

4 単電子効果と量子ドット

単電子効果は、単一の電子のトンネルに伴う系の変化をもたらす諸現象のことである。原子分子系においては電子1個の増減は当然極めて大きな変化をもたらすが、バルク系ではほとんど問題になることはない。半導体や金属などを微細加工技術を駆使して加工して作製する微細な人工構造では、サイズや電子状態により様々な単電子効果が生じ、これを縦横に駆使して様々な実験を固体中で実現するのが量子ドットの研究分野である。

4.1 単電子帯電効果

人工構造においては、通常単電子効果の中でも最大のものは帯電状態が変化することによるもので、「単電子帯電効果」と呼ばれている。他の効果はこれに対する修飾という形で現れることが多い。このような近似は、特に電極が十分に「フェルミ面を持った金属」として扱える場合によく成立する。高次のトンネル効果を考えない限りでは、この近似の範囲ではトンネル現象を「電荷の離散的な変化を伴う移動現象」として半古典的に扱うことができる。

4.1.1 単一接合

まず、単一の孤立したトンネル接合を考える。絶縁体でできたトンネル障壁を金属電極が挟んだ構造をしており、各電極内は十分な数の電子がいてフェルミ球状態が実現しているとする。電子間相互作用について、最も簡単な静電容量近似を行い、トンネル接合のキャパシタンスを C とすると、1個の電子のトンネルによって増加する静電エネルギーは

$$E_c = \frac{e^2}{2C}. \quad (94)$$

電圧 V が接合にかかっている時のトンネル確率を $\Gamma(V)$ とすると、

$$\begin{aligned} \Gamma(V) &= \frac{1}{e^2 R_T} \int_{-\infty}^{\infty} f(E) \left\{ 1 - f\left(E + eV - \frac{e^2}{2C}\right) \right\} dE \\ &= \frac{1}{e^2 R_T} \int_{-\infty}^{\infty} dE \frac{1}{1 + \exp(E\beta)} \frac{\exp \beta(E + eV - E_c)}{1 + \exp \beta(E + eV - E_c)} \\ &= \frac{1}{e^2 R_T} \frac{1}{1 - \exp \beta(E_c - eV)} \int_{-\infty}^{\infty} \left\{ \frac{1}{1 + \exp(E\beta)} - \frac{1}{1 + \exp \beta(E + eV - E_c)} \right\} \\ &= \frac{V - \frac{e}{2C}}{e R_T} \frac{1}{1 - \exp \beta(E_c - eV)} \\ &= \frac{V - \frac{e}{2C}}{e R_T} \theta \left(V - \frac{e}{2C} \right) \quad (T \rightarrow 0) \end{aligned} \quad (95)$$

と計算される． $V = e/2C$ で電流が流れ始めるのは，電圧による化学ポテンシャルの差 eV が E_c に等しくなるためである．

しかしこの IV は，この形の回路では実際に観測されることはない．それは「孤立した単一接合」の IV を測定することはできないので，必ず電源回路に接続する必要がある．この場合は電源による仕事があるため，理想的な定電圧電源は，常に端子間の電圧を一定に保つので，電子のトンネル時間内に電位を変化させ，トンネルによる静電エネルギーの変化を補償してしまう．このことは，このような系の力学を考える際には内部エネルギーではなくエンタルピー (Enthalpy) あるいはギブス自由エネルギーを考えるのが簡明であることを示している．

4.1.2 定電流電源の場合:SET 振動

そこで，次に，定電流電源で微小接合を駆動することを考えよう．

定電流電源は，常に一定の電流 J を流そうとするため，トンネルがブロックされていると， $dQ/dt = CdV/dt = J$ にしたがって接合の電圧が増加する．(95) より，図1のように， $V = e/2C$ を超えたところでトンネルが起こり，トンネルによって $\Delta Q = -e$ の変化が生じて， $V = -e/2C$ となる．この一周期に必要な時間は， $C \times (e/C)/J = e/J$ であるから，結局接合の電圧は，周波数

$$f = J/e \tag{96}$$

で振動する．これを単電子トンネル (SET) 振動と呼ぶ．SET 振動も，Shapiro ステップのときと同様，外部から f_0 の電磁波を加えることで， $J = nef_0$ の部分の電流電圧特性に異常が生じる．ただし，今のところ，Shapiro ステップのように鋭い形状が生じることはなく，電流標準に

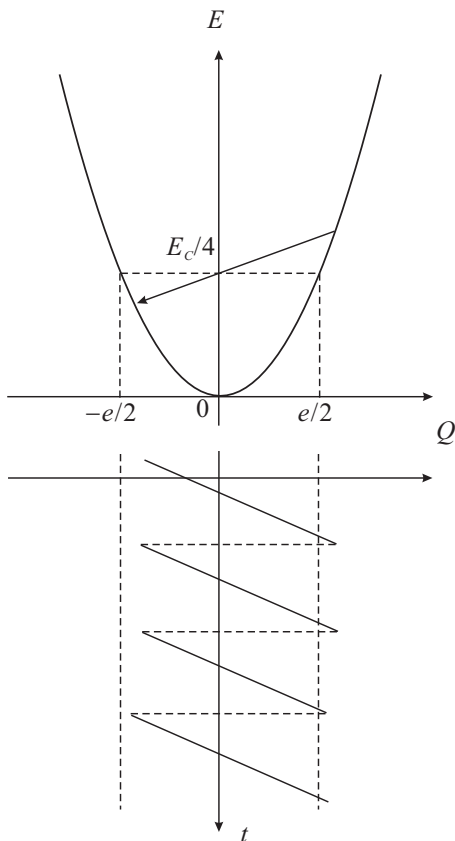


図 1: 上の図は，接合の電荷 q に対する静電エネルギー．下は，定電流電源を接続した時の q の時間変化．

使用するのには困難である¹．鋭いピークが出ない理由の一つはもちろん，三角波的な波形のために高周波が混じり込んでくる，ということであるが，より本質的なのは，トンネル過程が統計的にランダムに生じるため，振動の間隔に分布が生じることである．

4.2 Coulomb island

定電流駆動は上記のように振動を伴って複雑であり，デバイスとしては使いにくい．その上，単電子効果を示すようなデバイスは一般に高インピーダンスであり，定電流駆動自身が容易ではない．そこで，定電圧電源で駆動して単電子効果を見ることを考える．これにはクーロン島構造が用いられる．

クーロン島とは，図2のようにトンネル接合によって周囲電源とつながった系である．これまでと同様「電源」は粒子溜め，すなわち定電圧電源で，化学ポテンシャルが定義できるものとする．電気的に中性である時からの電子数のずれ「余剰電子数」を n とし， i 番目の接合にたまっている電荷を q_i とすると，

$$ne = \sum_i q_i = \sum_i C_i(\varphi - V_i)$$

である．ただし， φ はクーロン島の電位で，この式より，

$$\varphi = \frac{\sum_i C_i V_i + ne}{C_\Sigma}, \quad C_\Sigma \equiv \sum_i C_i \quad (97)$$

と与えられる．

このような系の静電エネルギー U と， j 番目の接合を通して電子がトンネルしてクーロン島

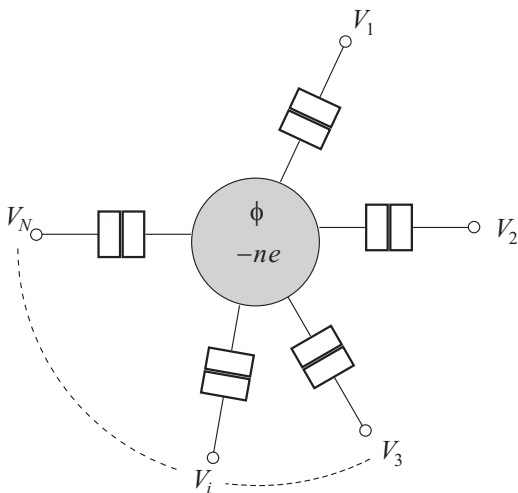


図 2: クーロン島

¹本講義では触れないが，次節の Coulomb island を使って，電子を 1 個ずつ輸送していくデバイス (電子ポンプなど) は存在し，これらについては電流標準となる可能性が議論されている．この場合に問題となるのは co-tunneling と呼ばれる高次のトンネル過程によるリーク電流であり，直列接合数を増やすことで減少する．現在 6 桁の精度は得られることがわかっている．

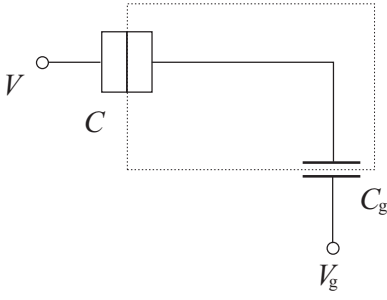


図 3: 単電子 box

に入る際に (すべての) 電源が行う仕事 W_j は,

$$U = \frac{1}{2C_\Sigma} \sum_i \sum_{j>i} C_i C_j (V_i - V_j)^2 + \frac{(ne)^2}{2C_\Sigma} \quad (98)$$

$$W_j = e \sum_i (V_j - V_i) \frac{C_i}{C_\Sigma} \quad (99)$$

電源の効果は, 熱力学で定圧状態にある系について議論する際に便利な Enthalpy で考えるのが便利である.

$$E(n) = U - \int_0^n W dn' \quad (100)$$

例 1) Single electron box 最も簡単な例: $V = 0$

$$\begin{aligned} E(n) &= U - \int_0^n W dn' \\ &= \frac{(ne)^2}{2C_\Sigma} + \frac{1}{2C_\Sigma} C C_g V_g^2 - \left(-e V_g \frac{C_g}{C_\Sigma} \right) n \\ &= \frac{1}{2C_\Sigma} \{ (ne) + C_g V_g \}^2 + \frac{C - C_g}{2C_\Sigma} C_g V_g^2 \end{aligned} \quad (101)$$

最後の項は, n に対して変化しない. したがって, 実際のエネルギーはこの項によって大きくゆがんでいるとしても, 問題になることはない.

$$\begin{aligned} E(n+1) - E(n) &= 0 \\ \longrightarrow Q_g &= e \left(n + \frac{1}{2} \right) \end{aligned} \quad (102)$$

例 2) Single electron transistor

$V = 0$ の場合,

$$E(n) = \frac{1}{2C_\Sigma} (ne + C_g V_g)^2 + \text{constant for } n \quad (103)$$

したがって, 縮重の条件等は単電子 Box と同じである. ただし, ソース・ドレインがあるため, 縮重条件でソース・ドレイン電流が流れる. これをクーロン振動と呼ぶ.

次に, 有限のソース・ドレインバイアスがかかった場合を考える. よくある条件として $V_1 = -V_2 = V$ と置こう. トンネルの過程は 4 つある.

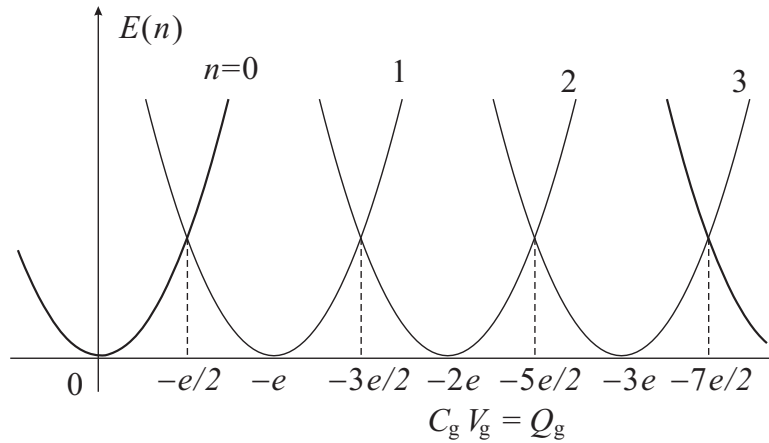


図 4: 単電子 box の enthalpy

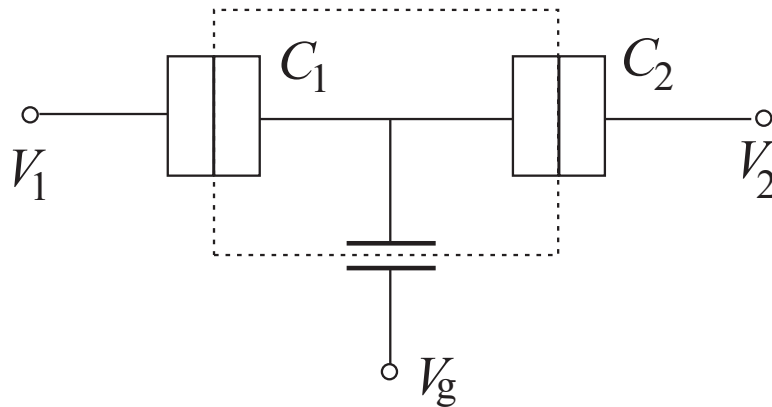


図 5: 単電子トランジスタ

$\Delta E_{1,2}(n \rightarrow n \pm 1)$ でこれらを $\Delta E_i(n, \Delta n)$ と書こう。
たとえば

$$\begin{aligned} \Delta E_1(n, -1) &= \Delta U(n \rightarrow n-1) - W_1(\Delta n = -1) \\ &= -\frac{e}{C_\Sigma} \left[e\left(n - \frac{1}{2}\right) - (2C_2 + C_g)V + C_g V_g \right] \end{aligned} \quad (104)$$

これが正であれば Coulomb blockade によってトンネルは禁止される。4つのプロセス共に禁止される領域は平行四辺形となり、それぞれの n に対応するものが V_g 軸上に隣接して並ぶ。これをクーロンダイヤモンドと呼ぶ。

4.3 Josephson 効果と単電子 (クーパー対) 帯電効果

単電子帯電効果では「電荷」が唯一の力学的自由度 (変数) であった。その運動エネルギーに相当するものが帯電エネルギーである。ここで質量に相当するのが電気容量 C であるから、 C を小さくするという事は電荷の量子 e に対するエネルギーが温度揺らぎよりも十分大きくな

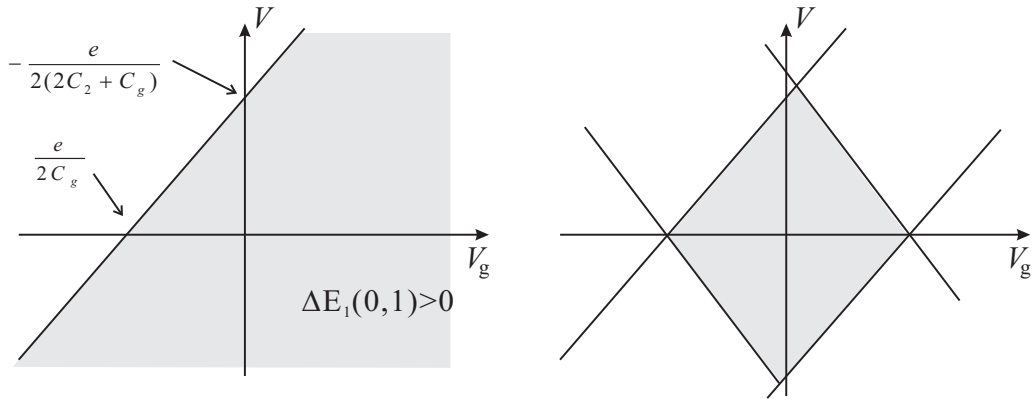


図 6: クーロンダイヤモンド

るといふばかりではなく、量子ゆらぎが大きくなる可能性を意味する。すなわち、接合に蓄積された電荷 q を量子力学的変数として扱わなければならない可能性が生じる。

q を量子力学的変数として扱う場合、量子化の処方箋として重要になるのが「正準共役な変数」である。 q の場合これが何に相当するのか、少し面倒な問題であるが、超伝導接合、すなわち Josephson 接合の場合は簡明であり、左右電極の位相差がこれにあたる。以下、これを見ていくことにしよう。

4.3.1 Josephson energy

まず、ハミルトニアン形式に乗せるために、位相差 $\Delta\theta$ によって接合のエネルギーがどのように変化するかを調べておこう。接合の自由エネルギー (per unit area) は

$$\begin{aligned} f_j &= \int_0^d dx \left\{ \alpha |\psi|^2 + \frac{\beta}{2} |\psi|^4 + \frac{\hbar}{4m} |\nabla\psi|^2 \right\} \\ &= \frac{\hbar}{2e} j_c (1 - \cos \Delta\theta) \equiv E_J (1 - \cos \Delta\theta) \end{aligned} \quad (105)$$

となる。例によって、GL の自由エネルギーの第 2 項、第 3 項を無視する近似をした。また結果の中で第 1 項は定数なので無視する。

4.3.2 数状態と位相状態

電気的中性状態を $|0\rangle$ と書き、 n 個の Cooper pair が transfer した状態を $|n\rangle$ と書く (左右の取り方で $|-n\rangle$)。 n はゼロおよび正負の値を取りうる点に注意しよう。

実は、 n と $\theta = \theta_1 - \theta_2$ ($\Delta\theta$ と書いてきたが、簡潔にするため、 θ と書くことにしよう) は関係のない変数ではなく、正準共役な関係にある。

$$\text{creation operator } a^\dagger \quad |n\rangle = \frac{1}{\sqrt{n!}} (a^\dagger)^n |0\rangle \quad (106)$$

これは一種の Fock space と考えることもできる． $|n\rangle$ と $|n+1\rangle$ はマクロに区別がつく状態であり， θ はマクロ変数であるから，これからやろうとしていることは，これら macro 変数の揺らぎを考えようということである．

→ Macroscopic Quantum Phenomena (MQP) (超伝導そのものとの違いに注意)

また，「位相表示」に関しては，BCS 状態 (式 (78)) が位相表示であったことを注意しておこう．この場合の位相表示は，オブザーバブルである位相差ではなく，位相そのものについての表示であるため，ゲージ不変ではない．もちろん，波動関数レベルでのゲージ不変性の破れは問題ではないが，電磁応答などにゲージ対称性の破れが生じることはすでに述べた．

共役性を導く

位相演算子 $\hat{\varphi}$ を次のように定義することを考えてみる．

$$\exp(i\hat{\varphi})|n\rangle = |n-1\rangle \quad (107)$$

$$\exp(-i\hat{\varphi})|n\rangle = |n+1\rangle \quad (108)$$

$-i\hat{\varphi}$ は n 空間での translation の generator になっている．すなわち

$$-i\hat{\varphi} = \frac{\partial}{\partial n} \quad (109)$$

$$\therefore [\hat{n}, \hat{\varphi}] = -i \quad (110)$$

$\hat{\varphi}$ が位相 θ を量子化したものと考えて良いことは， $\hat{\varphi}$ を $\hat{\theta}$ と書き換え， $-E_J \cos \hat{\theta}$ を計算することでわかる．

$$\left. \begin{aligned} \langle m | \exp(i\hat{\theta}) | n \rangle &= \delta_{m,n-1} \\ \langle m | \exp(-i\hat{\theta}) | n \rangle &= \delta_{m,n+1} \end{aligned} \right\} \quad (111)$$

$$2 \cos \hat{\theta} \equiv \exp(i\hat{\theta}) + \exp(-i\hat{\theta}) \quad (112)$$

$$[-E_J \cos \hat{\theta}]_{|n\rangle} = \begin{bmatrix} 0 & -E_J/2 & & & 0 \\ -E_J/2 & 0 & -E_J/2 & & \\ & \ddots & \ddots & \ddots & \\ & & -E_J/2 & 0 & -E_J/2 \\ 0 & & & -E_J/2 & 0 \end{bmatrix} \quad (113)$$

これは，このようにして定義した $-E_J \cos \hat{\theta}$ の項が，まさに tunnel Hamiltonian の性質を持っていることを示しており，(105) を量子化したものになっている．形式上の一致から，上に導入した位相演算子が位相差 (オブザーバブル) を量子化したものであり，電荷数 (クーパ対数) 演算子と正準共役であることがわかる．

ここで，量子光学などで導入される位相演算子は，(光子) 数 n が 0 以上しか取り得ないことを反映して非エルミートであるが，今の場合は n が負にもなり得ることから事実上エルミートであり，文字通り正準共役と考えて良いことをコメントしておく．

θ 表示

$$|\theta\rangle = A \sum_m \exp(im\theta) |m\rangle$$

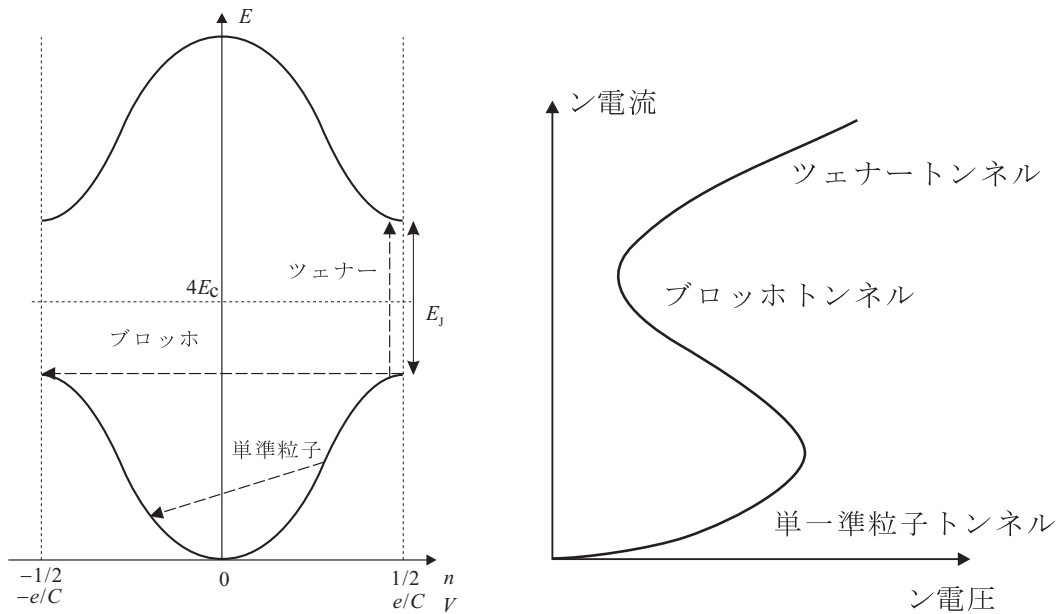


図 7: 左は、超伝導微小接合のクーパー対数（電荷）空間におけるエネルギーダイアグラム．定電流電源で駆動した際に考えられる3つのトンネル過程（単準粒子，ブロッホ，ツェナー）が矢印で示されている．右は、このようなダイアグラムから期待される「ブロッホの鼻」と呼ばれる電流電圧特性の模式図．

$$\langle \varphi | (-E_J \cos \hat{\theta}) | \varphi \rangle = -\frac{E_J}{2} J |A|^2 \left(\sum_m e^{-im\varphi} \langle m | \right) \left\{ \exp(i\hat{\theta}) + \exp(-i\hat{\theta}) \right\} \left(\sum_n \exp(in\varphi) |n\rangle \right) \quad (114)$$

$$= -E_J \cos \varphi \quad (115)$$

すなわち、 $|\theta\rangle$ は $-E_J \cos \hat{\theta}$ の固有状態になっている．

$$\hat{n} = -i \frac{\partial}{\partial \theta} \quad (116)$$

$$H = -2E_c \frac{\partial^2}{\partial \theta^2} - E_J \cos \theta \quad (117)$$

これは、 θ 空間中の1次元周期ポテンシャル問題であるから、解がブロッホ関数の形に書けることがわかる．したがって、 θ 座標に対する運動量に相当する n について、図7左のようなバンドダイアグラムを描くことができる． n の小さなところでの放物線的なふるまいは、もちろん図??と同じである．大きな変化は E_J によってバンドギャップが開いたことである．このダイアグラムに基づき、超伝導微小接合の電流電圧特性について定性的に考えてみよう．電源としては定電流電源を考える．電圧零の状態から電流を流していくと、電極に電荷が溜まり始め状態を表す点は放物線の上を移動する．超伝導ギャップとクーロンブロックードを超える程度まで電圧が上昇すると準粒子のトンネルが始まり電流が接合を通して流れる．この時、直流IV特性が V^2 に比例して立ち上がるのは図??と同じである．状態点がバンドの頂上に近づくと、ジョセフソン項によって n の項と $n-1$ の状態が混じり始め、ブリルアンゾーンの端に達すると状態点は反対側の端より現れる．これが原点まで戻ってくると、全体として電荷 $2e$ が電極間を移動したことになる．電圧は正負等分に振動するため、以上のサイクルで電源が接合に対し

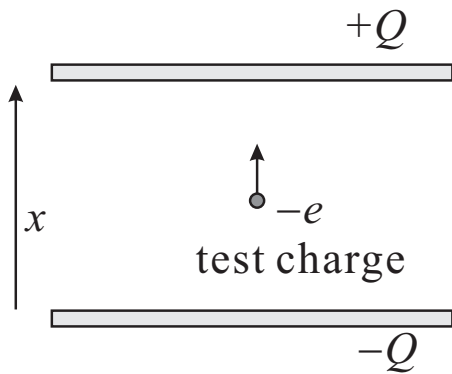


図 8: 位相と粒子数の不確定性関係の 1 つの物理的描像.

とする仕事は零である．したがってこのサイクルで流れる電流は，エネルギー散逸のない超電流であるが，電圧は周波数 $I/2e$ で振動する．これをブロッホ振動と呼ぶ²．

これに対して，バンドの頂上付近で電源からエネルギーをもらって上のバンドに飛び上がる過程（ツェナートネル）も存在する．流し込む電流を増やしていく（これは， θ 空間でポテンシャルの傾きを増加させることに相当する）と，このような過程の頻度も増加し，これは新たな準粒子トンネル過程を引き起こすため直流電圧を発生する．以上の過程をまとめると，図 7 のような電流電圧特性が期待される．

Physical Picture of the uncertainty

位相と粒子数との間の不確定性関係は，必ずしも直感的に「ピン」と来るものではないかもしれない．まず，超伝導その他 BEC 類似現象は，多粒子の波動関数が，1 つの振幅と位相を持つマクロ波動関数で記述されるところに大きな特徴があった．もしその「位相」が量子揺らぎを持つ，となれば，それは，BEC 状態そのものが揺らぐことを意味するのだろうか？ 例えば，超伝導体の微粒子などは，1 電子の帯電エネルギーも大きく，微粒子中の Cooper 対の数が揺らぐことはほとんど不可能である．このような場合，位相が揺らいで超伝導が壊れてしまうのであろうか？

もちろん，そのようなことはない．今，問題にしている粒子数とは，パリティ効果の場合と違って，左右電極間で電気的中性から³やり取りされた粒子数であり，やり取りに対して粒子数は当然保存するので，左右のトータルの粒子数は揺らがない． n がゆらがない，ということは左右電極間の結合が実質的に切れている，ということになり，左右の秩序パラメタがシンクロナイズしなくなって位相差が揺らぐということは全く自然である．逆に左右がシンクロナイズしていると言うことは，左右で大いに粒子が行き来する，ということで，これは n が揺らいでいることを意味する．

以上は，ごく定性的な説明であったが，この位相と粒子数との不確定性は，他の不確定性と物理的に関係していることを示そう．これまで見てきたように，微小接合では，位相はゲージ変換や AB 位相を通して磁場と，粒子数はもちろん電荷保存則を通して電場と強く結合している．今，図 8 のように，接合を平行平板コンデンサで近似し，テストチャージ $2e$ を使って電場を測定する状況を考える．テストチャージは，図の x 方向にのみ動ける．

²これは，江崎と Tsu が半導体超格子で負性抵抗を出すメカニズムとして考えたものと，広い意味では同一の現象である．

³もちろん，これは単なる基準であって，どの状態からでも良い．

電場によるチャージの加速方程式は，

$$\frac{dp}{dt} = 2e \frac{V}{d} = \frac{\hbar}{d} \frac{d\theta}{dt}, \quad \therefore \theta = \frac{d}{2e} p + \text{const.}$$

である．一方，チャージによって電極には鏡像電荷が誘起されるので，

$$dQ = \frac{e}{d} dx, \quad \therefore Q = \frac{e}{d} x + \text{const.}$$

以上から， x ， p を量子化して演算子とすると，

$$[x, p] = \frac{\hbar}{2e} [\theta, Q] = \hbar [\theta, n]$$