

閉じ込められた量子系： 多電子量子ドットの電子構造

(東大院理・マックスプランク宇宙物理)

○ 佐甲徳栄・Geerd HF Diercksen

【序】空間的に「閉じ込められた」量子系の研究は、単にアカデミックな興味に留まらず、量子ドットのモデルとして、フラレンやナノチューブの中に拘束された原子・分子のモデル、あるいは高圧力下に置かれた原子・分子のモデルとして、近年大きな関心を集めている [1]. これまで我々は、調和ポテンシャル中に拘束された原子 [2, 3] および分子 [4] の振電構造を調べ、ポテンシャルの形状・閉じ込めの強さに応じて、電子構造がどのように変化するかを明らかにした. 本研究では、調和ポテンシャル中に閉じ込められた複数の電子 (調和振動子量子ドット) [5] に着目し、そのエネルギー構造および電子密度分布を調べた.

【計算方法】本研究で用いたハミルトニアンを以下に示す：

$$\hat{H} = \sum_{i=1}^n \left[-\frac{1}{2} \nabla_i^2 \right] + \sum_{i=1}^n \left[\frac{1}{2} (w_x^2 x_i^2 + w_y^2 y_i^2 + w_z^2 z_i^2) \right] + \sum_{i>j}^n \left[\frac{1}{|\mathbf{r}_i - \mathbf{r}_j|} \right]. \quad (1)$$

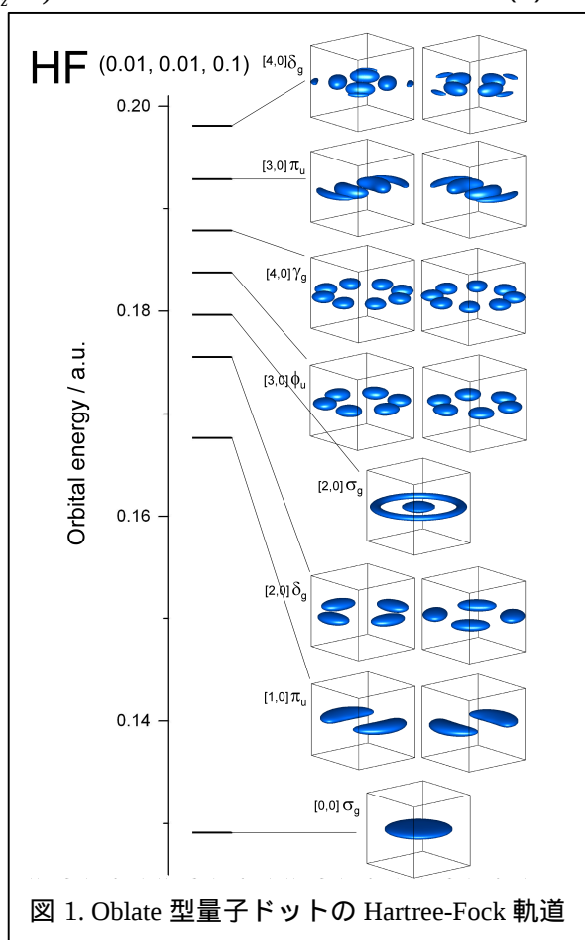
このモデルは、三次元非等方調和ポテンシャルの中に閉じ込められた複数の電子のハミルトニアンを表す. 非等方閉じ込めポテンシャルに由来する様々な形状の電子分布を適切に表現するために、次式で定義される非等方ガウス型基底関数系 [2-5] を用いて計算を行った.

$$c_x^{\bar{a}}(\vec{r}) = x^{a_x} y^{a_y} z^{a_z} \exp(-x_x x^2 - x_y y^2 - x_z z^2). \quad (2)$$

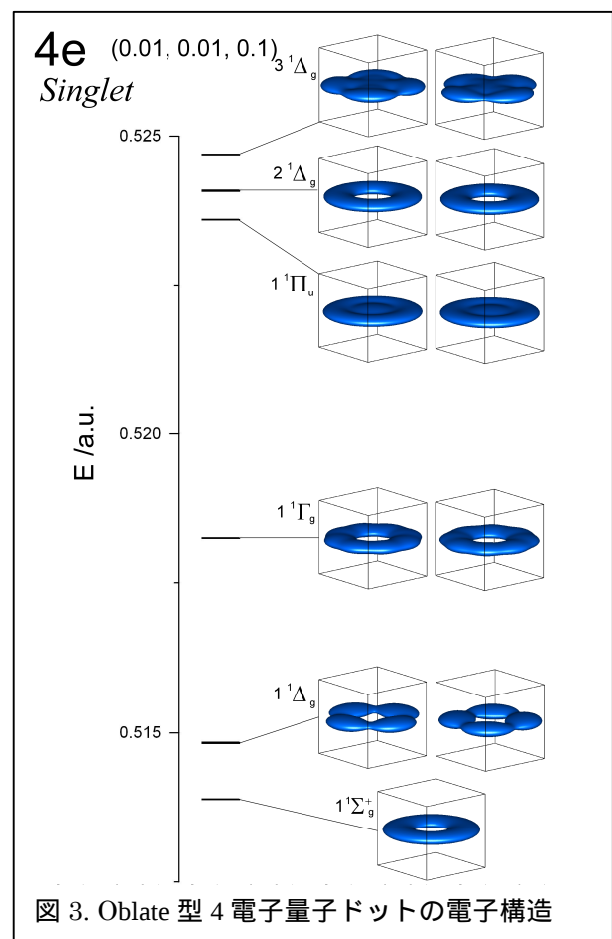
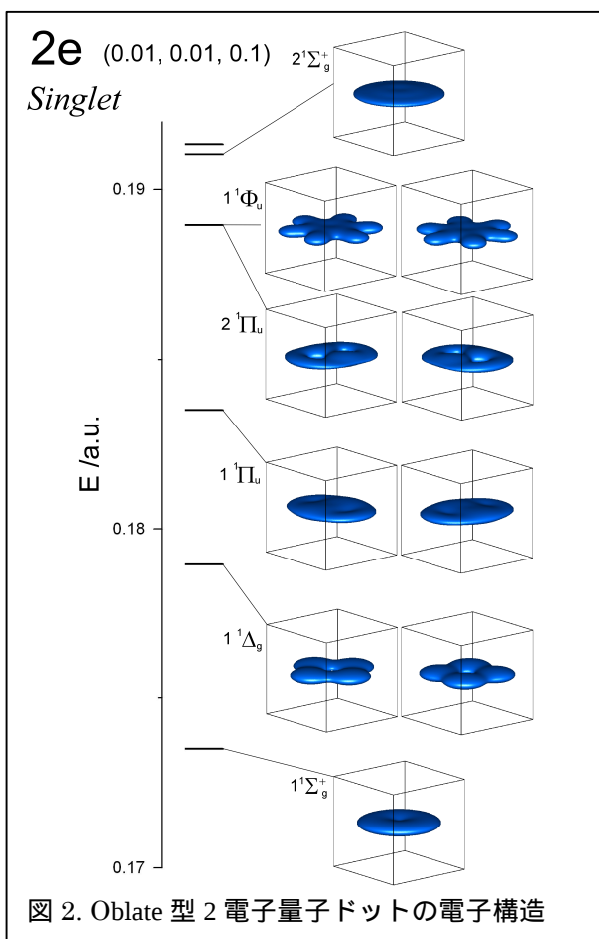
2 電子系の計算には完全 CI 法, 多電子系 ($n = 3$ -6) の計算には多参照 CI 法を用いた.

【Hartree-Fock 軌道】spherical 型 ($w_x = w_y = w_z$), prolate 型 ($w_x = w_y > w_z$), oblate 型 ($w_x = w_y < w_z$), の三種類ポテンシャル形状について計算を行った. 図 1 に, $(w_x, w_y, w_z) = (0.1, 0.1, 0.01)$ の場合の Hartree-Fock 軌道の軌道エネルギーおよび電子分布を示す. この例は、異方性が大きい oblate 型量子ドットに対応する. 各軌道は、二つの量子数 u ($= u_x + u_y$), u_z , および z 軸に対する軸対称性のラベル Δ を指定して, $[u, u_z] \Delta$ のように帰属される.

上下方向 (z 軸方向) の強い閉じ込め, 水平方向の弱い閉じ込めを反映して, 図 1 に示すように低エネルギーの軌道は、縦方向には節を持たず, z 軸を中心とする角度方向に節構造を持つことが分かる.



【エネルギースペクトルと電子密度分布】図 1 で表される軌道に、電子を 2 個および 4 個つめた系、すなわち、2 電子量子ドットおよび 4 電子量子ドットの、一重項状態のエネルギースペクトルと電子密度分布を、それぞれ図 2, 3 に示す。これらの図が示すように、一重項の最低エネルギー状態は、2 電子系、4 電子系ともに $1^1\Sigma_g^+$ である。一方、対応する電子密度分布は、2 電子系は中心部に分布を持つ「円盤形状」をとるのに対し、4 電子系では中央部の電子密度が極めて小さい「ドーナツ形状」を持つことが分かった。この形状の違いの由来を理解するために、CI 波動関数の主な配置を調べた。その結果、2 電子系の場合には、最低軌道に電子が 2 個入った $([0,0]s_g)^2$ が主配置であることが分かった。すなわち、 $1^1\Sigma_g^+$ 状態の電子密度分布が示す円盤形状は、図 1 に表される $[0,0]s_g$ 軌道の形状を反映したものであると解釈される。一方、4 電子系の場合の主配置は、最低軌道ではなく、縮重した第一励起軌道に 4 個の電子が入った $([1,0]p_{u,x})^2([1,0]p_{u,y})^2$ であることが分かった。4 電子系 $1^1\Sigma_g^+$ 状態のドーナツ形状の電子分布は、図 1 が表す中心部に節を持つ $[1,0]p_u$ 軌道の形状とコンシステントである。これらの結果は、量子ドットにおいては、通常の原子の電子構造とは異なり、低エネルギー状態においても多電子励起配置が重要となることを示している。



- [1] W. Jaskolski, *Phys. Rep.* **271** (1996) 1-66.
- [2] T. Sako and G.H.F. Diercksen, *J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys.* **36** (2003) 1433-1457.
- [3] T. Sako and G.H.F. Diercksen, *J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys.* **36** (2003) 1681-1702.
- [4] T. Sako, I. Cernusak and G.H.F. Diercksen, to be submitted.
- [5] T. Sako and G.H.F. Diercksen, *J. Phys.: Condensed Matter* (2003), in press.