}} = 2\varepsilon_0 + \frac{1}{2} \left[(U_0 + U_1) - \sqrt{(U_0 - U_1)^2 + 16t^2} \right], \quad (3.4)$$

となる．ここで用いられているパラメータ \bar{U} は，電子間の排斥的相関効果の強さを特徴付ける．相関が強い場合 ($\bar{U} \gg 1$)，電子はそれぞれの量子ドットに局在する．つまり

$$\text{式 (3.3)} \approx |L \uparrow; R \downarrow\rangle - |L \downarrow; R \uparrow\rangle,$$

となり，Heitler-London 波動関数 [43] と呼ばれる状態になる．一方，相関が弱い場合 ($\bar{U} \ll 1$) は，2 つの電子は結合軌道

$$|\psi_b\rangle = \frac{1}{\sqrt{2}}(|L\rangle + |R\rangle),$$

を占有し，

$$\text{式 (3.3)} \approx |\psi_b \uparrow; \psi_b \downarrow\rangle,$$

となる．我々は前者の場合に注目する．

第一励起状態はスピン 3 重項で，

$$|L \uparrow; R \uparrow\rangle, \frac{1}{\sqrt{2}} [|L \uparrow; R \downarrow\rangle + |L \downarrow; R \uparrow\rangle], |L \downarrow; R \downarrow\rangle,$$

エネルギーは $E_{\text{excited}} = 2\varepsilon_0 + U_1$ である．これらより，交換結合の強さ J は，

$$\begin{aligned} J &= E_{\text{excited}} - E_{\text{ground}} \\ &= \frac{1}{2} \left[\sqrt{(U_0 - U_1)^2 + 16t^2} - (U_0 - U_1) \right], \end{aligned}$$

となり，特に $\bar{U} \gg 1$ の場合は，

$$J \approx 4t^2 / (U_0 - U_1), \quad (3.5)$$

で与えられる．この時，それぞれの量子ドットに局在する電子のスピン， S_1 と S_2 の全スピンの $S_{\text{tot}} = 1$ の方が $S_{\text{tot}} = 0$ より J だけエネルギーが高いということなので，実効ハミルトニアンは式 (3.1) で与えられる． J の値は図 3.1 のゲート C を操作して，トンネル結合 t を変化させることにより調節することが出来る．式 (3.5) の J を $J^{(1\text{-valley})}$ と表し，Si 二重量子ドットにおける交換結合と比較する．

この章の構成は次の通りである．次の 3.2 節では式 (3.2) のモデルを拡張して，多谷構造を考慮した Si 二重量子ドットに対するモデルを考える．3.3 節では上記のモデルに対する計算結果を示し，Si 二重量子ドットにおける交換結合を評価・考察する．3.4 節では実際の系での交換結合の値を見積り，3.5 節でまとめを行う．

3.2 モデル

多谷構造を考慮して，図 3.2(a) にあるような Si 二重量子ドットのモデルを考える．ポテンシャル $V(\mathbf{r})$ は，量子ドット L の閉じ込めポテンシャル $V_L(\mathbf{r} + \mathbf{d})$ と，量子ドット R の閉じ込めポテンシャル $V_R(\mathbf{r} - \mathbf{d})$ ，および中間領域でのポテンシャル $V_C(\mathbf{r})$ からなる．

$$V(\mathbf{r}) = V_L(\mathbf{r} + \mathbf{d}) + V_R(\mathbf{r} - \mathbf{d}) + V_C(\mathbf{r}). \quad (3.6)$$

V_C は摂動論を使って取り扱う．

量子ドット L と R において， $\pm k_z$ の谷の最低準位のみを考える．このため，以下では軌道量子数 n を省略する．また $\pm k_z$ の谷まわりの有効質量方程式は同じ形をしているために，得られる包絡関数も同じであるので，包絡関数につけた谷のインデックスを省略する．すると，波動関数はそれぞれ

$$\begin{aligned} \psi_{L,\pm k_z}(\mathbf{r}) &= F_L(\mathbf{r} + \mathbf{d}) e^{\pm i\mathbf{k}_z \cdot (\mathbf{r} + \mathbf{d})} u_{\pm k_z}(\mathbf{r} + \mathbf{d}), \\ \psi_{R,\pm k_z}(\mathbf{r}) &= F_R(\mathbf{r} - \mathbf{d}) e^{\pm i\mathbf{k}_z \cdot (\mathbf{r} - \mathbf{d})} u_{\pm k_z}(\mathbf{r} - \mathbf{d}), \end{aligned} \quad (3.7)$$

と表される．ここで F_L は量子ドット L， F_R は量子ドット R の包絡関数である．エネルギー準位はゲート電極 L と R を用いて $\varepsilon_L = \varepsilon_R \equiv \varepsilon_0$ と揃えておく．量子ドット内の谷間結合

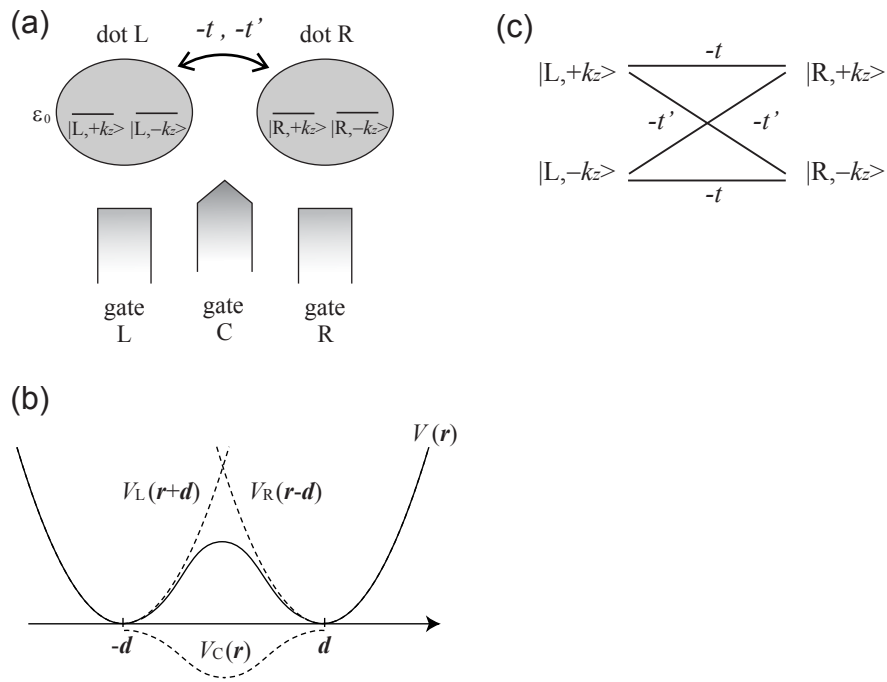


図 3.2: (a) 伝導バンドに等価な 2 つの谷を持つ Si からなる二重量子ドット系 . 量子ドット L の最低準位 $|L, \pm k_z\rangle$ はゲート電極 L と R を使って , 量子ドット R の最低準位 $|R, \pm k_z\rangle$ に揃えられている . 量子ドット間のトンネル結合 (t, t') は中央のゲート電極 C によって調節できる . (b) 二重量子ドットに対するポテンシャルの形状; $V(r) = V_L(r+d) + V_R(r-d) + V_C(r)$. $V_L(r+d)$ と $V_R(r-d)$ は量子ドット L と R の閉じ込めポテンシャル . 量子ドット L の中心は $-d$, 量子ドット R の中心は $+d$, 中央領域のポテンシャル $V_C(r)$ は摂動で扱う . (c) トンネル結合は $|L, \pm k_z\rangle$ と $|R, \pm k_z\rangle$ (同じ谷) の間の t と , $|L, \pm k_z\rangle$ と $|R, \mp k_z\rangle$ (異なる谷) の間の t' の 2 種類がある .

がない時，一電子準位は V_C を考えなければ 4 重縮退している．量子ドットの非摂動ハミルトニアンは

$$H_{\text{dots}} = \varepsilon_0 \sum_{j=L,R} \sum_{\alpha=\pm k_z} \sum_{\sigma=\uparrow,\downarrow} n_{j,\alpha,\sigma}. \quad (3.8)$$

ここで $d_{j,\alpha,\sigma}^\dagger$ と $d_{j,\alpha,\sigma}$ を状態 $|j, \alpha, \sigma\rangle$ に対する生成および消滅演算子として， $n_{j,\alpha,\sigma} = d_{j,\alpha,\sigma}^\dagger d_{j,\alpha,\sigma}$ は数演算子である．

量子ドット内および量子ドット間での電子間相互作用として，クーロン相互作用は考慮するが，交換相互作用は無視する.¹ 同じ量子ドット内にある電子間のクーロン相互作用， U_L あるいは U_R は，式 (2.7) で F を F_L あるいは F_R に置き換えたものになるが，2つの電子が同じ谷にある場合でも，異なる谷にある場合でも，等しいことを指摘しておく．同様に，異なる量子ドットにある電子間の同じ谷間のクーロン相互作用は，異なる谷間のそれに等しく，

$$U_1 = \int \int d\mathbf{r}_1 d\mathbf{r}_2 |F_L(\mathbf{r}_1 + \mathbf{d})|^2 \frac{e^2}{4\pi\varepsilon |\mathbf{r}_1 - \mathbf{r}_2|} |F_R(\mathbf{r}_2 - \mathbf{d})|^2, \quad (3.9)$$

となる．そこで電子間相互作用のハミルトニアンは

$$\begin{aligned} H_{\text{Coulomb}} = & \sum_{\alpha_1, \alpha_2=\pm k_z} \sum'_{\sigma_1, \sigma_2=\uparrow, \downarrow} [U_L n_{L, \alpha_1, \sigma_1} n_{L, \alpha_2, \sigma_2} + U_R n_{R, \alpha_1, \sigma_1} n_{R, \alpha_2, \sigma_2}] \\ & + U_1 \sum_{\alpha_1, \alpha_2=\pm k_z} \sum_{\sigma_1, \sigma_2=\uparrow, \downarrow} n_{L, \alpha_1, \sigma_1} n_{R, \alpha_2, \sigma_2}, \end{aligned} \quad (3.10)$$

となる．ここで和 \sum' は $(\alpha_1, \sigma_1) = (\alpha_2, \sigma_2)$ を除く全ての (α_1, σ_1) と (α_2, σ_2) の組み合わせについてとる．以下では $U_L = U_R \equiv U_0$ と仮定する． $U_L \neq U_R$ の計算への拡張は，同様にして行うことができる．

2つの量子ドット間のトンネル結合には，図 3.2(c) に示したように，同じ谷である $|L, \pm k_z\rangle$ と $|R, \pm k_z\rangle$ 間，異なる谷である $|L, \pm k_z\rangle$ と $|R, \mp k_z\rangle$ 間の 2 種類があり，それらはそれぞれ次のように表される．

$$\begin{aligned} -t &= \langle L, \pm k_z | V_C | R, \pm k_z \rangle \\ &= e^{\mp 2i\mathbf{k}_z \cdot \mathbf{d}} \int d\mathbf{r} F_L^*(\mathbf{r} + \mathbf{d}) V_C(\mathbf{r}) F_R(\mathbf{r} - \mathbf{d}) u_{\pm k_z}^*(\mathbf{r} + \mathbf{d}) u_{\pm k_z}(\mathbf{r} - \mathbf{d}), \\ -t' &= \langle L, \pm k_z | V_C | R, \mp k_z \rangle \\ &= \int d\mathbf{r} e^{\mp 2i\mathbf{k}_z \cdot \mathbf{r}} F_L^*(\mathbf{r} + \mathbf{d}) V_C(\mathbf{r}) F_R(\mathbf{r} - \mathbf{d}) u_{\pm k_z}^*(\mathbf{r} + \mathbf{d}) u_{\mp k_z}(\mathbf{r} - \mathbf{d}). \end{aligned} \quad (3.11)$$

ここで t と t' は $|j, \pm k_z\rangle$ の位相を適当に選ぶことにより正の実数とする (付録 C 参照)．トンネルハミルトニアンは

$$H_T = -t \sum_{\alpha=\pm k_z} \sum_{\sigma=\uparrow, \downarrow} d_{L, \alpha, \sigma}^\dagger d_{R, \alpha, \sigma} + \text{h.c.}$$

¹量子ドット内の交換相互作用は 2.3.1 項の異なる谷間の交換相互作用になるので，無視できる．量子ドット間の交換相互作用はドット間距離 $2|d|$ が小さくない時，とても小さい．

$$-t' \sum_{\alpha=\pm k_z} \sum_{\sigma=\uparrow,\downarrow} d_{L,\bar{\alpha},\sigma}^\dagger d_{R,\alpha,\sigma} + \text{h.c.}, \quad (3.12)$$

となる．ここで $\alpha = \pm k_z$ に対し $\bar{\alpha} = \mp k_z$ である．トンネルバリア $V_C(\mathbf{r})$ が十分滑らかで，その $k \sim \mp 2k_z$ のフーリエ成分が無視できる時，トンネル結合 t' は式 (3.11) の速い振動因子を積分するために無視出来るほど小さくなる．

t' が無視出来ない時，量子ドット内での谷間結合

$$\begin{aligned} -v_L &= \langle L, +k_z | V_C + V_{\text{imp}} | L, -k_z \rangle, \\ -v_R &= \langle R, +k_z | V_C + V_{\text{imp}} | R, -k_z \rangle, \end{aligned} \quad (3.13)$$

も同時に考慮せねばならない．ここで，不純物ポテンシャルのような V_C 以外の他の谷間結合の要素を V_{imp} とした．この時，ハミルトニアン，式 (3.8) は，

$$\begin{aligned} H_{\text{dots}} &= \varepsilon_0 \sum_{j=L,R} \sum_{\alpha=\pm k_z} \sum_{\sigma=\uparrow,\downarrow} n_{j,\alpha,\sigma} \\ &\quad - \sum_{\sigma=\uparrow,\downarrow} [v_L d_{L,+k_z,\sigma}^\dagger d_{L,-k_z,\sigma} + v_R d_{R,+k_z,\sigma}^\dagger d_{R,-k_z,\sigma} + \text{h.c.}], \end{aligned} \quad (3.14)$$

と一般化される．ここで v_L と v_R は，一般に複素数となる.² これらの位相は，不純物の位置など，系の原子サイズでの構造に依存するので，実験的に制御するのは難しいことを指摘しておく．

我々のモデルでの全ハミルトニアンは

$$H_{\text{total}} = H_{\text{dots}} + H_{\text{Coulomb}} + H_{\text{T}}. \quad (3.15)$$

次の節では，局在スピン間の交換結合を評価する為に，2 電子が量子ドットにいる状態に対し，全ハミルトニアンを厳密に対角化して，基底および励起状態を求める．

3.3 計算結果

3.3.1 異なる谷間のトンネル結合がない場合

まず始めに，異なる谷間のトンネル結合も量子ドット内での谷間結合もない状況，すなわち $t' = v_L = v_R = 0$ の場合を考える．これは量子ドットの閉じ込めポテンシャルやトンネルバリアが十分に滑らかな場合である．

2 電子状態を調べる前に， $H_{\text{dots}} + H_{\text{T}}$ の固有状態である，二重量子ドット中の一電子準位を見る．図 3.3 に示したように，トンネル結合 H_{T} は H_{dots} の 4 つの縮退した準位 ($|L, \pm k_z\rangle$ と $|R, \pm k_z\rangle$) を 2 つのグループに分裂させる．下の準位はエネルギー $\varepsilon_0 - t$ で 2 重縮退し

² t, t' が正の実数となるように $|L/R, \pm k_z\rangle$ の位相を選んだために，一般に v_L, v_R は実数とはならない．

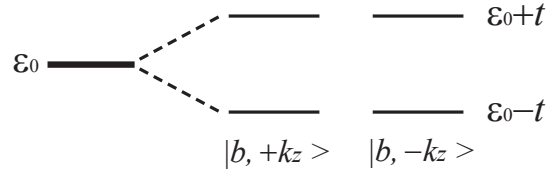


図 3.3: 異なる谷間のトンネル結合および量子ドット内での谷間結合がない場合 ($t' = 0$, $v_L = v_R = 0$) の, Si 二重量子ドットにおける一電子準位. 同じ谷間のトンネル結合 t は 4 つの縮退した準位, $|L, \pm k_z\rangle$, $|R, \pm k_z\rangle$ をエネルギー $\varepsilon_0 \pm t$ の 2 つのグループに分裂させる.

ていて, $|L, \pm k_z\rangle$ と $|R, \pm k_z\rangle$ との結合軌道に対応する.

$$|b, +k_z\rangle = \frac{1}{\sqrt{2}} [|L, +k_z\rangle + |R, +k_z\rangle],$$

$$|b, -k_z\rangle = \frac{1}{\sqrt{2}} [|L, -k_z\rangle + |R, -k_z\rangle].$$

一方, 上の準位はエネルギー $\varepsilon_0 + t$ で 2 重縮退していて, 反結合軌道に対応する.

$$|a, +k_z\rangle = \frac{1}{\sqrt{2}} [|L, +k_z\rangle - |R, +k_z\rangle],$$

$$|a, -k_z\rangle = \frac{1}{\sqrt{2}} [|L, -k_z\rangle - |R, -k_z\rangle].$$

これは異なる谷間の結合がないために, 異なる谷の状態が互いに混じり合わないからである.

次に二重量子ドットにおける 2 電子状態について考える. ハミルトニアン, 式 (3.15) の H_T で $t' = 0$ としたものの対角化により, 基底状態は 6 重縮退であることが分かった. 3 状態はスピン 1 重項 ($S_{\text{tot}} = 0$) で,

$$|g1\rangle = |L, +k_z, \uparrow; L, +k_z, \downarrow\rangle + |R, +k_z, \uparrow; R, +k_z, \downarrow\rangle$$

$$+ \frac{1}{4} \left(\bar{U} + \sqrt{\bar{U}^2 + 16} \right) [|L, +k_z, \uparrow; R, +k_z, \downarrow\rangle - |L, +k_z, \downarrow; R, +k_z, \uparrow\rangle],$$

$$|g2\rangle = |L, -k_z, \uparrow; L, -k_z, \downarrow\rangle + |R, -k_z, \uparrow; R, -k_z, \downarrow\rangle$$

$$+ \frac{1}{4} \left(\bar{U} + \sqrt{\bar{U}^2 + 16} \right) [|L, -k_z, \uparrow; R, -k_z, \downarrow\rangle - |L, -k_z, \downarrow; R, -k_z, \uparrow\rangle],$$

$$|g3\rangle = |L, +k_z, \uparrow; L, -k_z, \downarrow\rangle - |L, +k_z, \downarrow; L, -k_z, \uparrow\rangle$$

$$+ |R, +k_z, \uparrow; R, -k_z, \downarrow\rangle - |R, +k_z, \downarrow; R, -k_z, \uparrow\rangle$$

$$+ \frac{1}{4} \left(\bar{U} + \sqrt{\bar{U}^2 + 16} \right) [|L, +k_z, \uparrow; R, -k_z, \downarrow\rangle - |L, +k_z, \downarrow; R, -k_z, \uparrow\rangle$$

$$+ |L, -k_z, \uparrow; R, +k_z, \downarrow\rangle - |L, -k_z, \downarrow; R, +k_z, \uparrow\rangle].$$

ここで $\bar{U} = (U_0 - U_1)/t$ である . 他の3状態はスピン3重項 ($S_{\text{tot}} = 1; S_{\text{tot},z} = 1, 0, -1$) で ,

$$\begin{aligned}
|g4\rangle &= |L, +k_z, \uparrow; L, -k_z, \uparrow\rangle + |R, +k_z, \uparrow; R, -k_z, \uparrow\rangle \\
&\quad + \frac{1}{4} \left(\bar{U} + \sqrt{\bar{U}^2 + 16} \right) [|L, +k_z, \uparrow; R, -k_z, \uparrow\rangle + |L, -k_z, \uparrow; R, +k_z, \uparrow\rangle], \\
|g5\rangle &= |L, +k_z, \uparrow; L, -k_z, \downarrow\rangle + |L, +k_z, \downarrow; L, -k_z, \uparrow\rangle \\
&\quad + |R, +k_z, \uparrow; R, -k_z, \downarrow\rangle + |R, +k_z, \downarrow; R, -k_z, \uparrow\rangle \\
&\quad + \frac{1}{4} \left(\bar{U} + \sqrt{\bar{U}^2 + 16} \right) [|L, +k_z, \uparrow; R, -k_z, \downarrow\rangle + |L, +k_z, \downarrow; R, -k_z, \uparrow\rangle \\
&\quad\quad + |R, +k_z, \uparrow; L, -k_z, \downarrow\rangle + |R, +k_z, \downarrow; L, -k_z, \uparrow\rangle], \\
|g6\rangle &= |L, +k_z, \downarrow; L, -k_z, \downarrow\rangle + |R, +k_z, \downarrow; R, -k_z, \downarrow\rangle \\
&\quad + \frac{1}{4} \left(\bar{U} + \sqrt{\bar{U}^2 + 16} \right) [|L, +k_z, \downarrow; R, -k_z, \downarrow\rangle + |L, -k_z, \downarrow; R, +k_z, \downarrow\rangle].
\end{aligned}$$

エネルギーは共に

$$E_{\text{ground}} = 2\varepsilon_0 + \frac{1}{2} \left[(U_0 + U_1) - \sqrt{16t^2 + (U_0 - U_1)^2} \right]. \quad (3.16)$$

これより , 異なる谷間の結合がない Si 二重量子ドットでは交換結合がないと結論できる .

$$J = E_{S_{\text{tot}}=1} - E_{S_{\text{tot}}=0} = 0. \quad (3.17)$$

これは (i) 2つの等価な谷を反映して , 一電子準位が2重縮退しており , (ii) それらは2つの電子によってスピンを平行または反平行にして占有され , (iii) 同じ谷間のクーロン相互作用が異なる谷間のそれと等しい上 , 異なる谷間の交換相互作用が実質的にはたらない , ことによる .

3.3.2 異なる谷間のトンネル結合がある場合

次に異なる谷間でのトンネル結合 t' の影響を調べる . この項では量子ドット中の谷間結合は無視する . つまり $v_L = v_R = 0$ とする . 異なる谷間のトンネル結合 t' は状態 $|L, \pm k_z\rangle$ と $|R, \mp k_z\rangle$ とを混ぜ , 4重縮退した一電子準位は t と t' によって4つに分裂する . 例えば最低準位に対応する軌道は

$$|\varphi_0\rangle = \frac{1}{2} [|L, +k_z\rangle + |L, -k_z\rangle + |R, +k_z\rangle + |R, -k_z\rangle], \quad (3.18)$$

で , エネルギーは $\varepsilon_0 - (t + t')$ である .

二重量子ドット中に電子が2つある場合，基底状態はスピン1重項で，

$$\begin{aligned}
|g\rangle = & |L, +k_z, \uparrow; L, +k_z, \downarrow\rangle + |R, +k_z, \uparrow; R, +k_z, \downarrow\rangle \\
& + |L, -k_z, \uparrow; L, -k_z, \downarrow\rangle + |R, -k_z, \uparrow; R, -k_z, \downarrow\rangle \\
& + |L, +k_z, \uparrow; L, -k_z, \downarrow\rangle - |L, +k_z, \downarrow; L, -k_z, \uparrow\rangle \\
& + |R, +k_z, \uparrow; R, -k_z, \downarrow\rangle - |R, +k_z, \downarrow; R, -k_z, \uparrow\rangle \\
& + \frac{1}{4} \left(\bar{U} + \sqrt{\bar{U}^2 + 16} \right) [|L, +k_z, \uparrow; R, +k_z, \downarrow\rangle - |L, +k_z, \downarrow; R, +k_z, \uparrow\rangle \\
& \quad + |L, -k_z, \uparrow; R, -k_z, \downarrow\rangle - |L, -k_z, \downarrow; R, -k_z, \uparrow\rangle \\
& \quad + |L, +k_z, \uparrow; R, -k_z, \downarrow\rangle - |L, +k_z, \downarrow; R, -k_z, \uparrow\rangle \\
& \quad + |L, -k_z, \uparrow; R, +k_z, \downarrow\rangle - |L, -k_z, \downarrow; R, +k_z, \uparrow\rangle].
\end{aligned}$$

ここで $\bar{U} = (U_0 - U_1)/(t + t')$ である．基底エネルギーは

$$E_{\text{ground}} = 2\varepsilon_0 + \frac{1}{2} \left[(U_0 + U_1) - \sqrt{16(t + t')^2 + (U_0 - U_1)^2} \right],$$

である．第一励起状態はスピン3重項で，エネルギーは

$$E_{\text{excited}} = 2\varepsilon_0 + \frac{1}{2} \left[(U_0 + U_1) + \sqrt{16t^2 + (U_0 - U_1)^2} \right],$$

である．従って交換結合の大きさは

$$\begin{aligned}
J &= E_{\text{excited}} - E_{\text{ground}} \\
&= \frac{1}{2} \left[\sqrt{16(t + t')^2 + (U_0 - U_1)^2} - \sqrt{16t^2 + (U_0 - U_1)^2} \right],
\end{aligned}$$

となる．特に $t, t' \ll U_0 - U_1$ の時は

$$J \approx 4t'(2t + t')/(U_0 - U_1), \quad (3.19)$$

となる．図3.4に，異なる谷間のトンネル結合 t' に対する J の振る舞いを示した．谷が一つしかない場合の交換結合， $J^{(1\text{-valley})} = 4t^2/(U_0 - U_1)$ と比較すると，式(3.19)の交換結合の方が $t' > (\sqrt{2} - 1)t$ の時に大きい． $t' = t$ の場合には約3倍になる．異なる谷間の強いトンネル結合があると，その寄与は交換結合を大きくする．

3.3.3 異なる谷間のトンネル結合と量子ドット内での谷間結合の両方がある場合

最後に，異なる谷間のトンネル結合があり ($t' \neq 0$)，量子ドット内での谷間結合もある ($v_L, v_R \neq 0$) 場合を扱う．前にも述べたように，一般的に v_L と v_R は複素数である．ここでは，位相の自由度は残しておくが，その絶対値は $|v_L| = |v_R| \equiv v$ であると仮定する．

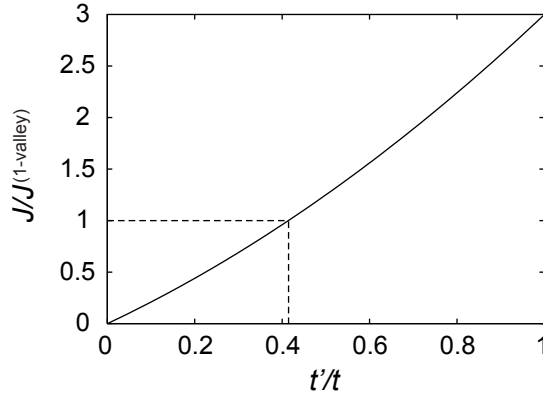


図 3.4: Si 二重量子ドットにおける，異なる谷間のトンネル結合 t' に対する交換結合 J の振る舞い．量子ドット内の谷間結合はなく ($v_L = v_R = 0$)， $t, t' \ll U_0 - U_1$ の場合． J は谷が一つしかない場合の交換結合 $J^{(1\text{-valley})} = 4t^2/(U_0 - U_1)$ で， t' は同じ谷間のトンネル結合 t で，無次元化されている．

一電子準位の様子は，定性的に前の項の $t' \neq 0$ で $v_L, v_R = 0$ の場合と同じで，4つの縮退していない準位に分裂する．軌道は， $|L, +k_z\rangle, |L, -k_z\rangle, |R, +k_z\rangle, |R, -k_z\rangle$ の線形結合で表される．これらの一般的な表式は v_L, v_R の位相を含む大変複雑な式になるのでここで述べることは出来ないが，簡単になる場合について例を挙げておくと， $v_L = v, v_R = -v$ の時，4つの準位のエネルギーは

$$\varepsilon_0 - \sqrt{(t+t')^2 + v^2}, \quad \varepsilon_0 - \sqrt{(t-t')^2 + v^2}, \quad \varepsilon_0 + \sqrt{(t-t')^2 + v^2}, \quad \varepsilon_0 + \sqrt{(t+t')^2 + v^2},$$

であり，対応する軌道はそれぞれ，

$$\begin{aligned} |L, +k_z\rangle + |L, -k_z\rangle &+ \frac{-v + \sqrt{(t+t')^2 + v^2}}{t+t'} |R, +k_z\rangle + \frac{-v + \sqrt{(t+t')^2 + v^2}}{t+t'} |R, -k_z\rangle, \\ |L, +k_z\rangle - |L, -k_z\rangle &+ \frac{v + \sqrt{(t-t')^2 + v^2}}{t-t'} |R, +k_z\rangle - \frac{v + \sqrt{(t-t')^2 + v^2}}{t-t'} |R, -k_z\rangle, \\ |L, +k_z\rangle - |L, -k_z\rangle &- \frac{-v + \sqrt{(t-t')^2 + v^2}}{t-t'} |R, +k_z\rangle + \frac{-v + \sqrt{(t-t')^2 + v^2}}{t-t'} |R, -k_z\rangle, \\ |L, +k_z\rangle + |L, -k_z\rangle &- \frac{v + \sqrt{(t+t')^2 + v^2}}{t+t'} |R, +k_z\rangle - \frac{v + \sqrt{(t+t')^2 + v^2}}{t+t'} |R, -k_z\rangle, \end{aligned}$$

である (規格化因子は省略) ．

2電子状態に対し，基底状態はスピン1重項で，励起状態はスピン3重項である．よってこの場合の二重量子ドットでは，反強磁性交換結合が存在する．図 3.5 に，(a) $t' = 0$ ，(b) $t' = 0.5t$ ，(c) $t' = t$ の場合について， v の関数としての $J = E_{\text{excited}} - E_{\text{ground}}$ の計算値を示した．クーロン相互作用に関しては， $(U_0 - U_1)/t = 10$ とした．交換結合 J は v_L, v_R

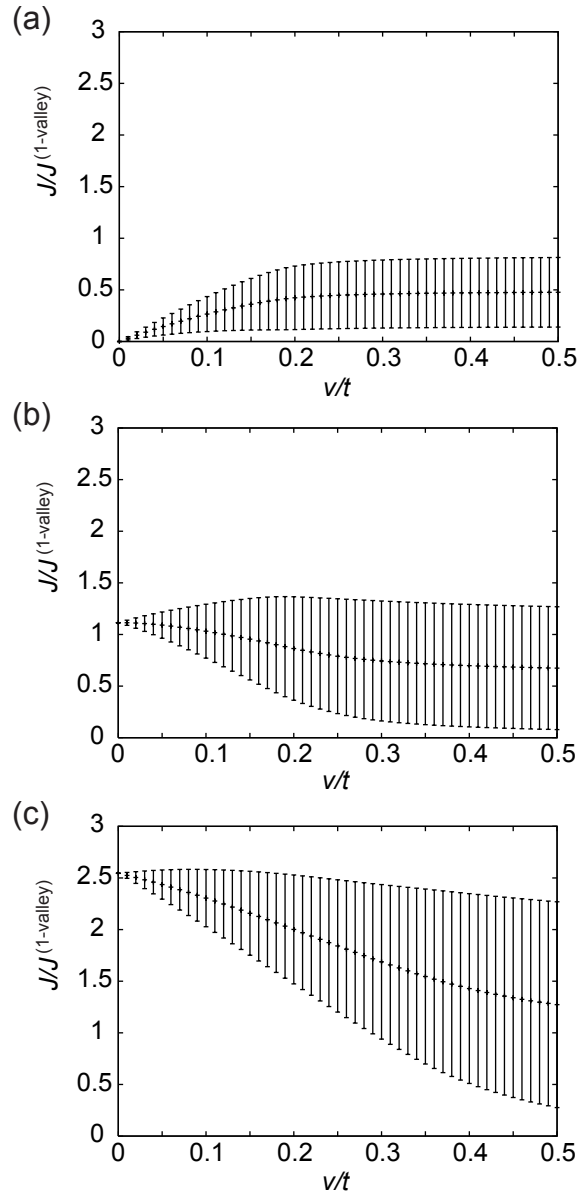


図 3.5: 谷間トンネル結合 t' と量子ドット内の谷間結合 v_L, v_R がある場合の Si 量子ドットにおける, 谷間トンネル結合 t' の関数としての交換結合 J の大きさ. v_L と v_R の位相は $[0, 2\pi]$ で平均を取るが, $|v_L| = |v_R| = v$ とする. $J/J^{(1\text{-valley})}$ を v/t の関数として示した. ここで $J^{(1\text{-valley})} = 4t^2/(U_0 - U_1)$, t は同じ谷間でのトンネル結合, $U_0(U_1)$ は同じ(異なる)量子ドットにある電子間のクーロン相互作用の大きさ. ここでは $(U_0 - U_1)/t = 10$ とした. 異なる谷間のトンネル結合は (a) $t' = 0$, (b) $t' = 0.5t$, (c) $t' = t$. J の標準偏差はエラーバーで示されている.

の位相に依存する．この両方の位相に対して $[0, 2\pi]$ で平均と分散を調べた.³ 標準偏差はエラーバーで示している．概して， J は v の減少に伴い増加し， $v \sim t$ で一定に飽和する． J は v_L と v_R の位相によって大きく変化する．

3.4 交換結合の大きさの評価

前節ではモデル化した Si 二重量子ドットの電子状態を調べて，実効ハミルトニアン，式 (3.1)，における交換結合 J を求めた．この節では実際の量子ドット系を想定して具体的なパラメータを代入し， J の値を見積る．

実験で作製される Si 量子ドットのサイズは 10 nm 程度である [13, 14, 15, 16, 17, 18, 19]．しかしながら，図 3.2(a) にあるような，量子ドット内のエネルギー準位やトンネル結合が調節可能な 3 つの電極を持つ二重量子ドットを作製しようとするれば，そのサイズはずっと大きくなければならない．ここでは量子ドットのサイズが 10 nm から 100 nm までのいくつかの場合を考える．

式 (2.3) において，量子ドットの閉じ込めポテンシャルとして，2 章で用いた等方的な 3 次元調和型ポテンシャル， $V(\mathbf{r}) = K(x^2 + y^2 + z^2)/2$ ，を用いる．最低エネルギー準位の包絡関数は式 (2.5) にあるように，

$$F(\mathbf{r}) = \left(\frac{1}{\pi\hbar}\right)^{\frac{3}{4}} (m_i^* K)^{\frac{1}{8}} \exp\left[-\frac{1}{2\hbar} \left(\sqrt{m_i^* K} x^2 + \sqrt{m_i^* K} y^2 + \sqrt{m_i^* K} z^2\right)\right],$$

となる．量子ドットのサイズも 2 章と同様に， $l = 2(\hbar^2/m_i^* K)^{1/4}$ と $m_i^* = 0.19m_0$ を用いて定義する．

以下では異なる谷間のトンネル結合は $t' = t/2$ とする．量子ドット内での谷間結合がない場合 ($v_L = v_R = 0$)，交換結合 J は式 (3.19) で与えられる． $l = 10$ nm で量子ドット間の距離が $2|d| = 10$ nm である時，同じ量子ドット内の電子間のクーロン相互作用は $U_0 = 22$ meV で，異なる量子ドットにある電子間のクーロン相互作用は $U_1 = 12$ meV である．もしトンネル結合が $t = 1$ meV と $t' = 0.5$ meV であるとする，交換結合は $J = 0.47$ meV と見積られる．また $t = 0.5$ meV と $t' = 0.25$ meV であるとする， $J = 0.13$ meV と見積られる． $l = 100$ nm では $2|d| = 100$ nm, $U_0 = 2.2$ meV で $U_1 = 1.2$ meV である.⁴ もし $t = 0.1$ meV で $t' = 0.05$ meV ならば，交換結合は $J = 0.047$ meV となる．また $t = 0.05$ meV と $t' = 0.025$ meV ならば，交換結合は $J = 0.013$ meV となる． $l = 100$ nm の場合でも，交換結合は低温での熱エネルギー $k_B T$ よりも大きくなる．Si 量子ドットは，1.2 節で述べたように同じサイズの GaAs 量子ドットと比べてデコヒーレンス時間がずっと長いので，量子情報処理への応用により適している．

³ $M_L, M_R = 0 \sim 99$ の整数として $(\theta_L, \theta_R) = 0.02\pi (M_L, M_R)$ で与えられる全ての (θ_L, θ_R) の組み合わせを用いて， $v_L = ve^{i\theta_L}$ ， $v_R = ve^{i\theta_R}$ として J を計算し，平均と分散を調べた．

⁴ $l = 100$ nm の時，準位間隔は $\varepsilon_1 - \varepsilon_0 = 0.16$ meV で，クーロン積分 $U_0 = 2.2$ meV あるいは $U_1 = 1.2$ meV よりずっと小さい．我々の計算では最低準位のみを考えたので，我々の J の見積もりは妥当ではないかも知れない．しかしながら，上の準位の寄与は準位間隔が量子ドット間のトンネル結合 t, t' や谷間結合 v よりも小さければ，大きくはない．

表 3.1: いろいろなサイズの Si 二重量子ドットにおける, 交換結合 J と, 同じ量子ドット内および異なる量子ドットにある電子間のクーロン相互作用 U_0 と U_1 . ドット間距離は $2|d| = l$. 同じ谷間のトンネル結合は $t = (U_0 - U_1)/10$ に対し, 異なる谷間のトンネル結合は $t' = t/2$. 量子ドット内での谷間結合はない ($v_L = v_R = 0$).

l	U_0	U_1	t	t'	J
(nm)	(meV)	(meV)	(meV)	(meV)	(meV)
10	21.80	12.34	0.946	0.473	0.422
20	10.9	6.17	0.473	0.236	0.211
50	4.36	2.47	0.189	0.095	0.084
100	2.18	1.23	0.095	0.047	0.042

表 3.1 にいくつかのサイズの二重量子ドットでのクーロン相互作用 U_0 および U_1 と, 交換結合 J [式 (3.19)] の計算結果を挙げた. ドット間の距離は $2|d| = l$ である. トンネル結合は $(U_0 - U_1)/t = 10$ および $t' = t/2$ を満たすように選んだ.

量子ドット中の谷間結合 ($v_L, v_R \neq 0$) は交換結合 J を変化させる. 図 3.5(b) に見られるように, $t' = t/2$ の時, 平均値は v_L および v_R がない場合とほとんど同じである. しかしながら, 値は v_L と v_R の位相によって大きく影響を受ける. この位相は系の原子サイズでの微細構造によって決まるため, 実験的に制御するのが難しい. したがって Si 量子ドットにおいて, 交換結合 J を完全に制御することは困難で, そのことは量子計算機への応用において深刻な問題になる可能性がある.

3.5 結論

多谷構造を持つ人工分子である, Si 二重量子ドットにおける電子状態を調べた. 有効質量近似の範囲内で, Si の伝導バンドの多谷構造と有効質量の異方性を取り入れた.

多谷構造の効果を考慮したモデルを用いて, Si 二重量子ドットにおける局在電子スピン間での交換結合 J を評価した. 交換結合は, 異なる谷間のトンネル結合も量子ドット内の谷間結合もない時にははたらかないことが分かった. 異なる谷間のトンネル結合がある場合について, 量子ドットのいくつかのサイズとトンネル結合の強さに対する J の大きさを見積った.

Si 量子ドットでの電子スピンのデコヒーレンス時間は GaAs 量子ドットの場合よりもずっと長い. これは量子情報処理デバイスへの応用において有利である. 一方, 交換結合の正確な値は異なる谷間のトンネル結合と量子ドット中の谷間結合に依存し, これらは系の原子サイズでの微細構造によって決まるので制御が難しいことが不利な点である.

第4章 原子スケールから見たシリコン量子ドットにおける電子状態

4.1 序

我々は2章で、有効質量近似から得られる一電子準位をもとに、Si量子ドットの電子・スピン状態の計算を行った。その際に、量子ドットの閉じ込めポテンシャルは格子定数 a 程度の範囲で緩やかに変化すると仮定を行った。これは、言い換えれば、原子間隔サイズの構造を考慮しないということである。しかし、今日作製されている数 nm 程度の非常に小さいサイズの量子ドット [16] や、閉じ込めポテンシャルに急峻な端を持つ量子ドットでは、このような取り扱いが妥当であるかどうかは明らかではない。

我々は2章で、Siワイヤーを熱酸化して作製される量子ドットに見られる、歪みの影響による谷の分裂を考慮した。しかしこの時、依然として $\pm k_z$ のような、 k 空間の同じ方向の谷の2重縮退は残る。この谷の縮退に対応する、縮退した一電子準位があるために、2.3節で論じたようなSiに特徴的な電子・スピン状態が現れる。しかし、先ほど述べた原子サイズの構造の影響で谷間結合が起き、この同じ方向の谷の2重縮退が分裂を起こすと、2.5節で示したように状況は変わる。

そこでこの章では、tight-bindingモデルを用いて、一電子準位を原子サイズの構造を考慮して取り扱う。その際に、同じ方向の谷 ($\pm k_z$) の一電子準位間での結合の大きさを調べるため、その方向への閉じ込めのみを考える。伝導バンドの底の一電子準位とそのすぐ上の準位の間隔を見ることで、有効質量近似で得られる縮退した一電子準位が存在するかどうかを調べる。なおこの章でも $\pm k_z$ の谷は、他の谷 $\pm k_x$ と $\pm k_y$ より十分低いと考え、他の谷の一電子準位については議論しない。また、有効質量近似での $\pm k_z$ の谷の一電子準位の波動関数は、式 (2.2) にあるように、谷での Bloch 関数と包絡関数 $F_{\pm k_z}$ との積で表される。この描像が良いかどうかを、電子の存在確率を調べることにより検討する。位置 \mathbf{r} における存在確率は、式 (2.2) より、

$$|\psi_{\pm k_z}(\mathbf{r})|^2 = |F_{\pm k_z}(\mathbf{r})|^2 |u_{\pm k_z}(\mathbf{r})|^2, \quad (4.1)$$

と表されるが、ここで $|u_{\pm k_z}(\mathbf{r})|^2$ は格子間隔程度で振動するのに対し、 $|F_{\pm k_z}(\mathbf{r})|^2$ は緩やかに変化し、概形を表す。tight-bindingを用いた計算を行い、有効質量近似を用いた計算と結果を比較する。以上の2点から、有効質量近似が成立する条件について議論する。

この章の構成は以下の通りである。まず次の節で、用いた計算方法と、作製方法の異な

る2種類の量子ドット系を想定した2つのモデルについて説明する．4.3節では2つのモデルに対するそれぞれの計算結果を示し，次の2点，

- 一電子準位に対する電子の存在確率の概形
- 一電子準位間隔

について，有効質量近似の結果との比較，議論を行う．最後の節でまとめと考察を行う．

4.2 モデルと計算方法

4.2.1 tight-binding モデル

まず始めに，tight-binding モデルについて説明する．今回我々が用いたのは経験的 $spds^*$ tight-binding モデル [38] である．固体中の電子の波動関数を原子軌道関数の線形結合で表現する方法は，LCAO (linear combination of atomic orbitals) 法，あるいは tight-binding モデルと呼ばれる [44]．この時，用いる原子軌道の種類として， s 軌道と3種類の p 軌道を用いる sp^3 tight-binding モデル [45] が良く知られているが， $spds^*$ tight-binding モデルでは，これらに加えて5種類の d 軌道と s^* 軌道を加えた計10種類の軌道を用いる．これらの方法では，エネルギー固有値およびそれに対する固有状態の各原子軌道関数の係数を決める問題は，各原子軌道関数を基底に用いたハミルトニアン行列の固有値・固有ベクトル問題となる．この時，行列要素を現実の原子軌道関数から計算するのではなく，パラメータと見なし，第一原理計算などの結果から得られるバルクのバンド構造が良く再現出来るように決めていることが「経験的」と呼ばれている理由である．また，初期の単純な tight-binding モデルでは，価電子バンドに比べて伝導バンドの再現性が悪いことが知られていたが [46]，今回用いた $spds^*$ tight-binding モデルは，価電子バンドだけでなく，バルクの Si の伝導バンドの構造を良く再現するようにこれらのパラメータが決められている (詳細は付録 D 参照)．我々は，伝導に寄与する，伝導バンドの底付近の電子状態を問題にしているので，このモデルを選んだ．

この tight-binding モデルでは，一電子状態の波動関数は各原子の10種類の原子軌道関数の線形結合で表される．

$$\psi(\mathbf{r}) = \sum_{i,\alpha} C_i^\alpha \phi_\alpha(\mathbf{r} - \mathbf{R}_i). \quad (4.2)$$

ここで $\phi_\alpha(\mathbf{r})$ は10種類の原子軌道 ($\alpha = s, p, d, s^*$)¹ で， \mathbf{R}_i は原子 i の位置である．

4.2.2 閉じ込めのモデル

閉じ込めのモデルとして，2つの場合を考える．1つはゲート電極による閉じ込めを想定した，制御可能なポテンシャルのモデルである．図 4.1 に示したように，結晶の [100]，

¹具体的には $s, p_x, p_y, p_z, d_{xy}, d_{yz}, d_{zx}, d_{x^2-y^2}, d_{3z^2-r^2}, s^*$ の10種類

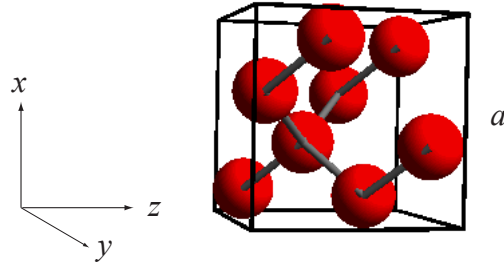


図 4.1: 単位構造と座標軸．ここで a は格子定数， 0.543 nm ．単位構造は Si 原子を 8 個含む立方体．結晶の $[100]$, $[010]$, $[001]$ 方向にそれぞれ x , y , z 軸を取る．

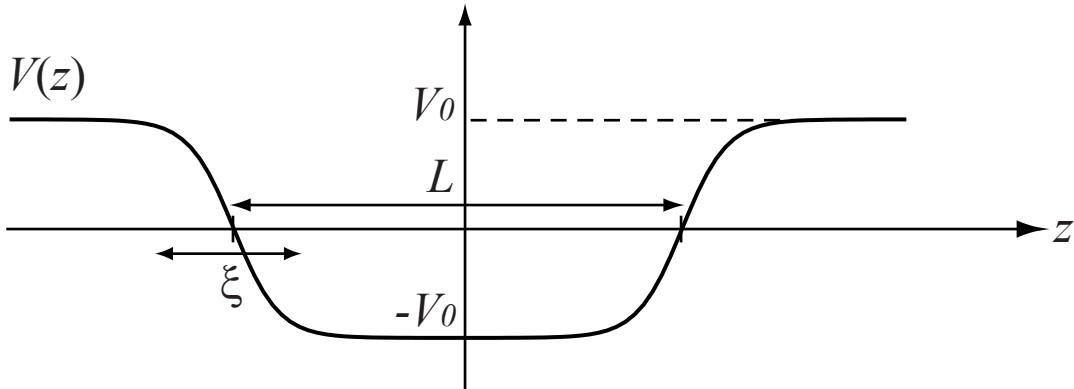


図 4.2: 制御可能なポテンシャル． $V(z)$ は z 方向の閉じ込めポテンシャルで， $V(z) = V_0 \{ \tanh [(z - L/2)/\xi] - \tanh [(z + L/2)/\xi] + 1 \}$ ． V_0 は閉じ込めの深さ， L は閉じ込めの幅， ξ は閉じ込めの急峻さを表すパラメータ．

$[010]$, $[001]$ 方向にそれぞれ x , y , z 軸を取る．閉じ込めがある場合でも $\pm k_z$ の谷の縮退に対応した一電子準位の縮退が残るかどうかを調べたいので，閉じ込めポテンシャルとして， z 方向に対する閉じ込め，

$$V(z) = V_0 \left\{ \tanh \left[\left(z - \frac{L}{2} \right) / \xi \right] - \tanh \left[\left(z + \frac{L}{2} \right) / \xi \right] + 1 \right\}, \quad (4.3)$$

を考える．このポテンシャルによって，伝導バンドの電子はポテンシャルの底に閉じ込められる．また，式 (4.3) における，閉じ込めの深さ V_0 ，閉じ込めの幅 L ，閉じ込めの急峻さ ξ を変化させることにより閉じ込めの形状を変えることが可能であり，有効質量近似が成り立つような緩やかなものから，急激な変化をするものまで扱うことが出来る．図 4.2 にポテンシャルの形状と各パラメータの関係を示す．次の節ではこれらのパラメータを変化させて，その影響を調べる．一方 x , y 方向には格子定数 a の周期境界条件，

$$\psi(x, y, z) = \psi(x + a, y, z),$$

$$\psi(x, y, z) = \psi(x, y + a, z), \quad (4.4)$$

を考えた．これは問題にしている伝導バンドの底およびそのすぐ上の一電子準位が $\pm k_z$ の谷の準位であり，その波数 k の x, y 成分が 0 で分散を考えなくてもよいことによる．

実際の計算では位置 \mathbf{R}_i の原子軌道 α を基底として用い，全ハミルトニアンを H として，

$$\int d\mathbf{r} \phi_\alpha(\mathbf{r} - \mathbf{R}_i) H \phi_\beta(\mathbf{r} - \mathbf{R}_j), \quad (4.5)$$

を要素とする行列の固有値方程式を解く．全ハミルトニアンを

$$H = H_0 + V, \quad (4.6)$$

と閉じ込めポテンシャルとそれ以外の部分に分けた時に， H_0 については今回用いた tight-binding モデルの場合，対角要素と隣接原子の軌道間の要素のみが値を持つ．一方，閉じ込めポテンシャルの効果は

$$\int d\mathbf{r} \phi_\alpha(\mathbf{r} - \mathbf{R}_i) V \phi_\beta(\mathbf{r} - \mathbf{R}_j) = V(\mathbf{R}_i) \delta_{\alpha\beta} \delta_{ij}, \quad (4.7)$$

と，対角要素のみを考慮した．

2 つ目のモデルとして， SiO_2 層などによる閉じ込めを想定した，水素終端のモデルを考える． SiO_2 は Si に比べて非常に高いフェルミエネルギーを持ち，絶縁層としてはたらく．このため電子は Si 中に閉じ込められるが，このような原子構造の急激な変化による閉じ込めをこのモデルで扱う．水素終端の量子ドットに対しては，Si ナノ構造で可視光発光が観測されて以来，その原因を解明するべく電子状態や光物性について多くの理論研究がなされている．最近では，回転楕円体の量子ドットに対し長軸と短軸の比を変えて形状の効果調べたもの [47]，表面の dangling bond の一部が水素で終端されているのではなく，dangling bond 同士で結合をしている場合や酸素で終端されている場合を調べたもの [48]，アモルファス Si 量子ドットに対するもの [49] などあるが，これらに共通している点として，考えている量子ドットのサイズがせいぜい 3 nm ぐらいと小さいということと，3次元の閉じ込めに対して計算を行っているという点が挙げられる．一方，我々の研究はもっと一般的で，広いサイズの範囲での電子状態を議論したいということと，歪みなどの原因で分裂を起こしてもなお残る $\pm k_z$ の谷の縮退に対応する一電子準位の縮退が，閉じ込めによって分裂を起こすかどうかを議論したいので 1次元方向にのみ閉じ込めを考える点が，これらの研究と異なる．我々のモデルでは，図 4.3 に示したように，系は図 4.1 にある，1 辺が格子定数 a の立方体を単位構造として， z 方向に L の長さを持つとし，端の dangling bond を水素で終端する（水素に関する取り扱いについては付録 D 参照）．このような系では，1 つ目の制御可能なポテンシャルとは異なり，伝導バンドと価電子バンドの両方の電子を閉じ込めることになる．また，端で 1 原子間隔で異なる原子になっていること，水素の外側に電子が広がることが出来ないことから，急峻な端を持つ，原子構造を反映した影響が見られると考えられる． x, y 方向には先程と同様に，格子定数 a の周期境界条件を考えた．

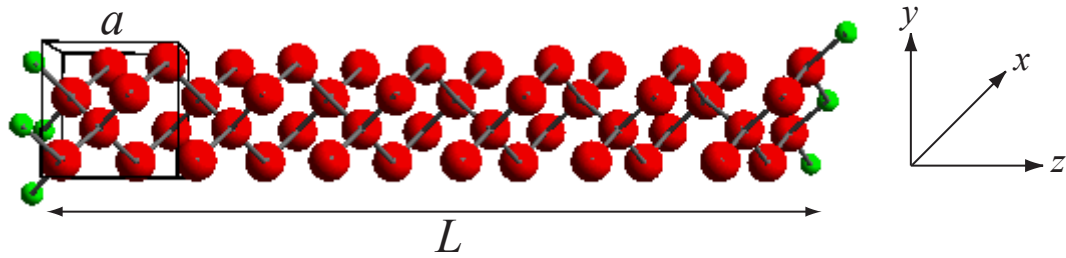


図 4.3: 水素終端のモデル．大きい球はシリコン原子，小さい球は水素原子．格子定数 a の立方体を単位構造として， z 方向に L の長さを持つ．端の dangling bond は水素で終端．

4.3 計算結果

4.3.1 制御可能なポテンシャルの場合

図 4.4(a) に， $V_0 = 0.5 \text{ eV}$ ， $L = 16.25a$ ， $\xi = 0.5a$ の場合について，ポテンシャルの形状を破線で示した．このような閉じ込めポテンシャルが存在すると，電子はこのポテンシャルの底に局在するようになる．ここでは問題となる，伝導バンドの底およびそのすぐ上の一電子準位について，電子の存在確率を調べた．ここでは存在確率を，式 (4.2) の C_i^α を用いて，位置 z にある原子の原子軌道成分の大きさ

$$\rho(z) = \sum_i' \sum_\alpha |C_i^\alpha|^2, \quad (4.8)$$

で表す．ここで1つ目の和は $(R_i)_z = z$ を満たす原子 i について，2つ目の和は10種類の原子軌道 α についてとる．図 4.4(a) に，伝導バンドの底の一電子準位に対する存在確率を，位置 z の関数として十字の点で示した．比較の為に，同じポテンシャルを用いて有効質量近似から得られる存在確率の概形， $|F_{\pm k_z}(z)|^2$ ，を実線で示す．どちらも存在確率は z 方向に規格化されている．tight-binding モデルに対する存在確率では原子軌道の寄与について原子サイトで和を取っているのだから，これら2つの存在確率は一致するように思うかもしれない．このことは単位構造に原子を1つだけ含む場合には当てはまるが，今の場合には単位構造に複数の原子を含むため，それを反映して原子間隔サイズでの細かい構造が見られる．しかしその概形は有効質量近似の結果とほぼ一致していることが分かる．次に，すぐ上の一電子準位の存在確率についても調べたが，その様子は底の一電子準位と同様の概形を示した [図 4.4(b)]．

これら2つの一電子準位は，閉じ込めポテンシャルがない，すなわち $V_0 = 0$ の時，谷の縮退を反映して2重に縮退している． V_0 の増加に伴い，これらは分裂するが，この分裂の大きさを Δ とする．図 4.5 に， ξ の関数としての分裂の大きさ Δ を，(A) $V_0 = 0.5 \text{ eV}$ ， $L = 8.25a = 4.5 \text{ nm}$ ，(B) $V_0 = 0.5 \text{ eV}$ ， $L = 16.25a = 8.8 \text{ nm}$ ，の2つの場合についてプロットした．両方の場合において，閉じ込めポテンシャルが緩やかである ($\xi/a > 0.3$) と，分

裂 Δ は小さい．それに対しポテンシャルが，数原子間隔で変化するほど急峻 ($\xi/a < 0.3$) になると， Δ は大きくなる．更にその領域で，分裂の大きさは，閉じ込めポテンシャルが短い (A) の方が長い場合 (B) よりも大きく，(A) では熱エネルギー $k_B T$ に換算すると， $\Delta \sim 7.7$ K 程度になる．概して，閉じ込めポテンシャルの幅が短い方が，長い場合よりも分裂が大きい．

図 4.6 に， $V_0 = 0.5$ eV, $\xi = 0.02a$ の場合について，閉じ込めポテンシャルの幅と分裂の大きさの関係を示す．閉じ込めの幅が $L = 10a$ (5.4 nm) よりも短くなると Δ は急激に増加するが，それよりも大きいと分裂 Δ は非常に小さくなる．特に $L > 16a$ (8.7 nm) では 1 K よりも小さい．

以上により，このタイプの量子ドットでは，閉じ込めポテンシャルの幅が短く，変化が急峻な場合を除いて，多谷構造に対応する縮退した一電子準位があり，波動関数が包絡関数と谷での Bloch 関数の積の形で書けるといふ，有効質量近似の描像は妥当であると推測される．

4.3.2 水素終端の場合

$L = 16a$ の場合について，伝導バンドの底の一電子準位に対する電子の存在確率 $\rho(z)$ を，前のモデルと同様に位置 z の関数として，図 4.7(a) に十字の点で示す．比較の為に，水素の位置に壁を持つ無限の深さの井戸型ポテンシャルを用いて，有効質量近似から得られる結果を実線で示す．どちらも存在確率は z 方向に規格化されている．原子間隔サイズでの細かい構造は見られるものの，その概形は有効質量近似の結果とほぼ一致していることが分かる．また図 4.7(b) に，そのすぐ上の一電子準位に対する存在確率の様子を示したが，底の一電子準位と同様の概形を示す．

次に制御可能なポテンシャルの場合と同様に，伝導バンドの底の一電子準位とそのすぐ上の準位の分裂の大きさ Δ を調べた． Δ と閉じ込めの長さの関係を図 4.8 に示す．閉じ込めの長さが $L = 10a$ (5.4 nm) 程度までは分裂 Δ は比較的小さいが，それよりも短くなると Δ は急激に増加する． $L = 4a$ (2.2 nm) では $\Delta \sim 35$ K となる．この結果より， $L > 10a$ 程度で，谷の縮退に対応する一電子準位の縮退は保たれると考えられる．

以上により，このようなタイプの量子ドットでも，サイズが小さい場合を除けば，多谷構造に対応する縮退した一電子準位があり，波動関数が包絡関数と谷での Bloch 関数の積の形で書けるといふ，有効質量近似の描像は妥当であると推測される．

4.4 結論と議論

tight-binding モデルを用いて，原子サイズの構造を考慮した一電子準位の計算を行った．伝導バンドの底の準位およびそのすぐ上の準位について，準位間隔と電子の存在確率を調べた．これらの準位間隔は，閉じ込めがない場合に縮退していた谷の準位の，閉じ込

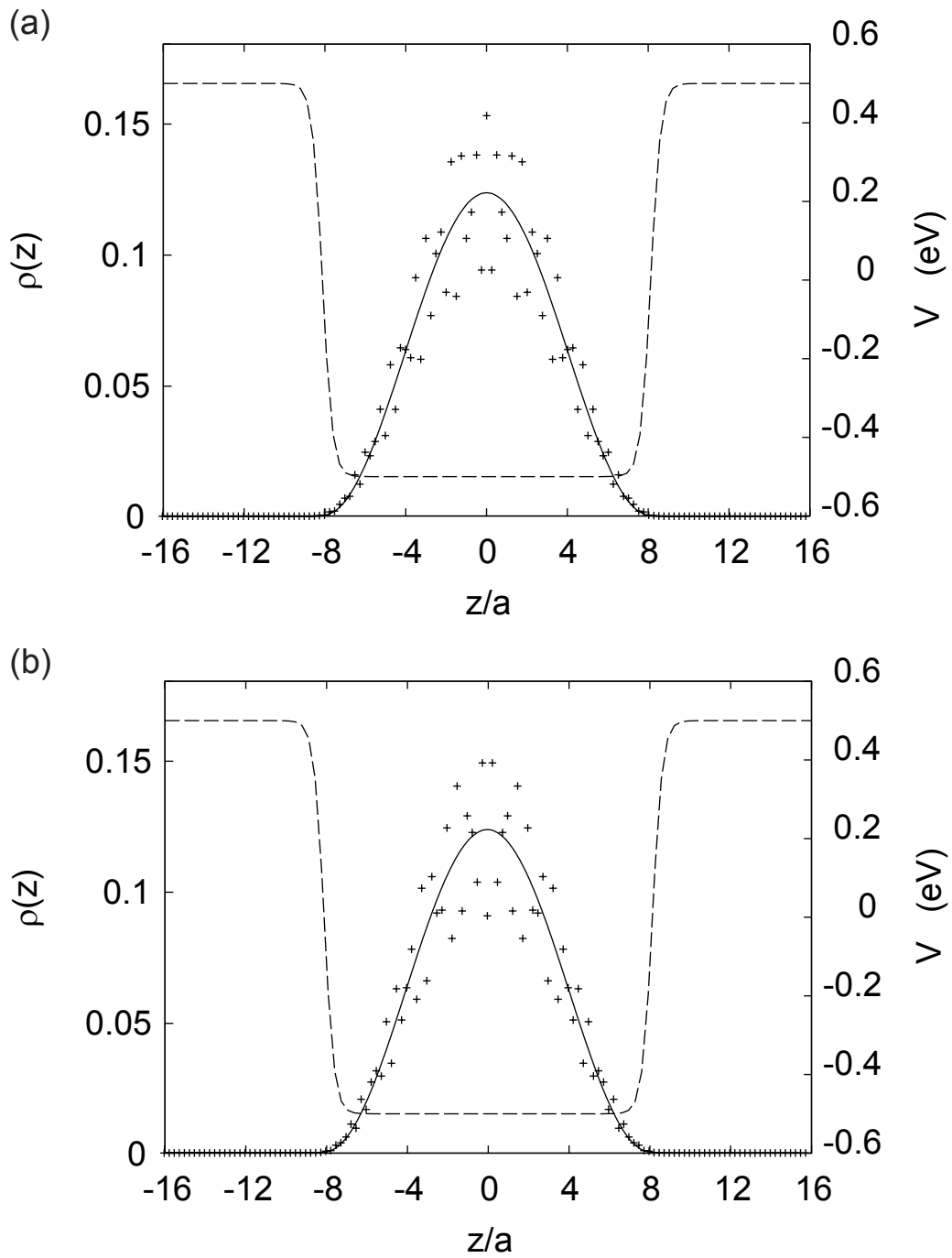


図 4.4: 制御可能なポテンシャルの形状と電子の存在確率．ポテンシャルの形状 (破線) は $V_0 = 0.5$ eV, $L = 16.25a$, $\xi = 0.5a$ の場合．ここで a は格子定数, 0.543 nm. 十字の点は tight-binding モデルから得られる, (a) 伝導バンドの底の一電子準位, (b) そのすぐ上の一電子準位, に対する電子の, 位置 z における存在確率 $\rho(z)$. 実線は有効質量近似による結果．存在確率は z 方向に規格化されている．

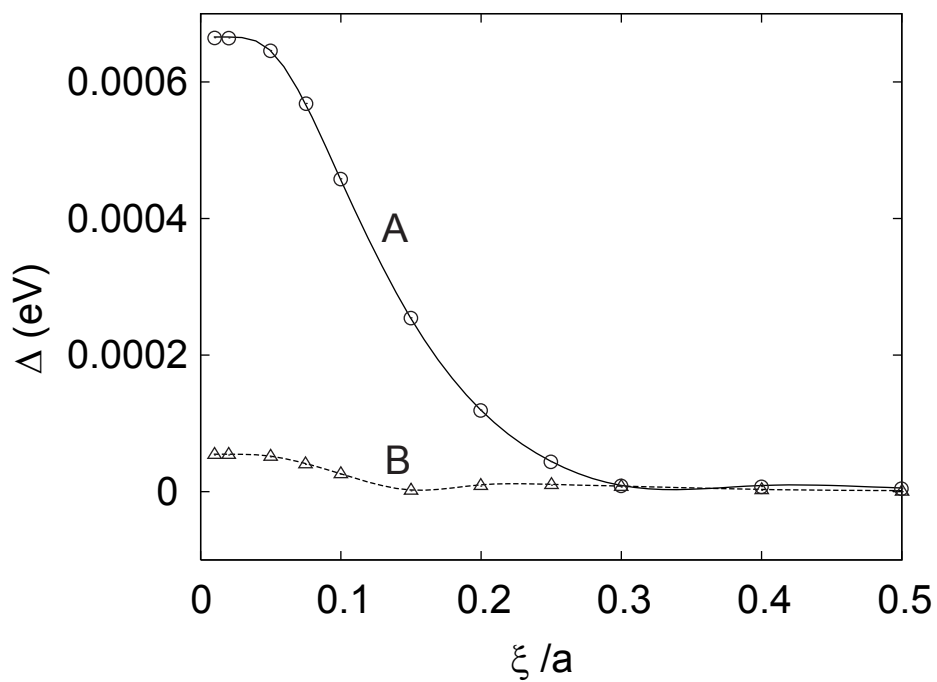


図 4.5: 制御可能なポテンシャルのモデルにおける, 閉じ込めポテンシャルの急峻さ ξ に対する, 伝導バンドの底の一電子準位とそのすぐ上の準位の分裂の大きさ Δ の振る舞い. (A) $V_0 = 0.5$ eV, $L = 8.25a$, (B) $V_0 = 0.5$ eV, $L = 16.25a$. ここで a は格子定数, 0.543 nm.

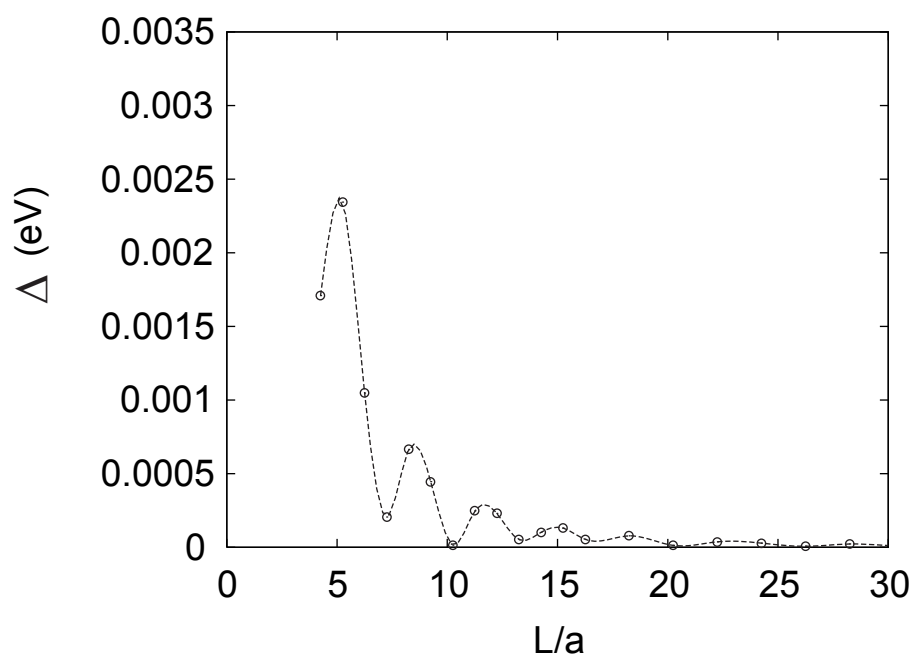


図 4.6: 制御可能なポテンシャルのモデルにおける, 閉じ込めポテンシャルの幅 L に対する, 伝導バンドの底の一電子準位とそのすぐ上の準位の分裂の大きさ Δ の振る舞い. $V_0 = 0.5$ eV, $\xi = 0.02a$. ここで a は格子定数, 0.543 nm.

めによる分裂に対応する。ゲート電極による閉じ込めを想定した制御可能なポテンシャルの閉じ込めのモデルでは、閉じ込めポテンシャルの幅が短く急峻な変化をする場合を除いて、2つの準位はほとんど縮退しており、存在確率の概形も有効質量近似と同じような結果が得られる。しかしポテンシャルが数原子間隔で変化するような急峻な場合には、数～数十 K 程度の分裂を起こす。SiO₂ 層などによる閉じ込めを想定した水素終端のモデルでは、閉じ込めの長さがある程度大きければ (5.4 nm 以上)、2つの準位はほとんど縮退しており、存在確率の概形も有効質量近似と同じような結果が得られる。それよりも小さくなると、数十 K 程度の分裂を起こす。

今回の計算では、 $\pm k_z$ の谷は他の谷より十分低いとして、 z 方向への 1 次元の閉じ込めのみを考えた。実際の量子ドットは 3 次元の閉じ込めであり、これによる異なる方向の谷間での結合を扱わなくてよいのかと思われるかもしれないが、この点について簡単に考察する。ゲート電極による閉じ込め、SiO₂ 層による閉じ込めのどちらの場合にも、加工に伴う形状異方性が生じることが予想される。例えば SiO₂ 層による閉じ込めの場合、 k 空間の異なる方向の谷の分裂の大きさは 100 meV 程度であるが、 $\pm k_z$ のような、同じ方向の谷の 2 重縮退は残る [14, 40]。我々が問題にしていたのは、サイズが小さいことや急峻な端の影響で谷間結合が起き、この 2 重縮退が解けるかどうかで、今回の計算結果では、縮退していた同じ方向の谷の分裂の大きさは、閉じ込めの幅が 2.2 nm 以上の範囲ではせいぜい数十 meV であることが分かった。従って 3 次元の閉じ込めを用いた場合の、異なる方向の谷間の結合による分裂の大きさも同程度かそれ以下であると考えられる。これと比べると形状異方性による 3 方向の谷の分裂の方が十分大きく、最初の仮定は妥当であると考えられる。

今回の結果から、どちらの場合も数 nm 程度にサイズが小さい場合を除いては、有効質量近似による描像は悪くないように思われる。つまりそのような量子ドットでは、2 章で指摘したような性質が見られるはずである。この時、応用面で重要な、一電子準位間隔やスピン状態の制御に大きく関わってくるのは、不純物などによる谷間結合の有無、大きさであるが、これらは原子レベルでの構造を反映するので、制御するのが難しいことが問題点であるといえる。

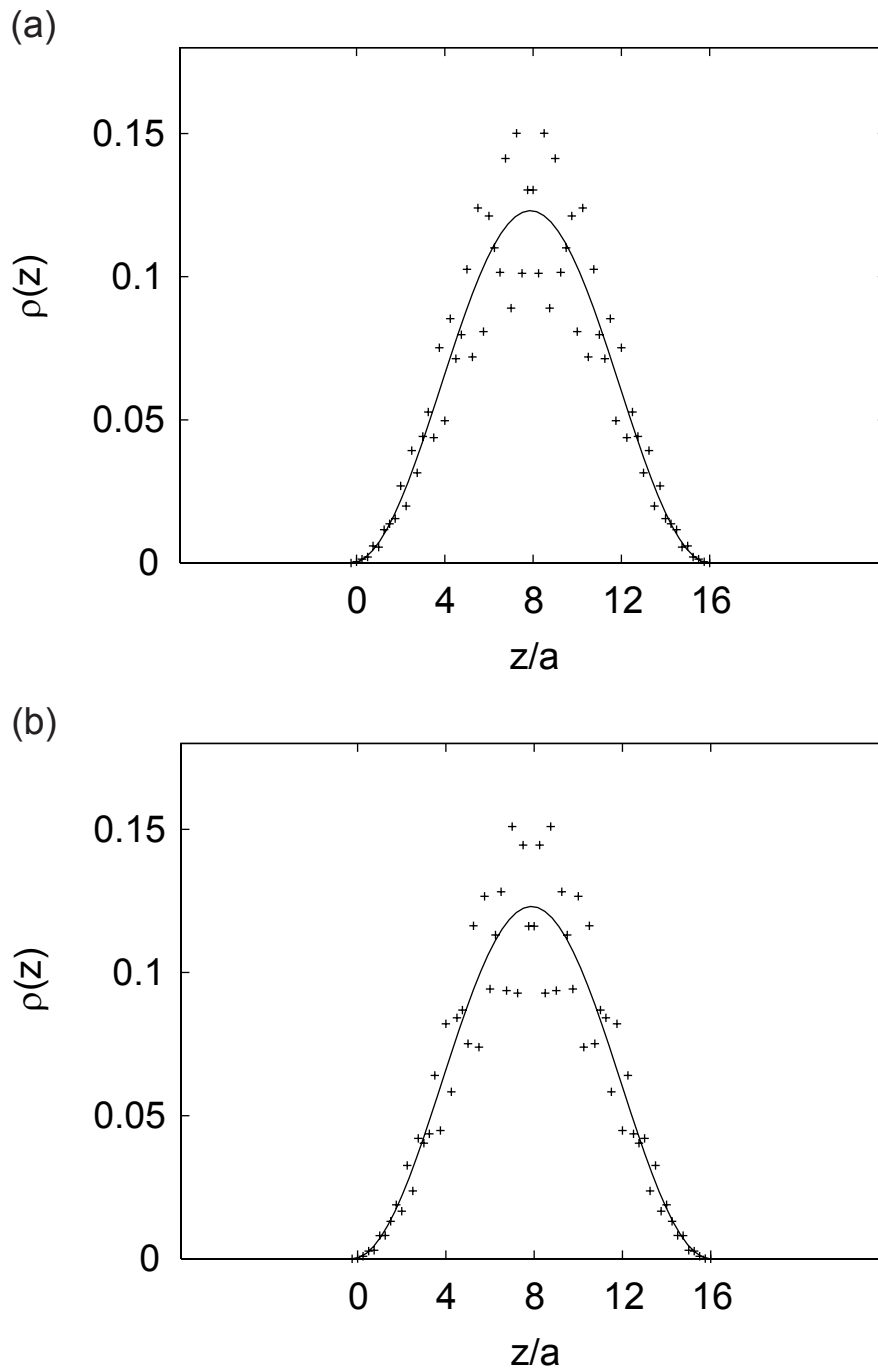


図 4.7: 水素終端モデルにおける (a) 伝導バンドの底の一電子準位, (b) そのすぐ上の一電子準位, に対する電子の, 位置 z での存在確率 $\rho(z)$. 閉じ込めの幅は $L = 16a$, ここで a は格子定数, 0.543 nm . 十字の点は tight-binding モデルでの結果. $z = 0 \sim 15.75a$ がシリコン原子, $z = -0.25a, 16a$ が水素原子のサイトになっている. 実線は水素の位置に壁を持つ, 無限の深さの井戸型ポテンシャルを用いて, 有効質量近似から得た結果. 両方とも z 方向に規格化されている.

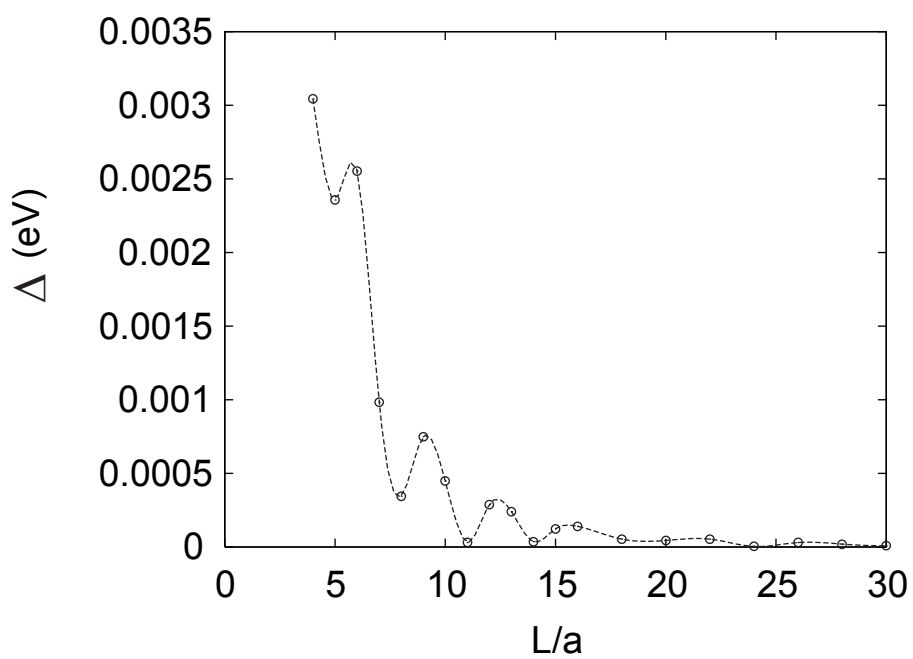


図 4.8: 水素終端モデルにおける, 閉じ込めの長さ L に対する, 伝導バンドの底の一電子準位とそのすぐ上の準位の分裂の大きさ Δ の振る舞い. ここで a は格子定数, 0.543 nm.

第5章 結論

Si が伝導バンドに複数の底 (谷) を持つ多谷構造であることを考慮した, Si 単一量子ドットおよび Si 二重量子ドットにおける電子・スピン状態の理論研究を行った.

まず 2 つの谷の縮退を仮定して, 有効質量近似を用いた Si 単一量子ドットにおける電子・スピン状態の計算を行った. 多体状態は有効質量近似から得られる一電子準位の N 電子による占有の配置に対応する単一の Slater 行列式で表した. 電子間相互作用として, クーロン相互作用, および交換相互作用を考慮して全エネルギーを計算し, 基底状態の配置を決定した. また, 磁場依存性として Zeeman 効果を取り入れた.

多谷構造は縮退した一電子準位を生む. しかし異なる谷の電子間にはスピン結合がないために, 異なるスピンを持つ配置がエネルギー縮退し, 磁場下ではそれらのうち最大のスピンを持つものが現れる. これは, 高スピンは軌道縮退がある場合のみ交換相互作用によって現れる (Hund 則) GaAs 量子ドットの場合とは極めて異なる.

次に量子ドットの形状が電子状態に与える影響を調べた. 電子状態は電子間相互作用と一電子準位間隔の競合によって決まるが, これは量子ドットのサイズに依存する. 球形量子ドットでは, 10 nm より小さければ, 等価な谷の一電子準位は下から順に占有される. 一方それよりもずっと大きい量子ドットでは, 電子は交換エネルギーを得るために最大スピンを作って, 同じ谷の上の準位を占有しようとする. また, 形状異方性を持つ量子ドットでは, 電子はドットが長い方向に沿って分布する.

量子ドット内の不純物などによる, 谷間結合がある場合を, 摂動論の最低次の範囲で調べた. 谷間結合により, 異なる谷の縮退していた準位は混ざり, 分裂する. これは小さいサイズの量子ドットでは最低スピン状態を生むが, 大きいサイズの量子ドットでの高スピン状態は変化させない.

次に多谷構造を考慮したモデルを用いて, Si 二重量子ドットにおける電子・スピン状態を調べ, 局在電子スピン間での交換結合を評価した. 量子ドット内の一電子準位は準位間隔が大きいとして最低準位のみを考えるが, 多谷構造を考慮して 1 つの量子ドットに 2 つの縮退した一電子準位を考える. このとき量子ドット間のトンネル結合には, 同じ谷の準位間のトンネル結合と, 異なる谷の準位間のトンネル結合の 2 種類がある. 電子間相互作用については, 同じ量子ドット内および異なる量子ドットにある電子間のクーロン相互作用を厳密に取り入れて, 計算を行った.

交換結合は, 異なる谷間のトンネル結合も量子ドット内の谷間結合もない時にははたらかないことが分かった. これは縮退した一電子準位が存在し, クーロン相互作用の大きさはどちらの谷にあるかによらないこと, 交換相互作用がはたらかないことによる. 一方,

異なる谷間のトンネル結合がある場合には交換結合がはたらく．量子ドット内の谷間結合がない場合については，交換結合の定式化を行い，谷が1つしかない量子ドットにおける交換結合と比較した．異なる谷間のトンネル結合が同じ谷間のトンネル結合の $\sqrt{2}-1$ 倍以上の大きさであれば，谷が1つしかない場合よりも大きい交換結合が得られる．量子ドット内の谷間結合がある場合，交換結合はその位相に大きく左右される．いくつかの量子ドットのサイズとトンネル結合の強さに対して交換結合の大きさを見積った．

有効質量近似の妥当性に対する議論を行うため，経験的 tight-binding モデルを用いて，原子サイズの構造を考慮した一電子準位の計算を行い，有効質量近似の結果と比較した．伝導バンドの底の準位およびそのすぐ上の準位について，準位間隔と電子の存在確率を調べた．これらの準位間隔は，閉じ込めがない場合に縮退していた谷の準位の，閉じ込めを原因とした分裂に対応する．分裂がなく，電子の存在確率も同じようなものを示す量子ドットであれば，有効質量近似での議論で得られたような性質を示すと考えられる．

ゲート電極による閉じ込めを想定した制御可能なポテンシャルの閉じ込めのモデルでは，閉じ込めポテンシャルの幅が短く急峻な変化をする場合を除いて，2つの準位はほとんど縮退しており，存在確率の概形も有効質量近似と同じような結果が得られる．しかしポテンシャルが数原子間隔で変化するような急峻な場合には，数～数十 K 程度の分裂を起こす． SiO_2 層などによる閉じ込めを想定した，水素終端のモデルでは，閉じ込めの長さがある程度大きければ (5.4 nm 以上)，2つの準位はほとんど縮退しており，存在確率の概形も有効質量近似と同じような結果が得られる．それよりも小さくなると，数十 K 程度の分裂を起こす．

謝辞

江藤幹雄先生には，修士課程から博士課程の5年間，指導教員として，根気強く丁寧にご指導いただき，心から感謝いたしております．私が至らないばかりに掛けてしまった数々のご迷惑，先生から学ばせていただいた沢山のこと，振り返ると，頭の下がる思いでいっぱいです．川村清先生，武田京三郎先生，辻和彦先生，松本智先生には，ご多忙の中，副査をお引き受けいただき，貴重なご意見をいただいて大変感謝しております．

福田禮次郎先生，日向裕幸先生，齋藤幸夫先生，能勢修一先生，高野宏先生，山内淳先生，山口文子先生，古池達彦先生，光武亜代理先生，慶應義塾大学理工学部物理学科理論研究室の先生方には，コロキウム等を通じて様々な議論をしていただきました．理論研究室の諸先輩方には，研究に収まらず様々な事を教わり，お世話になりました．特に西尾憲吾博士，甲賀淳一郎博士には，本研究の tight-binding モデルの部分に関して，沢山の助言をいただきました．

また，浅川和宣氏，植田暁子氏，佐藤友哉氏，佐野好香氏をはじめとする理論研大学院生には，日常生活の中で，時には励まされ助けられて，ともに苦しみ笑い過ごした時間はとても良い思い出となりました．特に西山邦幸氏には本論文執筆に行き詰った際にお世話になった他，日々色々な面で助けていただきました．それから長い学生生活の中で悩み行き詰った時に，叱咤激励してくれた友人達にも感謝の言葉が尽きません．

最後に今日まで暖かく見守ってくれた家族，特に両親の深い愛情に感謝を捧げます．

参考文献

- [1] S. Tarucha, D. G. Austing, T. Honda, R. J. van der Hage and L. P. Kouwenhoven: Phys. Rev. Lett. **77** (1996) 3613.
- [2] L. P. Kouwenhoven, T. H. Oosterkamp, M. W. S. Danoesastro, M. Eto, D. G. Austing, T. Honda and S. Tarucha: Science **278** (1997) 1788.
- [3] M. Eto: Jpn. J. Appl. Phys. **36** (1997) 3924.
- [4] P. A. Maksym and T. Chakraborty: Phys. Rev. Lett. **65** (1990) 108.
- [5] M. Wagner, U. Merkt and A. V. Chaplik: Phys. Rev. B **45** (1992) 1951.
- [6] P. Hawrylak: Phys. Rev. Lett. **71** (1993) 3347.
- [7] D. Pfannkuche and S. E. Ulloa: Phys. Rev. Lett. **74** (1995) 1194.
- [8] M. Eto: Jpn. J. Appl. Phys. **38** (1999) 376.
- [9] M. Eto: Jpn. J. Appl. Phys. **40** (2001) 1929, and related references cited therein.
- [10] T. Schmidt, R. J. Haug, K. v. Klitzing, A. Förster and H. Lüth: Phys. Rev. Lett. **78** (1997) 1544.
- [11] T. H. Oosterkamp, T. Fujisawa, W. G. van der Wiel, K. Ishibashi, R. V. Hijman, S. Tarucha and L. P. Kouwenhoven: Nature **395** (1998) 873.
- [12] M. Eto: Solid-State Electron. **42** (1998) 1373.
- [13] Y. Takahashi, M. Nagase, H. Namatsu, K. Kurihara, K. Iwadate, Y. Nakajima, S. Horiguchi, K. Murase and M. Tabe: Electron. Lett. **31** (1995) 136.
- [14] S. Horiguchi, M. Nagase, K. Shiraishi, H. Kageshima, Y. Takahashi and K. Murase: Jpn. J. Appl. Phys. **40** (2001) L29, and related references cited therein.
- [15] T. Hiramoto, H. Ishikuro, T. Fujii, G. Hashiguchi and T. Ikoma: Jpn. J. Appl. Phys. **36** (1997) 4139.

- [16] M. Saitoh, N. Takahashi, H. Ishikuro and T. Hiramoto: Jpn. J. Appl. Phys. **40** (2001) 2010.
- [17] L. P. Rokhinson, L. J. Guo, S. Y. Chou and D. C. Tsui: Phys. Rev. B **63** (2001) 35321.
- [18] L. P. Rokhinson, L. J. Guo, S. Y. Chou and D. C. Tsui: Phys. Rev. Lett. **87** (2001) 166802.
- [19] K. Ono: private communications.
- [20] L. P. Rokhinson, L. J. Guo, S. Y. Chou and D. C. Tsui: Phys. Rev. B **60** (1999) R16319.
- [21] B. E. Kane: Nature **393** (1998) 133.
- [22] T. D. Ladd, J. R. Goldman, F. Yamaguchi, Y. Yamamoto, E. Abe and K. M. Itoh: Phys. Rev. Lett. **89** (2002) 17901.
- [23] Y. Nakamura, Yu. A. Pashkin and J. S. Tsai: Nature **398** (1999) 786.
- [24] I. Chiorescu, Y. Nakamura, C. Harmans and J. E. Mooij: Science **299** (2003) 1869.
- [25] Yu. A. Pashkin, T. Yamamoto, O. Astafiev, Y. Nakamura, D. V. Averin and J. S. Tsai: Nature **421** (2003) 823.
- [26] D. Loss and D. P. DiVincenzo: Phys. Rev. A **57** (1998) 120.
- [27] M. A. Nielsen and I. L. Chuang: *Quantum Computation and Quantum Information* (Cambridge University Press, Cambridge, 2000).
- [28] M. Friesen, P. Rugheimer, D. E. Savage, M. G. Lagally, D. W. van der Weide, R. Joynt and M. A. Eriksson: Phys. Rev. B **67** (2003) 121301.
- [29] K. M. Itoh and E. E. Haller: Physica E **10** (2001) 463.
- [30] K. Natori, T. Uehara and N. Sano: Jpn. J. Appl. Phys. **39** (2000) 2550.
- [31] L. P. Rokhinson, L. J. Guo, S. Y. Chou and D. C. Tsui: Phys. Rev. Lett. **88** (2002) 186801.
- [32] B. H. Choi, Y. S. Yu, D. H. Kim, S. H. Son, K. H. Cho, S. W. Hwang, D. Ahn and B. G. Park: Physica E **13** (2002) 946.
- [33] B. Koiller, X. Hu and S. Das Sarma: Phys. Rev. Lett. **88** (2002) 27903.

- [34] J. R. Chelikowsky and M. L. Cohen: Phys. Rev. B **14** (1976) 556.
- [35] H. Ibach and H. Lüth: *Solid State Physics* (Springer, Berlin, 1981).
- [36] J. M. Luttinger and W. Kohn: Phys. Rev. **97** (1955) 869.
- [37] Y. Hada and M. Eto: Phys. Rev. B **68** (2003) 155322.
- [38] J. Jancu, R. Scholz, F. Beltram and F. Bassani: Phys. Rev. B **57** (1998) 6493.
- [39] Y. Hada and M. Eto: Jpn. J. Appl. Phys. **43** (2004) 7329.
- [40] K. Shiraishi, M. Nagase, S. Horiguchi, H. Kageshima, M. Uematsu, Y. Takahashi and K. Murase: Physica E **7** (2000) 337.
- [41] D. Weinmann, W. Häusler and B. Kramer: Phys. Rev. Lett. **74** (1995) 984.
- [42] E. Leobandung, L. Guo, Y. Wang and S. Y. Chou: Appl. Phys. Lett. **67** (1995) 938.
- [43] W. Heitler and F. London: Z. Phys. **44** (1927) 455.
- [44] J. C. Slater and G. F. Koster: Phys. Rev. **94** (1954) 1498.
- [45] Y. M. Niquet, C. Delerue, G. Allan and M. Lannoo: Phys. Rev. B **62** (2000) 5109.
- [46] D. J. Chadi and M. L. Cohen: Phys. stat. sol. (b) **68** (1975) 405.
- [47] F. Trani, G. Cantele, D. Ninno and G. Iadonisi: Physica E **22** (2004) 808.
- [48] M. Nishida: Phys. Lett. A **323** (2004) 449.
- [49] K. Nishio, J. Kōga, T. Yamaguchi and F. Yonezawa: Phys. Rev. B **67** (2003) 195304.
- [50] H. P. Hjalmarson and J. D. Dow: J. Phys. Chem. Solids **44** (1983) 365.
- [51] *Semiconductors: Group IV Elements and III – V Compounds*, edited by O. Madelung, Landolt-Börnstein, New Series, Group III, Vol. 17, Pt. a (Springer, Berlin, 1982).
- [52] D. Straub, L. Ley and F. J. Himpsel: Phys. Rev. Lett. **54** (1985) 142.
- [53] M. Rohlfing, P. Krüger and J. Pollmann: Phys. Rev. B **48** (1993) 17791.
- [54] D. R. Bowler, M. Fearn, C. M. Goringe, A. P. Horsfield and D. G. Pettifor: J. Phys.: Condens. Matter **10** (1998) 3719.

- [55] B. J. Min, Y. H. Lee, C. Z. Wang, C. T. Chan and K. M. Ho: Phys. Rev. B **45** (1992) 6839.
- [56] G. D. Sanders and Yia-Chung Chang: Phys. Rev. B **45** (1992) 9202.
- [57] W. A. Harrison: *Electronic Structure and Properties of Solids* (Freeman, San Francisco, 1980).

付録 A 有効質量近似による一電子準位と電子間相互作用の計算

A.1 一電子準位

有効質量方程式

$$\begin{aligned}
 \left[-\frac{\hbar^2}{2m_t^*} \left(\frac{\partial^2}{\partial x^2} + \frac{\partial^2}{\partial y^2} \right) - \frac{\hbar^2}{2m_l^*} \frac{\partial^2}{\partial z^2} + V(x, y, z) \right] F_{\pm k_z}(\mathbf{r}) &= \varepsilon_{\pm k_z} F_{\pm k_z}(\mathbf{r}), \\
 \left[-\frac{\hbar^2}{2m_l^*} \frac{\partial^2}{\partial x^2} - \frac{\hbar^2}{2m_t^*} \left(\frac{\partial^2}{\partial y^2} + \frac{\partial^2}{\partial z^2} \right) + V(x, y, z) \right] F_{\pm k_x}(\mathbf{r}) &= \varepsilon_{\pm k_x} F_{\pm k_x}(\mathbf{r}), \\
 \left[-\frac{\hbar^2}{2m_l^*} \frac{\partial^2}{\partial y^2} - \frac{\hbar^2}{2m_t^*} \left(\frac{\partial^2}{\partial z^2} + \frac{\partial^2}{\partial x^2} \right) + V(x, y, z) \right] F_{\pm k_y}(\mathbf{r}) &= \varepsilon_{\pm k_y} F_{\pm k_y}(\mathbf{r}),
 \end{aligned} \tag{A.1}$$

に等方的な閉じ込めポテンシャル

$$V(x, y, z) = \frac{1}{2}K(x^2 + y^2 + z^2), \tag{A.2}$$

を代入すると，準位 $(\pm k_i; n_x, n_y, n_z)$ に対する包絡関数は，

$$\begin{aligned}
 F_{\pm k_i}^{n_x, n_y, n_z}(\mathbf{r}) &= \left(\frac{1}{2^{n_x+n_y+n_z} n_x! n_y! n_z!} \right)^{\frac{1}{2}} \left(\frac{1}{\pi \hbar} \right)^{\frac{3}{4}} (a_{ix} a_{iy} a_{iz})^{\frac{1}{4}} \\
 &\quad \times H_{n_x} \left(\sqrt{\frac{a_{ix}}{\hbar}} x \right) H_{n_y} \left(\sqrt{\frac{a_{iy}}{\hbar}} y \right) H_{n_z} \left(\sqrt{\frac{a_{iz}}{\hbar}} z \right) \\
 &\quad \times \exp \left[-\frac{1}{2\hbar} (a_{ix} x^2 + a_{iy} y^2 + a_{iz} z^2) \right],
 \end{aligned} \tag{A.3}$$

で与えられ， $F_{+k_i}^{n_x, n_y, n_z}(\mathbf{r}) = F_{-k_i}^{n_x, n_y, n_z}(\mathbf{r})$ ，である．ここで $H_n(q)$ はエルミート多項式で，例えば

$$\begin{aligned}
 H_0(q) &= 1, \\
 H_1(q) &= 2q, \\
 H_2(q) &= 4q^2 - 2,
 \end{aligned} \tag{A.4}$$

である． a_{ij} ($i, j = x, y, z$) はそれぞれ，

$$a_{ij} = \begin{pmatrix} & x & y & z \\ x & (m_l^* K)^{1/2} & (m_t^* K)^{1/2} & (m_t^* K)^{1/2} \\ y & (m_t^* K)^{1/2} & (m_l^* K)^{1/2} & (m_t^* K)^{1/2} \\ z & (m_t^* K)^{1/2} & (m_t^* K)^{1/2} & (m_l^* K)^{1/2} \end{pmatrix}, \quad (\text{A.5})$$

で与えられる．つまり包絡関数は(係数) $\times(x, y, z$ の多項式) $\times \exp[-(a_{ix}x^2 + a_{iy}y^2 + a_{iz}z^2)/2\hbar]$ ，という形になる．2.3節では6つの谷の $(n_x, n_y, n_z) = (0, 0, 0), (1, 0, 0), (0, 1, 0), (0, 0, 1), (2, 0, 0), (0, 2, 0), (0, 0, 2)$ ，の一電子準位を用いて， N 電子 ($N = 1 \sim 5$) による全ての可能な配置を求め，一電子準位のエネルギーと電子間相互作用を計算して，それらのうち最もエネルギーの低いものを基底状態の配置と決めた．

A.2 クーロン積分

k_i と k_j は6つの谷 $\pm k_x, \pm k_y, \pm k_z$ のいずれかとして， $(k_i; n_x, n_y, n_z)$ という準位にある電子と， $(k_j; n'_x, n'_y, n'_z)$ という準位にある電子間のクーロン積分，

$$\begin{aligned} & \langle \psi_{k_i}^{n_x, n_y, n_z}(\mathbf{r}_1) \psi_{k_j}^{n'_x, n'_y, n'_z}(\mathbf{r}_2) \mid \frac{e^2}{4\pi\epsilon |\mathbf{r}_1 - \mathbf{r}_2|} \mid \psi_{k_i}^{n_x, n_y, n_z}(\mathbf{r}_1) \psi_{k_j}^{n'_x, n'_y, n'_z}(\mathbf{r}_2) \rangle \\ &= \int \int d\mathbf{r}_1 d\mathbf{r}_2 \psi_{k_i}^{n_x, n_y, n_z*}(\mathbf{r}_1) \psi_{k_j}^{n'_x, n'_y, n'_z*}(\mathbf{r}_2) \frac{e^2}{4\pi\epsilon |\mathbf{r}_1 - \mathbf{r}_2|} \psi_{k_i}^{n_x, n_y, n_z}(\mathbf{r}_1) \psi_{k_j}^{n'_x, n'_y, n'_z}(\mathbf{r}_2) \\ &= \int \int d\mathbf{r}_1 d\mathbf{r}_2 |F_{k_i}^{n_x, n_y, n_z}(\mathbf{r}_1)|^2 \frac{e^2}{4\pi\epsilon |\mathbf{r}_1 - \mathbf{r}_2|} |F_{k_j}^{n'_x, n'_y, n'_z}(\mathbf{r}_2)|^2, \end{aligned} \quad (\text{A.6})$$

を，先に述べた (n_x, n_y, n_z) の準位間について求めた．

まず，いちばん単純な $(k_i; 0, 0, 0)$ と $(k_j; 0, 0, 0)$ 間のクーロン積分の計算について述べる．

$$\begin{aligned} & \langle \psi_{k_i}^{0,0,0}(\mathbf{r}_1) \psi_{k_j}^{0,0,0}(\mathbf{r}_2) \mid \frac{e^2}{4\pi\epsilon |\mathbf{r}_1 - \mathbf{r}_2|} \mid \psi_{k_i}^{0,0,0}(\mathbf{r}_1) \psi_{k_j}^{0,0,0}(\mathbf{r}_2) \rangle \\ &= \frac{e^2}{4\pi\epsilon} \left(\frac{1}{\pi\hbar}\right)^3 (a_{ix}a_{jx}a_{iy}a_{jy}a_{iz}a_{jz})^{\frac{1}{2}} \\ & \quad \times \int \int dx_1 dy_1 dz_1 dx_2 dy_2 dz_2 \frac{1}{\sqrt{(x_1 - x_2)^2 + (y_1 - y_2)^2 + (z_1 - z_2)^2}} \\ & \quad \times \exp\left[-\frac{1}{2\hbar}(a_{ix}x_1^2 + a_{iy}y_1^2 + a_{iz}z_1^2)\right] \exp\left[-\frac{1}{2\hbar}(a_{jx}x_2^2 + a_{jy}y_2^2 + a_{jz}z_2^2)\right], \end{aligned}$$

であるが，これを $X = x_1 - x_2, X' = \frac{a_{ix}x_1 + a_{jx}x_2}{a_{ix} + a_{jx}}$ 等と変数変換して X', Y', Z' について積分を行うと

$$\langle \psi_{k_i}^{0,0,0}(\mathbf{r}_1) \psi_{k_j}^{0,0,0}(\mathbf{r}_2) \mid \frac{e^2}{4\pi\epsilon |\mathbf{r}_1 - \mathbf{r}_2|} \mid \psi_{k_i}^{0,0,0}(\mathbf{r}_1) \psi_{k_j}^{0,0,0}(\mathbf{r}_2) \rangle$$

$$= \frac{e^2}{4\pi^{\frac{5}{2}}\varepsilon} \left(\frac{1}{\hbar} \frac{a_{ix}a_{jx}}{a_{ix} + a_{jx}} \frac{1}{\hbar} \frac{a_{iy}a_{jy}}{a_{iy} + a_{jy}} \frac{1}{\hbar} \frac{a_{iz}a_{jz}}{a_{iz} + a_{jz}} \right)^{\frac{1}{2}} \\ \times \int dXdYdZ \frac{1}{\sqrt{X^2 + Y^2 + Z^2}} \exp \left[-\frac{1}{\hbar} \left(\frac{a_{ix}a_{jx}}{a_{ix} + a_{jx}} X^2 + \frac{a_{iy}a_{jy}}{a_{iy} + a_{jy}} Y^2 + \frac{a_{iz}a_{jz}}{a_{iz} + a_{jz}} Z^2 \right) \right],$$

となる．ここで

$$F(A, B, C) = \int dx dy dz \frac{1}{\sqrt{x^2 + y^2 + z^2}} \exp[-(Ax^2 + By^2 + Cz^2)], \quad (\text{A.7})$$

なる関数 F を考える．この関数は A, B, C を入れ替えても同じ値である．また

$$F(A, B, C) = 2\pi \int_0^1 \frac{dt}{\sqrt{AB\left\{\left(\frac{C}{A} - 1\right)t^2 + 1\right\}\left\{\left(\frac{C}{B} - 1\right)t^2 + 1\right\}}},$$

と1変数積分に帰着することが出来る．これを用いて

$$\langle \psi_{k_i}^{0,0,0}(\mathbf{r}_1) \psi_{k_j}^{0,0,0}(\mathbf{r}_2) | \frac{e^2}{4\pi\varepsilon |\mathbf{r}_1 - \mathbf{r}_2|} | \psi_{k_i}^{0,0,0}(\mathbf{r}_1) \psi_{k_j}^{0,0,0}(\mathbf{r}_2) \rangle \\ = \frac{e^2}{4\pi^{\frac{5}{2}}\varepsilon} \left(\frac{1}{\hbar} \frac{a_{ix}a_{jx}}{a_{ix} + a_{jx}} \frac{1}{\hbar} \frac{a_{iy}a_{jy}}{a_{iy} + a_{jy}} \frac{1}{\hbar} \frac{a_{iz}a_{jz}}{a_{iz} + a_{jz}} \right)^{\frac{1}{2}} F \left(\frac{1}{\hbar} \frac{a_{ix}a_{jx}}{a_{ix} + a_{jx}}, \frac{1}{\hbar} \frac{a_{iy}a_{jy}}{a_{iy} + a_{jy}}, \frac{1}{\hbar} \frac{a_{iz}a_{jz}}{a_{iz} + a_{jz}} \right),$$

となり， F の部分については1変数積分に帰着し数値的に評価を行った．

次に $(k_i; 0, 0, 0)$ と $(k_j; 1, 0, 0)$ 間のクーロン積分の計算について述べる．前と同様に計算を行うことにより，

$$\langle \psi_{k_i}^{0,0,0}(\mathbf{r}_1) \psi_{k_j}^{1,0,0}(\mathbf{r}_2) | \frac{e^2}{4\pi\varepsilon |\mathbf{r}_1 - \mathbf{r}_2|} | \psi_{k_i}^{0,0,0}(\mathbf{r}_1) \psi_{k_j}^{1,0,0}(\mathbf{r}_2) \rangle \\ = \frac{e^2}{4\pi\varepsilon} \left(\frac{1}{\pi\hbar} \right)^3 (a_{ix}a_{jx}a_{iy}a_{jy}a_{iz}a_{jz})^{\frac{1}{2}} \\ \times \left(\frac{2a_{jx}}{\hbar} \right) \int \int dx_1 dy_1 dz_1 dx_2 dy_2 dz_2 \frac{x_2^2}{\sqrt{(x_1 - x_2)^2 + (y_1 - y_2)^2 + (z_1 - z_2)^2}} \\ \times \exp \left[-\frac{1}{2\hbar} (a_{ix}x_1^2 + a_{iy}y_1^2 + a_{iz}z_1^2) \right] \exp \left[-\frac{1}{2\hbar} (a_{jx}x_2^2 + a_{jy}y_2^2 + a_{jz}z_2^2) \right],$$

であるが，これを $X = x_1 - x_2$, $X' = \frac{a_{ix}x_1 + a_{jx}x_2}{a_{ix} + a_{jx}}$ 等と変数変換して X', Y', Z' について積分を行うと

$$\langle \psi_{k_i}^{0,0,0}(\mathbf{r}_1) \psi_{k_j}^{1,0,0}(\mathbf{r}_2) | \frac{e^2}{4\pi\varepsilon |\mathbf{r}_1 - \mathbf{r}_2|} | \psi_{k_i}^{0,0,0}(\mathbf{r}_1) \psi_{k_j}^{1,0,0}(\mathbf{r}_2) \rangle \\ = \frac{e^2}{4\pi^{\frac{5}{2}}\varepsilon} \left(\frac{1}{\hbar} \frac{a_{ix}a_{jx}}{a_{ix} + a_{jx}} \frac{1}{\hbar} \frac{a_{iy}a_{jy}}{a_{iy} + a_{jy}} \frac{1}{\hbar} \frac{a_{iz}a_{jz}}{a_{iz} + a_{jz}} \right)^{\frac{1}{2}} \\ \times \int dX dY dZ \frac{1}{\sqrt{X^2 + Y^2 + Z^2}} \left[\frac{a_{jx}}{a_{ix} + a_{jx}} + 2 \left(\frac{a_{jx}}{a_{ix} + a_{jx}} \right)^2 \left(\frac{a_{jx}}{\hbar} \right) X^2 \right] \\ \times \exp \left[-\frac{1}{\hbar} \left(\frac{a_{ix}a_{jx}}{a_{ix} + a_{jx}} X^2 + \frac{a_{iy}a_{jy}}{a_{iy} + a_{jy}} Y^2 + \frac{a_{iz}a_{jz}}{a_{iz} + a_{jz}} Z^2 \right) \right],$$

となる．ここで

$$H^x(A, B, C) = \int dx dy dz \frac{x^2}{\sqrt{x^2 + y^2 + z^2}} \exp[-(Ax^2 + By^2 + Cz^2)], \quad (\text{A.8})$$

なる関数 H^x を考える．この関数は B, C の入れ替えに対し値を変えない．また

$$H^x(A, B, C) = \pi \int_0^1 \frac{1-t^2}{\sqrt{A^3 B \left\{ \left(\frac{C}{A} - 1 \right) t^2 + 1 \right\}^3 \left\{ \left(\frac{C}{B} - 1 \right) t^2 + 1 \right\}}} dt,$$

と1変数積分に帰着することが出来る．同様に

$$\begin{aligned} H^y(A, B, C) &= \int dx dy dz \frac{y^2}{\sqrt{x^2 + y^2 + z^2}} \exp[-(Ax^2 + By^2 + Cz^2)], \\ H^z(A, B, C) &= \int dx dy dz \frac{z^2}{\sqrt{x^2 + y^2 + z^2}} \exp[-(Ax^2 + By^2 + Cz^2)], \end{aligned} \quad (\text{A.9})$$

を考えると

$$\begin{aligned} H^x(A, B, C) &= H^y(C, A, B) = H^z(B, C, A) \\ &= H^x(A, C, B) = H^y(B, A, C) = H^z(C, B, A), \end{aligned}$$

が成り立つ．これと先ほどの F を用いて

$$\begin{aligned} &\langle \psi_{k_i}^{0,0,0}(\mathbf{r}_1) \psi_{k_j}^{1,0,0}(\mathbf{r}_2) | \frac{1}{4\pi\epsilon |\mathbf{r}_1 - \mathbf{r}_2|} | \psi_{k_i}^{0,0,0}(\mathbf{r}_1) \psi_{k_j}^{1,0,0}(\mathbf{r}_2) \rangle \\ &= \frac{e^2}{4\pi^{\frac{5}{2}}\epsilon} \left(\frac{1}{\hbar} \frac{a_{ix}a_{jx}}{a_{ix} + a_{jx}} \frac{1}{\hbar} \frac{a_{iy}a_{jy}}{a_{iy} + a_{jy}} \frac{1}{\hbar} \frac{a_{iz}a_{jz}}{a_{iz} + a_{jz}} \right)^{\frac{1}{2}} \\ &\quad \times \left[\frac{a_{jx}}{a_{ix} + a_{jx}} F \left(\frac{1}{\hbar} \frac{a_{ix}a_{jx}}{a_{ix} + a_{jx}}, \dots \right) + 2 \left(\frac{a_{ix}}{a_{ix} + a_{jx}} \right)^2 \left(\frac{a_{jx}}{\hbar} \right) H^x \left(\frac{1}{\hbar} \frac{a_{ix}a_{jx}}{a_{ix} + a_{jx}}, \dots \right) \right], \end{aligned}$$

となる． F と H^x の部分については1変数積分に帰着し数値的に評価した．

包絡関数は(係数) $\times(x, y, z$ の多項式) $\times \exp[-(a_{ix}x^2 + a_{iy}y^2 + a_{iz}z^2)/2\hbar]$ で表されるので，クーロン積分には2つの準位に応じた x, y, z の多項式の積が現れる．上で述べた以外の準位間のクーロン積分の計算では，この x, y, z の多項式の積の部分に，より高次の項が現れるものもあるが，同様の手順で計算可能である．これらの計算結果を用いて，A.1節の最後に述べたように基底状態の配置を決めた．しかし結果として， $\pm k_z$ の谷の準位にしか電子は入らなかったため，ここでは $\pm k_z$ の谷の基底および励起準位， $(n_x, n_y, n_z) = (0, 0, 0), (1, 0, 0), (0, 1, 0), (0, 0, 1)$ 間のクーロン積分の例を挙げるのに留めておく．そのために先ほど用いた F, H^x の他に，

$$\begin{aligned} I^{xy}(A, B, C) &= \int dx dy dz \frac{x^2 y^2}{\sqrt{x^2 + y^2 + z^2}} \exp[-(Ax^2 + By^2 + Cz^2)] \\ I^{xx}(A, B, C) &= \int dx dy dz \frac{x^4}{\sqrt{x^2 + y^2 + z^2}} \exp[-(Ax^2 + By^2 + Cz^2)], \end{aligned} \quad (\text{A.10})$$

等を考え，以下で用いる．これらも1変数積分に帰着可能である．

1. 同じ谷 ($k_i = k_j = +k_z$ または $-k_z$) の場合

• 基底準位-基底準位間

($\pm k_z; 0, 0, 0$) - ($\pm k_z; 0, 0, 0$) 準位間

$$\frac{e^2}{4\pi^{\frac{5}{2}}\varepsilon} \left(\frac{a_{zx}}{2\hbar} \frac{a_{zy}}{2\hbar} \frac{a_{zz}}{2\hbar} \right)^{\frac{1}{2}} F \left(\frac{a_{zx}}{2\hbar}, \frac{a_{zy}}{2\hbar}, \frac{a_{zz}}{2\hbar} \right)$$

• 基底準位-励起準位間

($\pm k_z; 0, 0, 0$) - ($\pm k_z; 1, 0, 0$) 準位間

$$\frac{e^2}{4\pi^{\frac{5}{2}}\varepsilon} \left(\frac{a_{zx}}{2\hbar} \frac{a_{zy}}{2\hbar} \frac{a_{zz}}{2\hbar} \right)^{\frac{1}{2}} \left[\frac{1}{2} F \left(\frac{a_{zx}}{2\hbar}, \frac{a_{zy}}{2\hbar}, \frac{a_{zz}}{2\hbar} \right) + \left(\frac{a_{zx}}{2\hbar} \right) H^x \left(\frac{a_{zx}}{2\hbar}, \frac{a_{zy}}{2\hbar}, \frac{a_{zz}}{2\hbar} \right) \right]$$

• 励起準位-励起準位 (同一準位) 間

($\pm k_z; 1, 0, 0$) - ($\pm k_z; 1, 0, 0$) 準位間

$$\frac{e^2}{4\pi^{\frac{5}{2}}\varepsilon} \left(\frac{a_{zx}}{2\hbar} \frac{a_{zy}}{2\hbar} \frac{a_{zz}}{2\hbar} \right)^{\frac{1}{2}} \left[\frac{1}{4} F \left(\frac{a_{zx}}{2\hbar}, \frac{a_{zy}}{2\hbar}, \frac{a_{zz}}{2\hbar} \right) + \left(\frac{a_{zx}}{2\hbar} \right) H^x \left(\frac{a_{zx}}{2\hbar}, \frac{a_{zy}}{2\hbar}, \frac{a_{zz}}{2\hbar} \right) + \left(\frac{a_{zx}}{2\hbar} \right)^2 I^{xx} \left(\frac{a_{zx}}{2\hbar}, \frac{a_{zy}}{2\hbar}, \frac{a_{zz}}{2\hbar} \right) \right]$$

• 励起準位-励起準位 (それ以外) 間

($\pm k_z; 1, 0, 0$) - ($\pm k_z; 0, 1, 0$) 準位間

$$\frac{e^2}{4\pi^{\frac{5}{2}}\varepsilon} \left(\frac{a_{zx}}{2\hbar} \frac{a_{zy}}{2\hbar} \frac{a_{zz}}{2\hbar} \right)^{\frac{1}{2}} \left[\frac{1}{4} F \left(\frac{a_{zx}}{2\hbar}, \frac{a_{zy}}{2\hbar}, \frac{a_{zz}}{2\hbar} \right) + \frac{1}{2} \left(\frac{a_{zx}}{2\hbar} \right) H^x \left(\frac{a_{zx}}{2\hbar}, \frac{a_{zy}}{2\hbar}, \frac{a_{zz}}{2\hbar} \right) + \frac{1}{2} \left(\frac{a_{zy}}{2\hbar} \right) H^y \left(\frac{a_{zx}}{2\hbar}, \frac{a_{zy}}{2\hbar}, \frac{a_{zz}}{2\hbar} \right) + \left(\frac{a_{zx}}{2\hbar} \right) \left(\frac{a_{zy}}{2\hbar} \right) I^{xy} \left(\frac{a_{zx}}{2\hbar}, \frac{a_{zy}}{2\hbar}, \frac{a_{zz}}{2\hbar} \right) \right]$$

2. 異なる谷 ($k_i = \pm k_z, k_j = \mp k_z$) の場合

式 (A.6) より, クーロン積分は包絡関数にのみ依存するが, $\pm k_z$ の谷で包絡関数の形は同じなので,

- 基底準位-基底準位
- 基底準位-励起準位
- 励起準位-励起準位 (同一準位)
- 励起準位-励起準位 (それ以外)

間のクーロン積分は同じ谷の対応するそれに, それぞれ等しい.

A.3 交換積分

交換相互作用はスピンの向きが揃った電子のペアにのみはたらく量子力学的な効果で、エネルギーを下げる。 k_i と k_j は6つの底 $\pm k_x, \pm k_y, \pm k_z$ のいずれかとして、準位 $(k_i; n_x, n_y, n_z)$ と準位 $(k_j; n'_x, n'_y, n'_z)$ 間の交換積分は、

$$\begin{aligned}
& \langle \psi_{k_i}^{n_x, n_y, n_z}(\mathbf{r}_1) \psi_{k_j}^{n'_x, n'_y, n'_z}(\mathbf{r}_2) | \frac{e^2}{4\pi\epsilon |\mathbf{r}_1 - \mathbf{r}_2|} | \psi_{k_j}^{n'_x, n'_y, n'_z}(\mathbf{r}_1) \psi_{k_i}^{n_x, n_y, n_z}(\mathbf{r}_2) \rangle \\
&= \int \int d\mathbf{r}_1 d\mathbf{r}_2 \psi_{k_i}^{n_x, n_y, n_z*}(\mathbf{r}_1) \psi_{k_j}^{n'_x, n'_y, n'_z*}(\mathbf{r}_2) \frac{e^2}{4\pi\epsilon |\mathbf{r}_1 - \mathbf{r}_2|} \psi_{k_j}^{n'_x, n'_y, n'_z}(\mathbf{r}_1) \psi_{k_i}^{n_x, n_y, n_z}(\mathbf{r}_2) \\
&= \int \int d\mathbf{r}_1 d\mathbf{r}_2 e^{i(\mathbf{k}_j - \mathbf{k}_i) \cdot \mathbf{r}_1} e^{i(\mathbf{k}_i - \mathbf{k}_j) \cdot \mathbf{r}_2} \frac{e^2}{4\pi\epsilon |\mathbf{r}_1 - \mathbf{r}_2|} \\
&\quad \times F_{k_i}^{n_x, n_y, n_z*}(\mathbf{r}_1) F_{k_j}^{n'_x, n'_y, n'_z*}(\mathbf{r}_2) F_{k_j}^{n'_x, n'_y, n'_z}(\mathbf{r}_1) F_{k_i}^{n_x, n_y, n_z}(\mathbf{r}_2) u_{k_i}^*(\mathbf{r}_1) u_{k_j}^*(\mathbf{r}_2) u_{k_j}(\mathbf{r}_1) u_{k_i}(\mathbf{r}_2),
\end{aligned} \tag{A.11}$$

であるが、2.3.1項に述べたように、異なる谷間では無視できるほど小さいとした。そこで、ここでは同じ谷の準位間 ($k_i = k_j$) の交換積分、

$$\begin{aligned}
& \langle \psi_{k_i}^{n_x, n_y, n_z}(\mathbf{r}_1) \psi_{k_i}^{n'_x, n'_y, n'_z}(\mathbf{r}_2) | \frac{e^2}{4\pi\epsilon |\mathbf{r}_1 - \mathbf{r}_2|} | \psi_{k_i}^{n'_x, n'_y, n'_z}(\mathbf{r}_1) \psi_{k_i}^{n_x, n_y, n_z}(\mathbf{r}_2) \rangle \\
&= \int \int d\mathbf{r}_1 d\mathbf{r}_2 F_{k_i}^{n_x, n_y, n_z*}(\mathbf{r}_1) F_{k_i}^{n'_x, n'_y, n'_z*}(\mathbf{r}_2) \frac{e^2}{4\pi\epsilon |\mathbf{r}_1 - \mathbf{r}_2|} F_{k_i}^{n'_x, n'_y, n'_z}(\mathbf{r}_1) F_{k_i}^{n_x, n_y, n_z}(\mathbf{r}_2),
\end{aligned} \tag{A.12}$$

についてのみ考える。これらの交換積分は、クーロン積分と同様の方法で計算可能である。以下に $\pm k_z$ の谷の準位間の交換積分について、結果の例を示す。

- 基底準位-励起準位間

$(\pm k_z; 0, 0, 0) - (\pm k_z; 1, 0, 0)$ 準位間

$$\frac{e^2}{4\pi^{\frac{5}{2}}\epsilon} \left(\frac{a_{zx}}{2\hbar} \frac{a_{zy}}{2\hbar} \frac{a_{zz}}{2\hbar} \right)^{\frac{1}{2}} \left[\frac{1}{2} F \left(\frac{a_{zx}}{2\hbar}, \frac{a_{zy}}{2\hbar}, \frac{a_{zz}}{2\hbar} \right) - \left(\frac{a_{zx}}{2\hbar} \right) H^x \left(\frac{a_{zx}}{2\hbar}, \frac{a_{zy}}{2\hbar}, \frac{a_{zz}}{2\hbar} \right) \right]$$

- 励起準位-励起準位間

$(\pm k_z; 1, 0, 0) - (\pm k_z; 0, 1, 0)$ 準位間

$$\begin{aligned}
& \frac{e^2}{4\pi^{\frac{5}{2}}\epsilon} \left(\frac{a_{zx}}{2\hbar} \frac{a_{zy}}{2\hbar} \frac{a_{zz}}{2\hbar} \right)^{\frac{1}{2}} \left[\frac{1}{4} F \left(\frac{a_{zx}}{2\hbar}, \frac{a_{zy}}{2\hbar}, \frac{a_{zz}}{2\hbar} \right) - \frac{1}{2} \left(\frac{a_{zx}}{2\hbar} \right) H^x \left(\frac{a_{zx}}{2\hbar}, \frac{a_{zy}}{2\hbar}, \frac{a_{zz}}{2\hbar} \right) \right. \\
& \quad \left. - \frac{1}{2} \left(\frac{a_{zy}}{2\hbar} \right) H^y \left(\frac{a_{zx}}{2\hbar}, \frac{a_{zy}}{2\hbar}, \frac{a_{zz}}{2\hbar} \right) + \left(\frac{a_{zx}}{2\hbar} \right) \left(\frac{a_{zy}}{2\hbar} \right) I^{xy} \left(\frac{a_{zx}}{2\hbar}, \frac{a_{zy}}{2\hbar}, \frac{a_{zz}}{2\hbar} \right) \right]
\end{aligned}$$

A.4 異方的な閉じ込めの場合の計算

等方的な閉じ込めポテンシャルの代わりに

$$\begin{aligned} V(x, y, z) &= \frac{1}{2} \left[K' \left(\frac{x+y}{\sqrt{2}} \right)^2 + K \left(\frac{-x+y}{\sqrt{2}} \right)^2 + Kz^2 \right] \\ &= \frac{1}{2} (K'X^2 + KY^2 + Kz^2), \end{aligned} \quad (\text{A.13})$$

を $\pm k_z$ の谷に対する有効質量方程式に代入すると, 準位 $(\pm k_z; n_X, n_Y, n_z)$ に対する包絡関数は,

$$\begin{aligned} F_{\pm k_z}^{n_X, n_Y, n_z}(\mathbf{r}) &= \left(\frac{1}{2^{n_X+n_Y+n_z} n_X! n_Y! n_z!} \right)^{\frac{1}{2}} \left(\frac{1}{\pi \hbar} \right)^{\frac{3}{4}} (a_{zX} a_{zY} a_{zz})^{\frac{1}{4}} \\ &\quad \times H_{n_X} \left(\sqrt{\frac{a_{zX}}{\hbar}} X \right) H_{n_Y} \left(\sqrt{\frac{a_{zY}}{\hbar}} Y \right) H_{n_z} \left(\sqrt{\frac{a_{zz}}{\hbar}} z \right) \exp \left[-\frac{1}{2\hbar} (a_{zX} X^2 + a_{zY} Y^2 + a_{zz} z^2) \right], \end{aligned} \quad (\text{A.14})$$

で与えられる. ここで $H_n(q)$ はエルミート多項式. a_{zj} ($j = X, Y, z$) はそれぞれ,

$$\begin{aligned} a_{zX} &= (m_t^* K')^{1/2}, \\ a_{zY} &= (m_t^* K)^{1/2}, \\ a_{zz} &= (m_l^* K)^{1/2}, \end{aligned} \quad (\text{A.15})$$

となる. 2.4 節では, 2.3 節の結果を受けて, ΔE_{valley} が十分に大きいために電子は $\pm k_z$ 以外の谷の準位に入らないとし, $\pm k_z$ の谷の $(n_X, n_Y, n_z) = (0, 0, 0), (1, 0, 0), (0, 1, 0), (0, 0, 1), (2, 0, 0), (0, 2, 0), (0, 0, 2), (0, 1, 1), (1, 0, 1), (1, 1, 0), (3, 0, 0), (0, 3, 0), (0, 0, 3)$, の一電子準位を用いて, N 電子による全ての可能な配置を求め, 一電子準位のエネルギーと電子間相互作用を計算して基底状態の配置を決めた.

A.5 谷間結合がある場合の電子間相互作用の計算

2.5 節で述べた谷間結合がある場合の電子間相互作用の特徴,

1. $(a; n_x, n_y, n_z)$ と $(a; n'_x, n'_y, n'_z)$ の間のクーロン積分は, $(b; n_x, n_y, n_z)$ と $(b; n'_x, n'_y, n'_z)$, $(a; n_x, n_y, n_z)$ と $(b; n'_x, n'_y, n'_z)$ の間のそれと等しい.
2. 量子ドットのサイズが格子定数に比べて大きい時, $(a; n_x, n_y, n_z)$ と $(b; n'_x, n'_y, n'_z)$ の間の交換積分は一電子準位間隔やクーロン積分, 熱エネルギーと比べて無視できるほど小さい.

を導く際の計算について述べる．

まず準位 $(a; n_x, n_y, n_z)$ にある電子と，準位 $(a; n'_x, n'_y, n'_z)$ にある電子間のクーロン積分を考える．これらの準位は $(\pm k_z; n_x, n_y, n_z)$ および $(\pm k_z; n'_x, n'_y, n'_z)$ の線形結合で表されるので，

$$\begin{aligned} & \langle \psi_a^{n_x, n_y, n_z}(\mathbf{r}_1) \psi_a^{n'_x, n'_y, n'_z}(\mathbf{r}_2) | \frac{e^2}{4\pi\epsilon |\mathbf{r}_1 - \mathbf{r}_2|} | \psi_a^{n_x, n_y, n_z}(\mathbf{r}_1) \psi_a^{n'_x, n'_y, n'_z}(\mathbf{r}_2) \rangle \\ = & \frac{1}{4} \left[\langle \psi_{+k_z}^{n_x, n_y, n_z}(\mathbf{r}_1) \psi_{+k_z}^{n'_x, n'_y, n'_z}(\mathbf{r}_2) | \frac{e^2}{4\pi\epsilon |\mathbf{r}_1 - \mathbf{r}_2|} | \psi_{+k_z}^{n_x, n_y, n_z}(\mathbf{r}_1) \psi_{+k_z}^{n'_x, n'_y, n'_z}(\mathbf{r}_2) \rangle \right. \\ & - e^{-i\theta} \langle \psi_{-k_z}^{n_x, n_y, n_z}(\mathbf{r}_1) \psi_{+k_z}^{n'_x, n'_y, n'_z}(\mathbf{r}_2) | \frac{e^2}{4\pi\epsilon |\mathbf{r}_1 - \mathbf{r}_2|} | \psi_{+k_z}^{n_x, n_y, n_z}(\mathbf{r}_1) \psi_{+k_z}^{n'_x, n'_y, n'_z}(\mathbf{r}_2) \rangle \\ & - e^{-i\theta} \langle \psi_{+k_z}^{n_x, n_y, n_z}(\mathbf{r}_1) \psi_{-k_z}^{n'_x, n'_y, n'_z}(\mathbf{r}_2) | \frac{e^2}{4\pi\epsilon |\mathbf{r}_1 - \mathbf{r}_2|} | \psi_{+k_z}^{n_x, n_y, n_z}(\mathbf{r}_1) \psi_{+k_z}^{n'_x, n'_y, n'_z}(\mathbf{r}_2) \rangle \\ & \left. + \dots \right], \end{aligned}$$

と， $\psi_{\pm k_z}^{n_x, n_y, n_z}$ および $\psi_{\pm k_z}^{n'_x, n'_y, n'_z}$ を用いた計 16 項の積分の和の形で表すことができる．ところが右辺第 2 項，

$$\begin{aligned} & \langle \psi_{-k_z}^{n_x, n_y, n_z}(\mathbf{r}_1) \psi_{+k_z}^{n'_x, n'_y, n'_z}(\mathbf{r}_2) | \frac{e^2}{4\pi\epsilon |\mathbf{r}_1 - \mathbf{r}_2|} | \psi_{+k_z}^{n_x, n_y, n_z}(\mathbf{r}_1) \psi_{+k_z}^{n'_x, n'_y, n'_z}(\mathbf{r}_2) \rangle \\ = & \int \int d\mathbf{r}_1 d\mathbf{r}_2 e^{2i\mathbf{k}_z \cdot \mathbf{r}_1} \frac{e^2}{4\pi\epsilon |\mathbf{r}_1 - \mathbf{r}_2|} F_{-k_z}^{n_x, n_y, n_z*}(\mathbf{r}_1) F_{+k_z}^{n'_x, n'_y, n'_z*}(\mathbf{r}_2) \\ & \times F_{+k_z}^{n_x, n_y, n_z}(\mathbf{r}_1) F_{+k_z}^{n'_x, n'_y, n'_z}(\mathbf{r}_2) u_{-k_z}^*(\mathbf{r}_1) u_{+k_z}^*(\mathbf{r}_2) u_{+k_z}(\mathbf{r}_1) u_{+k_z}(\mathbf{r}_2), \end{aligned}$$

は速い振動因子を積分しているために，無視できるほど小さい．よってこの積分をゼロとする．他にも同じ理由で消える項があり，結局，問題としているクーロン積分は

$$\begin{aligned} & \langle \psi_a^{n_x, n_y, n_z}(\mathbf{r}_1) \psi_a^{n'_x, n'_y, n'_z}(\mathbf{r}_2) | \frac{e^2}{4\pi\epsilon |\mathbf{r}_1 - \mathbf{r}_2|} | \psi_a^{n_x, n_y, n_z}(\mathbf{r}_1) \psi_a^{n'_x, n'_y, n'_z}(\mathbf{r}_2) \rangle \\ = & \frac{1}{4} \left[\langle \psi_{+k_z}^{n_x, n_y, n_z}(\mathbf{r}_1) \psi_{+k_z}^{n'_x, n'_y, n'_z}(\mathbf{r}_2) | \frac{e^2}{4\pi\epsilon |\mathbf{r}_1 - \mathbf{r}_2|} | \psi_{+k_z}^{n_x, n_y, n_z}(\mathbf{r}_1) \psi_{+k_z}^{n'_x, n'_y, n'_z}(\mathbf{r}_2) \rangle \right. \\ & + \langle \psi_{+k_z}^{n_x, n_y, n_z}(\mathbf{r}_1) \psi_{-k_z}^{n'_x, n'_y, n'_z}(\mathbf{r}_2) | \frac{e^2}{4\pi\epsilon |\mathbf{r}_1 - \mathbf{r}_2|} | \psi_{+k_z}^{n_x, n_y, n_z}(\mathbf{r}_1) \psi_{-k_z}^{n'_x, n'_y, n'_z}(\mathbf{r}_2) \rangle \\ & + \langle \psi_{-k_z}^{n_x, n_y, n_z}(\mathbf{r}_1) \psi_{+k_z}^{n'_x, n'_y, n'_z}(\mathbf{r}_2) | \frac{e^2}{4\pi\epsilon |\mathbf{r}_1 - \mathbf{r}_2|} | \psi_{-k_z}^{n_x, n_y, n_z}(\mathbf{r}_1) \psi_{+k_z}^{n'_x, n'_y, n'_z}(\mathbf{r}_2) \rangle \\ & \left. + \langle \psi_{-k_z}^{n_x, n_y, n_z}(\mathbf{r}_1) \psi_{-k_z}^{n'_x, n'_y, n'_z}(\mathbf{r}_2) | \frac{e^2}{4\pi\epsilon |\mathbf{r}_1 - \mathbf{r}_2|} | \psi_{-k_z}^{n_x, n_y, n_z}(\mathbf{r}_1) \psi_{-k_z}^{n'_x, n'_y, n'_z}(\mathbf{r}_2) \rangle \right], \end{aligned}$$

となる．ここで 2.3.1 項で述べたクーロン相互作用に関する特徴を考慮すると，これらの項は全て等しいので，

$$\langle \psi_a^{n_x, n_y, n_z}(\mathbf{r}_1) \psi_a^{n'_x, n'_y, n'_z}(\mathbf{r}_2) | \frac{e^2}{4\pi\epsilon |\mathbf{r}_1 - \mathbf{r}_2|} | \psi_a^{n_x, n_y, n_z}(\mathbf{r}_1) \psi_a^{n'_x, n'_y, n'_z}(\mathbf{r}_2) \rangle$$

$$= \langle \psi_{+k_z}^{n_x, n_y, n_z}(\mathbf{r}_1) \psi_{+k_z}^{n'_x, n'_y, n'_z}(\mathbf{r}_2) | \frac{e^2}{4\pi\epsilon |\mathbf{r}_1 - \mathbf{r}_2|} | \psi_{+k_z}^{n_x, n_y, n_z}(\mathbf{r}_1) \psi_{+k_z}^{n'_x, n'_y, n'_z}(\mathbf{r}_2) \rangle,$$

となる．同様の計算を行うことにより，

$$\begin{aligned} & \langle \psi_a^{n_x, n_y, n_z}(\mathbf{r}_1) \psi_b^{n'_x, n'_y, n'_z}(\mathbf{r}_2) | \frac{e^2}{4\pi\epsilon |\mathbf{r}_1 - \mathbf{r}_2|} | \psi_a^{n_x, n_y, n_z}(\mathbf{r}_1) \psi_b^{n'_x, n'_y, n'_z}(\mathbf{r}_2) \rangle \\ &= \langle \psi_b^{n_x, n_y, n_z}(\mathbf{r}_1) \psi_b^{n'_x, n'_y, n'_z}(\mathbf{r}_2) | \frac{e^2}{4\pi\epsilon |\mathbf{r}_1 - \mathbf{r}_2|} | \psi_b^{n_x, n_y, n_z}(\mathbf{r}_1) \psi_b^{n'_x, n'_y, n'_z}(\mathbf{r}_2) \rangle \\ &= \langle \psi_{+k_z}^{n_x, n_y, n_z}(\mathbf{r}_1) \psi_{+k_z}^{n'_x, n'_y, n'_z}(\mathbf{r}_2) | \frac{e^2}{4\pi\epsilon |\mathbf{r}_1 - \mathbf{r}_2|} | \psi_{+k_z}^{n_x, n_y, n_z}(\mathbf{r}_1) \psi_{+k_z}^{n'_x, n'_y, n'_z}(\mathbf{r}_2) \rangle, \end{aligned}$$

が得られ，1を示すことができる．

準位 $(a; n_x, n_y, n_z)$ にある電子と，準位 $(b; n'_x, n'_y, n'_z)$ にある電子間の交換積分についても同様に計算することができる．速い振動因子を積分しているために消える項を除いて，結局，残るのは

$$\begin{aligned} & \langle \psi_a^{n_x, n_y, n_z}(\mathbf{r}_1) \psi_b^{n'_x, n'_y, n'_z}(\mathbf{r}_2) | \frac{e^2}{4\pi\epsilon |\mathbf{r}_1 - \mathbf{r}_2|} | \psi_a^{n_x, n_y, n_z}(\mathbf{r}_1) \psi_b^{n'_x, n'_y, n'_z}(\mathbf{r}_2) \rangle \\ &= \frac{1}{4} \left[\langle \psi_{+k_z}^{n_x, n_y, n_z}(\mathbf{r}_1) \psi_{+k_z}^{n'_x, n'_y, n'_z}(\mathbf{r}_2) | \frac{e^2}{4\pi\epsilon |\mathbf{r}_1 - \mathbf{r}_2|} | \psi_{+k_z}^{n'_x, n'_y, n'_z}(\mathbf{r}_1) \psi_{+k_z}^{n_x, n_y, n_z}(\mathbf{r}_2) \rangle \right. \\ & \quad - \langle \psi_{+k_z}^{n_x, n_y, n_z}(\mathbf{r}_1) \psi_{-k_z}^{n'_x, n'_y, n'_z}(\mathbf{r}_2) | \frac{e^2}{4\pi\epsilon |\mathbf{r}_1 - \mathbf{r}_2|} | \psi_{+k_z}^{n'_x, n'_y, n'_z}(\mathbf{r}_1) \psi_{-k_z}^{n_x, n_y, n_z}(\mathbf{r}_2) \rangle \\ & \quad - \langle \psi_{-k_z}^{n_x, n_y, n_z}(\mathbf{r}_1) \psi_{+k_z}^{n'_x, n'_y, n'_z}(\mathbf{r}_2) | \frac{e^2}{4\pi\epsilon |\mathbf{r}_1 - \mathbf{r}_2|} | \psi_{-k_z}^{n'_x, n'_y, n'_z}(\mathbf{r}_1) \psi_{+k_z}^{n_x, n_y, n_z}(\mathbf{r}_2) \rangle \\ & \quad \left. + \langle \psi_{-k_z}^{n_x, n_y, n_z}(\mathbf{r}_1) \psi_{-k_z}^{n'_x, n'_y, n'_z}(\mathbf{r}_2) | \frac{e^2}{4\pi\epsilon |\mathbf{r}_1 - \mathbf{r}_2|} | \psi_{-k_z}^{n'_x, n'_y, n'_z}(\mathbf{r}_1) \psi_{-k_z}^{n_x, n_y, n_z}(\mathbf{r}_2) \rangle \right], \end{aligned}$$

となる．ところが包絡関数は $\pm k_z$ の谷で同じであることを考慮すれば，これらの項は，

$$\begin{aligned} & \langle \psi_{+k_z}^{n_x, n_y, n_z}(\mathbf{r}_1) \psi_{+k_z}^{n'_x, n'_y, n'_z}(\mathbf{r}_2) | \frac{e^2}{4\pi\epsilon |\mathbf{r}_1 - \mathbf{r}_2|} | \psi_{+k_z}^{n'_x, n'_y, n'_z}(\mathbf{r}_1) \psi_{+k_z}^{n_x, n_y, n_z}(\mathbf{r}_2) \rangle \\ &= \langle \psi_{+k_z}^{n_x, n_y, n_z}(\mathbf{r}_1) \psi_{-k_z}^{n'_x, n'_y, n'_z}(\mathbf{r}_2) | \frac{e^2}{4\pi\epsilon |\mathbf{r}_1 - \mathbf{r}_2|} | \psi_{+k_z}^{n'_x, n'_y, n'_z}(\mathbf{r}_1) \psi_{-k_z}^{n_x, n_y, n_z}(\mathbf{r}_2) \rangle \\ &= \langle \psi_{-k_z}^{n_x, n_y, n_z}(\mathbf{r}_1) \psi_{+k_z}^{n'_x, n'_y, n'_z}(\mathbf{r}_2) | \frac{e^2}{4\pi\epsilon |\mathbf{r}_1 - \mathbf{r}_2|} | \psi_{-k_z}^{n'_x, n'_y, n'_z}(\mathbf{r}_1) \psi_{+k_z}^{n_x, n_y, n_z}(\mathbf{r}_2) \rangle \\ &= \langle \psi_{-k_z}^{n_x, n_y, n_z}(\mathbf{r}_1) \psi_{-k_z}^{n'_x, n'_y, n'_z}(\mathbf{r}_2) | \frac{e^2}{4\pi\epsilon |\mathbf{r}_1 - \mathbf{r}_2|} | \psi_{-k_z}^{n'_x, n'_y, n'_z}(\mathbf{r}_1) \psi_{-k_z}^{n_x, n_y, n_z}(\mathbf{r}_2) \rangle \\ &= \iint d\mathbf{r}_1 d\mathbf{r}_2 F_{+k_z}^{n_x, n_y, n_z*}(\mathbf{r}_1) F_{+k_z}^{n'_x, n'_y, n'_z*}(\mathbf{r}_2) \frac{e^2}{4\pi\epsilon |\mathbf{r}_1 - \mathbf{r}_2|} F_{+k_z}^{n'_x, n'_y, n'_z}(\mathbf{r}_1) F_{+k_z}^{n_x, n_y, n_z}(\mathbf{r}_2), \end{aligned}$$

と等しいために，互いに打ち消しあい，交換積分はゼロとなる．よって2が示せた．

付録B 異なる谷の電子間の交換積分の評価

2.3.1項で、ドットサイズ l が格子定数 a に比べて十分に大きい時、異なる谷間の交換積分は非常に小さい値になるため、これを無視すると述べた。ここでは、交換積分とクーロン積分の比を示すことにより、この仮定の妥当性を示す。

異なる谷の準位 $(+k_z; n)$ と $(-k_z; n')$ にある電子間のクーロン積分 I_{coul} は

$$\begin{aligned} I_{\text{coul}} &= \int \int d\mathbf{r}_1 d\mathbf{r}_2 |\psi_{+k_z}^n(\mathbf{r}_1)|^2 \frac{e^2}{4\pi\epsilon |\mathbf{r}_1 - \mathbf{r}_2|} |\psi_{-k_z}^{n'}(\mathbf{r}_2)|^2 \\ &= \int \int d\mathbf{r}_1 d\mathbf{r}_2 |F_{+k_z}^n(\mathbf{r}_1) u_{+k_z}(\mathbf{r}_1)|^2 \frac{e^2}{4\pi\epsilon |\mathbf{r}_1 - \mathbf{r}_2|} |F_{-k_z}^{n'}(\mathbf{r}_2) u_{-k_z}(\mathbf{r}_2)|^2, \end{aligned}$$

である。ここで、包絡関数および $1/|\mathbf{r}_1 - \mathbf{r}_2|$ は格子間隔程度の距離でほとんど変化しない緩やかなものであるとして、単位胞での積分、

$$\frac{1}{\Omega} \int_{\Omega} d\mathbf{r} |u_{\pm k_z}(\mathbf{r})|^2 = 1, \quad (\text{B.1})$$

を実行すると、

$$I_{\text{coul}} = \int \int d\mathbf{r}_1 d\mathbf{r}_2 |F_{+k_z}^n(\mathbf{r}_1)|^2 \frac{e^2}{4\pi\epsilon |\mathbf{r}_1 - \mathbf{r}_2|} |F_{-k_z}^{n'}(\mathbf{r}_2)|^2. \quad (\text{B.2})$$

一方、交換積分は

$$\begin{aligned} &\int \int d\mathbf{r}_1 d\mathbf{r}_2 \psi_{+k_z}^n(\mathbf{r}_1) \psi_{-k_z}^{n'}(\mathbf{r}_2) \frac{e^2}{4\pi\epsilon |\mathbf{r}_1 - \mathbf{r}_2|} \psi_{-k_z}^{n'}(\mathbf{r}_1) \psi_{+k_z}^n(\mathbf{r}_2) \\ &= \int \int d\mathbf{r}_1 d\mathbf{r}_2 \left[e^{+2i\mathbf{k}_z \cdot \mathbf{r}_1} F_{+k_z}^n(\mathbf{r}_1) F_{-k_z}^{n'}(\mathbf{r}_1) u_{+k_z}(\mathbf{r}_1) u_{-k_z}^*(\mathbf{r}_1) \right]^* \\ &\quad \times \frac{e^2}{4\pi\epsilon |\mathbf{r}_1 - \mathbf{r}_2|} \left[e^{+2i\mathbf{k}_z \cdot \mathbf{r}_2} F_{+k_z}^n(\mathbf{r}_2) F_{-k_z}^{n'}(\mathbf{r}_2) u_{+k_z}(\mathbf{r}_2) u_{-k_z}^*(\mathbf{r}_2) \right], \end{aligned}$$

となるが、 $u_{\pm k_z}(\mathbf{r})$ がブラベ格子の周期を持つ周期関数なので逆格子ベクトル \mathbf{K}_n を用いて

$$u_{+k_z}(\mathbf{r}) u_{-k_z}^*(\mathbf{r}) = \sum_n C_n e^{i\mathbf{K}_n \cdot \mathbf{r}}, \quad (\text{B.3})$$

と展開できる．以下では式 (B.3) 中の C_n の項のみを取り出して議論する． $K_n + 2k_z = k$ とおくと，

$$I_{\text{exch}} = \int \int d\mathbf{r}_1 d\mathbf{r}_2 \left[e^{i\mathbf{k}\cdot\mathbf{r}_1} F_{+k_z}^n(\mathbf{r}_1) F_{-k_z}^{n'*}(\mathbf{r}_1) \right]^* \times \frac{e^2}{4\pi\epsilon |\mathbf{r}_1 - \mathbf{r}_2|} \left[e^{i\mathbf{k}\cdot\mathbf{r}_2} F_{+k_z}^n(\mathbf{r}_2) F_{-k_z}^{n'*}(\mathbf{r}_2) \right]. \quad (\text{B.4})$$

ここで $|\mathbf{k}| = k$ は $2\pi/a$ (a は格子定数) と同程度以上である．

ここで n, n' ともに基底準位の場合を考える．簡単のため，式 (2.5) の代わりに等方的なガウス関数，

$$F_{\pm k_z}^g(\mathbf{r}) = (\sqrt{\pi}l)^{-3/2} \exp\left[-\frac{1}{2}\left(\frac{r}{l}\right)^2\right], \quad (\text{B.5})$$

を仮定する．ここで l はドットサイズである．これを用いて，異なる谷の基底準位にある電子間のクーロン積分 I_{coul} [式 (B.2)] は

$$I_{\text{coul}} = \frac{1}{(2\pi)^{3/2}} \frac{e^2}{\epsilon l},$$

交換積分 I_{exch} [式 (B.4)] は

$$I_{\text{exch}} = \frac{1}{(2\pi)^{3/2}} \frac{e^2}{\epsilon l} \frac{\sqrt{2}}{kl} \times K\left(\frac{kl}{\sqrt{2}}\right).$$

これらの比をとると

$$\frac{I_{\text{exch}}}{I_{\text{coul}}} = \frac{\sqrt{2}}{kl} \times K\left(\frac{kl}{\sqrt{2}}\right), \quad (\text{B.6})$$

となる．ここで

$$K(x) = e^{-x^2} \int_0^x e^{t^2} dt, \quad (\text{B.7})$$

は $x \geq 1$ で 1 以下の減少関数で， x が十分に大きいところでの漸近形は $1/2x$ である．ドットサイズ l が格子定数 a に比べて大きい，すなわち kl が大きい時，式 (B.6) の右辺は $1/(kl)^2$ で小さくなる．図 B.1 に kl の関数としての $I_{\text{exch}}/I_{\text{coul}}$ を実線で示す．合わせて， $kl \gg 1$ の時の漸近形， $1/(kl)^2$ ，を点線で示した．

次に基底準位と第一励起準位を考える．まず，比較のため，GaAs のような谷を 1 つしか持たない量子ドットに対して同様の計算を行う．谷が Γ 点に 1 つしかない場合の波動関数は包絡関数 $F^n(\mathbf{r})$ を用いて

$$\psi^n(\mathbf{r}) = F^n(\mathbf{r}) u_0(\mathbf{r}), \quad (\text{B.8})$$

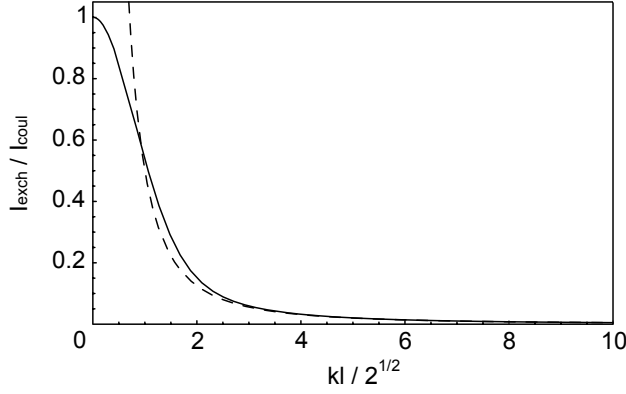


図 B.1: 異なる谷の基底準位の電子間の交換積分とクーロン積分の大きさの比, $I_{\text{exch}}/I_{\text{coul}}$ (実線). ここで k は電子の波動関数が格子間隔程度の距離で示す振動成分を表す波数で $2\pi/a$ (a は格子定数) と同程度以上, l はドットサイズに相当する. 点線は kl が大きい場合の漸近形, $1/2(\frac{kl}{\sqrt{2}})^2$.

と書ける. ここで $u_0(\mathbf{r})$ はブラベ格子の周期を持つ周期関数である. 準位 n と n' にある電子間のクーロン積分は,

$$\begin{aligned} I_{\text{coul}} &= \int \int d\mathbf{r}_1 d\mathbf{r}_2 |\psi^n(\mathbf{r}_1)|^2 \frac{e^2}{4\pi\epsilon |\mathbf{r}_1 - \mathbf{r}_2|} |\psi^{n'}(\mathbf{r}_2)|^2 \\ &= \int \int d\mathbf{r}_1 d\mathbf{r}_2 |F^n(\mathbf{r}_1) u_0(\mathbf{r}_1)|^2 \frac{e^2}{4\pi\epsilon |\mathbf{r}_1 - \mathbf{r}_2|} |F^{n'}(\mathbf{r}_2) u_0(\mathbf{r}_2)|^2, \end{aligned}$$

と書けるが, 単位胞での積分,

$$\frac{1}{\Omega} \int_{\Omega} d\mathbf{r} |u_0(\mathbf{r})|^2 = 1, \quad (\text{B.9})$$

を実行すると,

$$I_{\text{coul}} = \int \int d\mathbf{r}_1 d\mathbf{r}_2 |F^n(\mathbf{r}_1)|^2 \frac{e^2}{4\pi\epsilon |\mathbf{r}_1 - \mathbf{r}_2|} |F^{n'}(\mathbf{r}_2)|^2, \quad (\text{B.10})$$

となる. 一方, 交換積分は

$$\begin{aligned} I_{\text{exch}} &= \int \int d\mathbf{r}_1 d\mathbf{r}_2 \psi^{n*}(\mathbf{r}_1) \psi^{n'*}(\mathbf{r}_2) \frac{e^2}{4\pi\epsilon |\mathbf{r}_1 - \mathbf{r}_2|} \psi^{n'}(\mathbf{r}_1) \psi^n(\mathbf{r}_2) \\ &= \int \int d\mathbf{r}_1 d\mathbf{r}_2 [F^n(\mathbf{r}_1) F^{n'*}(\mathbf{r}_1)]^* |u_0(\mathbf{r}_1)|^2 \\ &\quad \times \frac{e^2}{4\pi\epsilon |\mathbf{r}_1 - \mathbf{r}_2|} [F^n(\mathbf{r}_2) F^{n'*}(\mathbf{r}_2)] |u_0(\mathbf{r}_2)|^2, \end{aligned}$$

であるが，クーロン積分と同様に単位胞での積分を行うと，

$$I_{\text{exch}} = \int \int d\mathbf{r}_1 d\mathbf{r}_2 F^{n*}(\mathbf{r}_1) F^{n'}(\mathbf{r}_1) \frac{e^2}{4\pi\epsilon |\mathbf{r}_1 - \mathbf{r}_2|} F^n(\mathbf{r}_2) F^{n'*}(\mathbf{r}_2), \quad (\text{B.11})$$

となる．ここで基底準位と第一励起準位の包絡関数をそれぞれ

$$\begin{aligned} F^g(\mathbf{r}) &= (\sqrt{\pi}l)^{-3/2} \exp\left[-\frac{1}{2}\left(\frac{r}{l}\right)^2\right], \\ F^e(\mathbf{r}) &= (\sqrt{\pi}l)^{-3/2} \frac{z}{l} \exp\left[-\frac{1}{2}\left(\frac{r}{l}\right)^2\right], \end{aligned} \quad (\text{B.12})$$

として，基底準位-励起準位間の交換積分 I_{exch} とクーロン積分 I_{coul} の計算を行うと，その比はドットサイズによらず

$$\frac{I_{\text{exch}}}{I_{\text{coul}}} = \frac{1}{2}, \quad (\text{B.13})$$

となる．

次に，Si に対して同じ包絡関数を用い，交換積分 I_{exch} [式 (B.2)] とクーロン積分 I_{coul} [式 (B.4)] の計算を行う．まず， z と k が平行の場合を考える．基底準位-励起準位間の交換積分とクーロン積分の計算を行うと，

$$\frac{I_{\text{exch}}}{I_{\text{coul}}} = \frac{3}{8} \left\{ - \left[1 + \left(\frac{\sqrt{2}}{kl} \right)^2 \right] + \left[2 \left(\frac{kl}{\sqrt{2}} \right) + 3 \left(\frac{\sqrt{2}}{kl} \right) + \left(\frac{\sqrt{2}}{kl} \right)^3 \right] K \left(\frac{kl}{\sqrt{2}} \right) \right\}, \quad (\text{B.14})$$

となり， kl が大きいところでは $I_{\text{exch}}/I_{\text{coul}} \sim 3/8(kl)^2$ となる． z が k に垂直な場合は，

$$\frac{I_{\text{exch}}}{I_{\text{coul}}} = \frac{3}{16} \left\{ \left(\frac{\sqrt{2}}{kl} \right)^2 + \left[2 \left(\frac{\sqrt{2}}{kl} \right) - \left(\frac{\sqrt{2}}{kl} \right)^3 \right] K \left(\frac{kl}{\sqrt{2}} \right) \right\}, \quad (\text{B.15})$$

となり， kl が大きいところでは $I_{\text{exch}}/I_{\text{coul}} \sim 3/4(kl)^2$ となる．いずれの場合もこれらの比は kl が大きいところで，基底準位-基底準位間と同様， $1/(kl)^2$ に比例する．従って，GaAs の場合 [式 (B.13)] に比べ，十分に小さくなるのが分かる．図 B.2 に，それぞれの場合について， kl の関数としての $I_{\text{exch}}/I_{\text{coul}}$ を実線で示す．合わせて， $kl \gg 1$ の時の漸近形を点線で示した．

以上より， kl が十分に大きい，すなわちドットサイズ l が格子定数 a に比べて十分に大きければ，異なる谷間の交換積分は非常に小さい値になり，無視することが出来る．

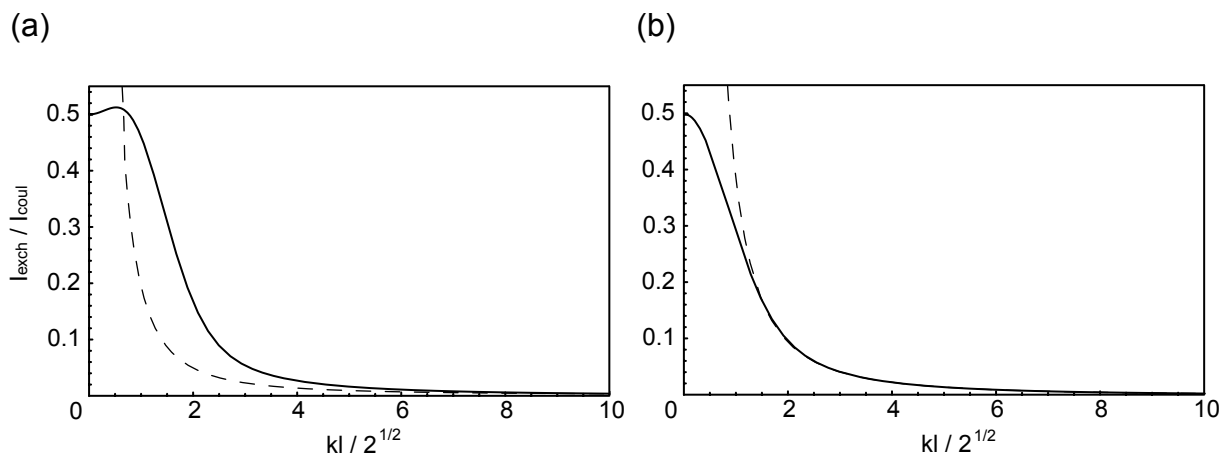


図 B.2: 異なる谷の基底および励起準位の電子間の交換積分とクーロン積分の大きさの比, $I_{\text{exch}}/I_{\text{coul}}$ (実線). ここで k は電子の波動関数が格子間隔程度の距離で示す振動成分を表す波数で $2\pi/a$ (a は格子定数) と同程度以上, l はドットサイズに相当する. 振動の方向 k が第一励起準位の励起している方向と (a) 平行な場合, (b) 垂直な場合. 点線は kl が大きい場合の漸近形, (a) $3/16(\frac{kl}{\sqrt{2}})^2$, (b) $3/8(\frac{kl}{\sqrt{2}})^2$.

付録C シリコン二重量子ドットにおけるトンネル結合の位相

3章のシリコン二重量子ドットのモデルでは，谷の縮退を考慮してドットLの一電子準位 $|L, \pm k_z\rangle$ とドットRの一電子準位 $|R, \pm k_z\rangle$ を考えた．これらの準位間のトンネル結合には同じ谷間のものと異なる谷間のものがあるが，次に示すように，これらが全て正実数となるように， $|L/R, \pm k_z\rangle$ の位相を選ぶことができる．

$|L, \pm k_z\rangle$ と $|R, \pm k_z\rangle$ の状態において，磁場が無ければ，包絡関数 F_L と F_R は実である． $u_{\pm k_z}^*(\mathbf{r}) = u_{\mp k_z}(\mathbf{r})$ の関係を用いて，例えば同じ谷間である $|L, +k_z\rangle$ と $|R, +k_z\rangle$ のトンネル結合を考えると，

$$\begin{aligned} \langle L, +k_z | V_C | R, +k_z \rangle &= e^{-2ik_z \cdot \mathbf{d}} \int d\mathbf{r} F_L(\mathbf{r} + \mathbf{d}) V_C(\mathbf{r}) F_R(\mathbf{r} - \mathbf{d}) \\ &\quad \times u_{+k_z}^*(\mathbf{r} + \mathbf{d}) u_{+k_z}(\mathbf{r} - \mathbf{d}) \\ &= e^{-2ik_z \cdot \mathbf{d}} \int d\mathbf{r} F_R(\mathbf{r} - \mathbf{d}) V_C(\mathbf{r}) F_L(\mathbf{r} + \mathbf{d}) \\ &\quad \times u_{-k_z}^*(\mathbf{r} - \mathbf{d}) u_{-k_z}(\mathbf{r} + \mathbf{d}) \\ &= \langle R, -k_z | V_C | L, -k_z \rangle, \end{aligned}$$

となることが分かる．同様にして， $\langle L, -k_z | V_C | R, -k_z \rangle = \langle R, +k_z | V_C | L, +k_z \rangle$ ．

これらの関係から，同じ谷間のトンネル結合は次のように表せる．

$$\begin{aligned} \langle L, +k_z | V_C | R, +k_z \rangle &= \langle R, -k_z | V_C | L, -k_z \rangle \\ &= -te^{i\phi}, \\ \langle L, -k_z | V_C | R, -k_z \rangle &= \langle R, +k_z | V_C | L, +k_z \rangle \\ &= -te^{-i\phi}. \end{aligned}$$

ここで t は正実数で， $e^{\pm i\phi}$ は位相因子である．同様に，異なる谷間のトンネル結合は，

$$\begin{aligned} \langle L, +k_z | V_C | R, -k_z \rangle &= \langle R, -k_z | V_C | L, +k_z \rangle \\ &= -t'e^{i\theta}, \\ \langle L, -k_z | V_C | R, +k_z \rangle &= \langle R, +k_z | V_C | L, -k_z \rangle \\ &= -t'e^{-i\theta}. \end{aligned}$$

と表せる． $|L, \pm k_z\rangle$ と $|R, \pm k_z\rangle$ の代わりに，新しい状態をそれぞれ $e^{\pm i(\phi+\theta)/2} |L, \pm k_z\rangle$ および $e^{\pm i(\phi-\theta)/2} |R, \pm k_z\rangle$ にとれば，全てのトンネル結合は正実数になる．

付録D 経験的 $spds^*$ tight-binding モデルについて

4章では、経験的 $spds^*$ tight-binding モデル [38] を用いた計算を行ったが、これについて述べておく。このモデルでは飛び移り積分 (原子軌道を基底に用いたハミルトニアン の非対角行列要素) のうち、最近接原子の原子軌道間のもののみを考慮する。その際に、本来はポテンシャルの位置および問題とする2つの原子の位置が全て異なる三中心積分である飛び移り積分を、ポテンシャルを原子上に中心がある球形ポテンシャルの重ね合わせとして捉え、その球形ポテンシャルの中心が一方の原子にある二中心積分のみで近似する。この時、原子軌道を2つの原子を結ぶ軸まわりの回転対称性で分類すると、隣り合う原子の軌道間 (球面調和関数間) の飛び移り積分のうち、対称性の同じものしか残らない。それらの飛び移り積分の値が表 D.1 に与えてある。表記は文献 [44] に従っている。実際は球面

表 D.1: Si に対する経験的 $spds^*$ tight-binding パラメータ。文献 [38] より抜粋。低温を想定した値で、単位は eV。エネルギーの原点は価電子バンドの上端に取ってある。

Si			
E_s	-2.0196		
E_p	4.5448		
E_d	14.1836		
E_{s^*}	19.6748		
$ss\sigma$	-1.9413	$pp\sigma$	4.1068
$s^*s^*\sigma$	-3.3081	$pp\pi$	-1.5934
$s^*s\sigma$	-1.6933		
		$pd\sigma$	-2.1073
$sp\sigma$	2.7836	$pd\pi$	1.9977
$s^*p\sigma$	2.8428		
$sd\sigma$	-2.7998	$dd\sigma$	-1.2327
$s^*d\sigma$	-0.7003	$dd\pi$	2.5145
		$dd\delta$	-2.4734

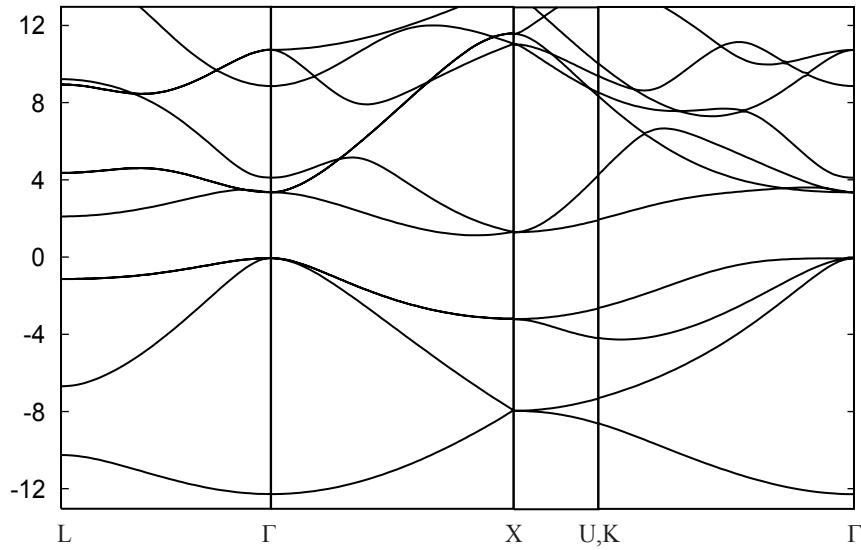


図 D.1: 経験的 $spds^*$ tight-binding モデルを用いたバルク Si のバンド構造 .

調和関数そのものではなく，それらの線形結合で得られる実関数を用いることが多いが，それらの原子軌道間での飛び移り積分は表 D.1 で与えられている値から求めることができる .

sp^3 最近接原子間の飛び移り積分だけを考慮するような単純な tight-binding モデルでは伝導バンドの記述が悪いことが知られていて [46]，現在行われているモデルでは様々な改良がなされている . 主要な改良としては，用いる原子軌道を増やす [50]，最近接原子間だけではなく第二，第三近接原子間での飛び移り積分も考慮する [45]，などが挙げられる . 今回用いた $spds^*$ tight-binding モデルは原子軌道を増やすことで，価電子バンドから 2 番目に低い伝導バンドまで，その特徴を良く再現できるようになっている . 図 D.1 にこのモデルを用いた，バルクの Si のバンド構造を示す .

これらのパラメータの値は次のように決められた . まず，自由電子のバンド構造と原子軌道の対称性に群論を用い，自由電子のエネルギースペクトルが一致するように，空格子モデルに対する tight-binding パラメータを決める . これらのパラメータと原子エネルギーから始めて，第一原理計算から得られる参照値と得られるバンドエネルギーとの違いが少なくなるように数値的に調節して，パラメータが決定された . 得られた主要なエネルギー点における tight-binding および第一原理計算の結果，実験値の比較を表 D.2 に示す .

最後に水素終端のモデルで用いた，水素にまつわるパラメータについて述べる . 水素に関しては， s 軌道のみを考える . したがって水素の on-site エネルギー E_s と，水素-シリコン間の飛び移り積分として， $ss\sigma$ ， $sp\sigma$ ， $sd\sigma$ ， $ss^*\sigma$ が必要になる . 水素の E_s については，他の tight-binding モデルで水素のパラメータを決めたもの [45, 54, 55] があり，それらでの水素の E_s はシリコンの E_s と E_p の間の値であることから，今回用いたモデルにそれを当てはめ，その範囲に絞って，このパラメータが結果に与える影響を調べた . $E_s = 0.0000$

表 D.2: Si に対する経験的 $spds^*$ tight-binding モデル (TB), 実験値 (expt)[51, 52], および GW 近似での擬ポテンシャル計算 (PP)[53] で得られる, エネルギー点の比較. 文献 [38] より抜粋. 単位は eV, エネルギーの原点は価電子バンドの上端に取ってある. バンドの表現は, L 点における伝導バンドが単純群の記述で与えられているのを除いて, 二重群記述の表現に揃えてある.

	Si		
	TB	expt	PP
γ_{6v}^+	-12.24	-12.5	-12.04
$-\Delta_0$	-0.044	-0.044	0.0
γ_{6c}^-	4.15	4.15	3.83
γ_{7c}^-	3.36	3.35	3.39
γ_{8c}^-	3.41	3.35	3.39
X_{5v}	-3.15	-2.90	-2.98
X_{5c}	1.35	1.13	1.47
L_{6v}^-	-1.12	-1.2	-1.24
$L_{4,5v}^-$	-1.08	-1.2	-1.24
$L_{6c}^+(L_{1c}^+)$	2.14	2.40	2.26
$L_{6c}^+(L_{3c}^+)$	4.39	4.15	4.33

eV, 1.0000 eV, 2.0000 eV と変えて計算を行ったところ, 結果はほとんど変わらなかったため, 今回の計算では $E_s = 1.0000$ eV を用いた. H-Si 間の飛び移り積分のパラメータに関しては, 文献 [56] に見られるように, 水素の原子半径はシリコンの半径に比べ小さいことから, H-Si 間のボンドの長さは Si-Si 間のその 1/2 とし, d^{-2} 則 (例えば, 文献 [57] 参照.) を用いて Si-Si 間の 4 倍の値を用いた. 実際これらのパラメータの選び方は, 結果にあまり影響を与えない. これらのパラメータへの依存性を調べるため,

- Si-Si 間パラメータの 2, 10 倍の値を用いたもの
- Si-Si 間パラメータを, $ss\sigma$, $ss^*\sigma$ は 2 倍, $sp\sigma$ は 3 倍, $sd\sigma$ は 4 倍の値としたもの

などを計算したが, 得られる結果はほとんど変わらなかったことを述べておく.