

人工原子におけるフントの規則

(日大理工) 佐甲 徳栄

【序】 少数の電子をナノスケールの低次元ポテンシャル井戸に閉じこめた有限量子系は、人工原子または量子ドットと呼ばれ、新規な物性を持つ少数多体系として近年大きな注目を集めている。量子ドットにおいては、原子の場合と同様に、フントの規則を満たす電子配置を取ることも実験的に知られている [1]。通常の原子におけるフントの規則の起源については、1929 年の Slater の考察に基づく、「スピン多重度の大きい状態ほど電子間反発ポテンシャルによるエネルギー増加が小さくなる」ことが原因だとする、いわゆる伝統的な解釈が知られている [2]。一方、Davidson は量子化学計算によって、He 原子の 1 電子励起状態 $(nl)^1L$ および $(nl)^3L$ ($n = 2, 3, \dots; l = s, p, d, \dots; L = S, P, D, \dots$) について 1 電子演算子および 2 電子演算子の期待値を計算し、Slater の解釈とは逆に、スピン多重度が大きい 3 重項状態の方が 1 重項状態よりも電子間反発ポテンシャルのエネルギー寄与が大きいことを示している [3]。すなわち、3 重項状態の方が 1 重項状態よりも低いエネルギー値を持つのは、電子間反発ポテンシャルによるエネルギー増加が小さいからではなく、電子分布がより核付近に収縮していることによって、「核引力ポテンシャルによるエネルギー低下の利得が大きいため」であることが示されている [4]。

本研究では、閉じ込めの強さによって電子間反発ポテンシャルの役割が大きく変化をする人工原子について、フントの規則の由来を明らかにすることを目的として、擬 2 次元調和ポテンシャル中に拘束された 2 電子系について完全 CI 計算を行い、He 原子との比較を行った。

【理論モデルと計算方法】 本研究で用いた人工原子のハミルトニアンを以下に示す：

$$\hat{H} = -\frac{1}{2} \sum_{i=1}^N \nabla_i^2 + \frac{1}{2} \sum_{i=1}^N (\omega_x^2 x_i^2 + \omega_y^2 y_i^2 + \omega_z^2 z_i^2) + \sum_{i>j} \frac{1}{|\vec{r}_i - \vec{r}_j|}. \quad (1)$$

$\omega_z \gg \omega_x = \omega_y$ の場合には、式(1)は xy 平面上の調和ポテンシャルに拘束された N 電子のハミルトニアンを表す。非等方ガウス型関数を基底関数とし、配置間相互作用法を用いて固有エネルギー E および波動関数の計算を行った [5]。得られた波動関数を用いて式(1)の 1 電子演算子の期待値 E_1 を計算し、それを固有エネルギー E から差し引くことによって、2 電子演算子の期待値 E_2 を求めた。

【計算結果】 式(1)で表される擬 2 次元 2 電子人工原子の基底状態の電子配置は $(1\sigma)^2$ であり、これは He の基底状態の電子配置 $(1s)^2$ に対応する。この配置から 1 電子が最低 π 軌道に励起した状態 $(1\pi)^1\Pi$ および $(1\pi)^3\Pi$ は、それぞれ He 原子の $(2p)^1P$ および $(2p)^3P$ 状態に対応する。これらの準位を例として、以下に解析の結果を示す。

1 重項 $(1\pi)^1\Pi$ 状態と 3 重項 $(1\pi)^3\Pi$ 状態について、全エネルギーの差 ΔE 、1 電子演算子の期待値の差 ΔE_1 、および 2 電子演算子の期待値の差 ΔE_2 を、閉じ込めの強さ ω ($= \omega_x = \omega_y$) の関数として表したものを図 1 に示す。3 個のエネルギー値 ΔE 、 ΔE_1 、および ΔE_2 の間には、

$$\Delta E = \Delta E_1 + \Delta E_2, \quad (2)$$

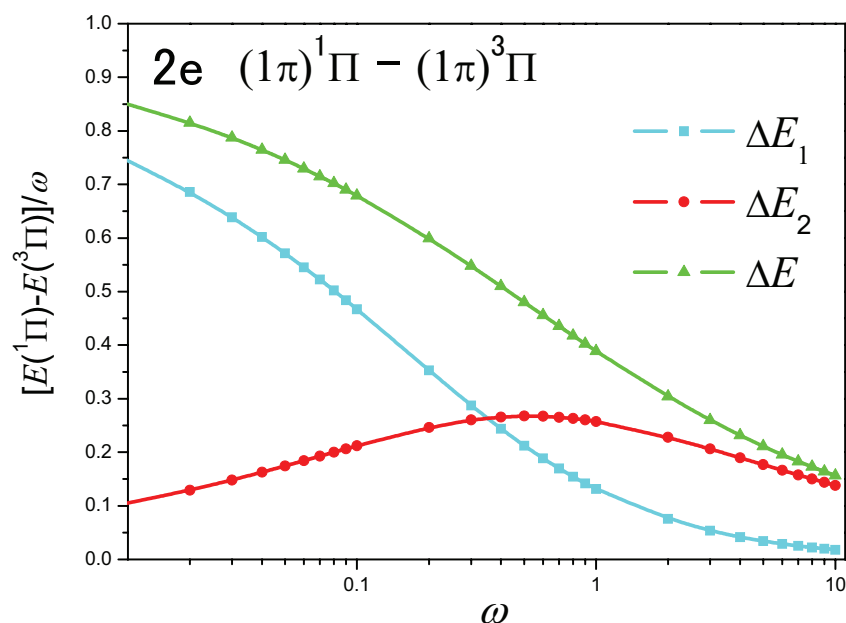


図 1. 擬 2 次元 2 電子人工原子における, 1 重項(1π)¹ Π 状態と 3 重項 (1π)³ Π 状態のエネルギー差およびその内訳.

という関係が成り立つ. 異なる ω の結果を見やすく表示するために, 図 1 の縦軸は ω でスケールしてある.

図 1 が示すように, 閉じ込めが強い場合($\omega=10$)には, 1 重項状態と 3 重項状態のエネルギー差の殆どは 2 電子演算子, すなわち, 電子間反発ポテンシャルの寄与に由来し, 1 電子演算子の寄与は極めて小さいことが分かる. すなわちこの場合には, 多重項状態間のエネルギー差は, He 原子の場合とは異なり, Slater 的な描像によって説明されることが示された. 一方, 閉じ込めの強さが減少していくと, 図 1 が示すように, 2 電子演算子期待値の差が減少し, 代わりに 1 電子演算子の期待値の差が増大していくことが分かる. すなわち, フントの規則の起源は Slater 的な描像から He 原子の場合の描像に近づいていくことが示された. また, 以上の結果は, 2 電子系の内部座標空間における波動関数の節構造と, 電子間反発ポテンシャルの効果を表すポテンシャルエネルギー関数 [6] の形状から説明されることが明らかとなった.

[1] L. P. Kouwenhoven, et al., *Science* **278**, 1788 (1997).

[2] J.C. Slater, *Phys. Rev.* **34**, 1293 (1929).

[3] E.R. Davidson, *J. Chem. Phys.* **42**, 4199 (1965).

[4] 「フントの規則」改訂版 日本物理学辞典, p.1915 (1992).

[5] T. Sako and G.H.F. Diercksen, *J. Phys.: Condens. Matter* **20**, 155202 (2008).

[6] T. Sako, J. Paldus, G.H.F. Diercksen, *Adv. Quantum Chem.* **58**, 177 (2009).