

# 近藤効果と量子ドットと私

理学系研究科 附属 知の物理学研究センター & 物理学専攻

小林 研介

微細加工技術を用いることによって、量子力学的な効果が顕著に現れるような微小な電子回路 (メゾスコピック系) を作製することができる。私はメゾスコピック系の一つである量子ドットを用いて近藤効果の研究を行ってきた。本稿では、近藤効果について直感的な説明を行い、その歴史と意義について概観する。さらに、量子ドットを用いた近藤効果の研究によって得られた成果の例として、近藤状態の位相と非平衡ゆらぎについて紹介する。

## 1. はじめに

微細加工技術 (ナノテクノロジー) を用いることで、サイズが  $1\ \mu\text{m}$  に満たない、極小の電子回路を作ることができる。このような電子回路はメゾスコピック系と呼ばれ、1980 年代以降、電子やフォトン、フォノンなどの素励起が持つ量子力学的な性質を観測・制御する研究の舞台となってきた。私は、1999 年にメゾスコピック系の研究を開始して以来、量子ドットにおける近藤効果の研究に継続的に取り組んできた。

本稿では、最初に、近藤効果とはどのような現象であるかを直感的に説明し、その歴史と意義について簡単に紹介したい。さらに、量子ドットを用いた研究の面白さをお伝えしたい。近藤効果は物理学において長く研究されてきた現象であるが、メゾスコピック系という新しい実験手法によって、これまでに観測できなかったものが観測できるようになってきている。私が関わってきた研究を中心に、その状況をお伝えすることが本稿の目的である。

## 2. 近藤効果とは

ごく微量の鉄 (0.0005% から 0.1% 程度) を不純物として含む銅の電気抵抗について考えてみよう [1, 2]。銅は磁性をもたない典型的な自由電子系である。一方、鉄は孤立した  $3d$  電子を持っているた

め、いわゆる「磁性不純物」として振る舞う。通常の金属であれば、温度を下げていくにつれ、結晶格子からの散乱の影響が減少し、抵抗も小さくなっていく。ところが、磁性不純物を持った系では、温度を下げていく途中 (この例では約 10–30 K 程度) で抵抗が逆に増え始めるという奇妙な現象がみられる。これが近藤効果である。

近藤効果の原因を簡単に説明する。図 1(a) を見てほしい。通常の金属 (銅) の中に磁性不純物 (鉄) が含まれている様子を示している。温度が十分に高い場合を考えよう。高温では磁性不純物ス

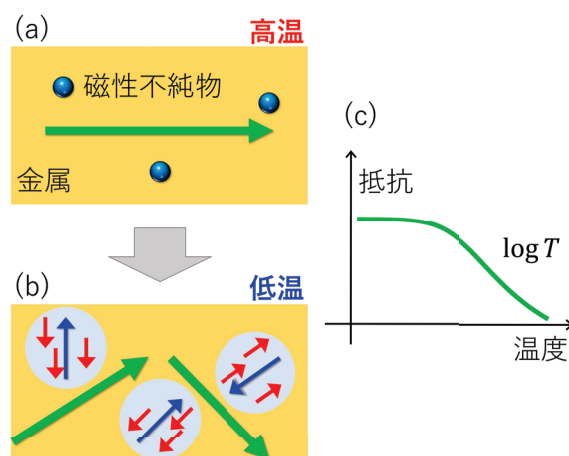


図 1. 金属中の磁性不純物による近藤効果。(a) 高温における状態。(b) 低温における状態。磁性不純物の周りに近藤状態が形成される。(c) 抵抗の温度依存性。

ピンは激しくゆらいでおり、伝導電子は不純物スピンの存在に「気づかず」通り過ぎてしまう。ところが、温度が下がっていくとともに、不純物スピンのゆらぎがゆっくりになる。その結果、伝導電子が不純物スピンと一時的な束縛状態を形成するようになり、電気伝導が阻害されるようになる[図 1(b)]。この束縛状態を近藤状態と呼ぶ。近藤状態が形成されていくにつれ、電気抵抗が上昇していくことになる[図 1(c)]。もちろん、電気抵抗が無限に上昇するというわけではなく、多数の伝導電子が一つの不純物スピンを完全に取り囲み、近藤状態が完全なスピン一重項状態となると、それ以外の伝導電子からは不純物スピンが見えなくなってしまうので、そこで電気抵抗の上昇は止まる。このように、近藤効果が完成し不純物スピンが完全に遮蔽された状況をユニタリ極限と呼ぶ。

なお、ここでの近藤効果の説明は、極めて直感的なものであり、ある意味では非常にいい加減なものであることをお断りしておきたい。例えば、高温で不純物スピンのゆらぎが激しくゆらいでいる理由は、伝導電子が不純物サイトに頻繁に出入りするため、結果として、不純物サイトにおける不純物スピンの向きを変えているように見える、と表現したほうが正確である。このような出入りがあるために、鉄を不純物として含む銅という系において、単純には想像するのが難しい数 10 K という小さなエネルギースケール(これを近藤温度と呼ぶ)の物性が発現するのである。また、近藤効果をもたらす本質的な点は、スピン演算子が量子力学的に交換しないことと、フェルミ面が電子の占有数が不連続になっている特殊なエネルギー境界となっている点にあることも指摘しておきたい [1,2]。

近藤効果は熱力学第三法則とも関連している。有限温度で磁性不純物のスピンはゆらいでおり、有限のエントロピーを持っている。しかし、温度低下とともに近藤状態を形成するようになり、系全体としてエントロピーがゼロになっていく。この意味において、近藤効果とは熱力学第三法則を

成立させるようなプロセスであるとも言える。

### 3. 近藤効果の歴史

近藤効果の歴史について簡単に触れておく [1,2]。磁性不純物を含む金属の電気抵抗が奇妙な温度依存性を示すことは 1930 年代から知られていた。低温における金属の電気抵抗の振る舞いは 20 世紀初頭の大問題であり、それを探求したカマリン・オンネスが超伝導という予想外の現象を発見したことは良く知られている。その後も数多くの研究が行われるなかで、ある場合には、温度低下とともに減少していった電気抵抗がある温度から増大していく場合があることが知られるようになった。このことは、(超伝導に比べれば地味かもしれないが) やはり意外であり、「電気抵抗極小問題」として何十年もの間の難問であった。

この問題に突破口を開いたのが近藤淳である。彼は、磁性不純物による伝導電子の散乱という問題に対して、通常のボルン近似を一步すすめて、二次摂動の計算を行うことにより、電気抵抗が低温で対数的に増大していくことを説明した。1964 年のことである [3]。この成果をもとに、1960 年代から 70 年代にかけて、ありとあらゆるテクニックが開発・導入され、近藤効果の本質が明らかにされていった。上で、スピン演算子が交換しないこととフェルミ面の特異な性質について述べたが、近藤の功績はこの事情に初めて注目した点にある。なお、近藤自身は近藤効果のことを「フェルミ面効果」と呼んでいる。その当時の研究の流れを解説した文献 [1] には近藤自身の「問題はそうに難しかったけれども、それ以上の問題でもなかった、ともいえる」という味わい深い記述がある。

私自身は、1960 年代から 70 年代の状況を直接には知らないけれども、近藤効果にまつわる物性物理学の進展と理解の深まりを見るにつけ、磁性の研究者にとって刺激的な時代だったのではないかと想像する。現在のスピントロニクスの興隆の原点の 1 つがここにあるとも感じる。

1970年代以降、近藤効果は、重い電子系の物理とも結びつき、さらに大きな研究の舞台へと成長した。以下に述べるメゾスコピック系における近藤効果もその潮流から生まれてきたものである。

#### 4. 量子ドットにおける近藤効果

それでは量子ドットにおける近藤効果について説明する。まず微小な電子回路 (メゾスコピック系) の一種である量子ドットについて紹介する。非常に小さい領域 (電子のフェルミ波長程度のサイズ。典型的には10–100 nm程度) に電子を閉じ込めた状態を考える。量子サイズの「点 (ドット)」ということで量子ドットと呼ばれる。量子ドットの材質は、半導体や金属微粒子、カーボンナノチューブ分子など、様々なものが可能である。

量子ドットは、トンネル障壁を介して導線と接合している。量子ドットのユニークな点は、静電エネルギーが大きいため、 $N$  個電子がいる状態と、 $N + 1$  個の電子がいる状態とのエネルギーの差が温度エネルギーよりも大きくなり、閉じ込められている電子の数が熱的にゆらぐことができず、固定されてしまうことである。しかも、その個数を、量子ドット近傍に設置した電極によって静電的に1つずつ変化させることができる。あたかも原子を導線につないで調べるような研究ができることから、量子ドットを人工原子と呼ぶこともある。

1990年代半ば以降、量子ドット内のスピン自由度や軌道自由度を精密に制御する研究が数多く行われてきた。さらに、量子ドットが典型的な二準位系であることから、現在では、量子コンピュータの基本素子としても熱心な研究が行われている。

量子ドットでも近藤効果が起こる [4]。簡単のために、量子ドット内に電子が1個だけいる状態を考えよう [図 2(a)]。静電エネルギーが大きいため、2つ目の電子は入ることができない。ところが、温度を下げていくと状況が変わる。つまり、量子ドット内の電子のスピンが「磁性不純物」として振る舞い、導線中の自由電子と一時的な束縛

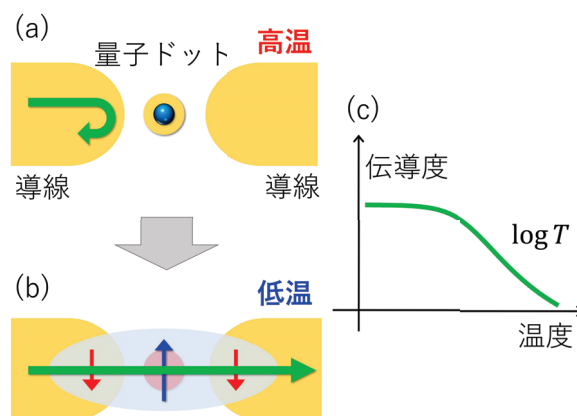


図 2. 量子ドットによる近藤効果。(a) 高温における状態。2つ目の電子が入ることができないため、量子ドットを電流が流れることができない。(b) 低温における状態。量子ドットと導線を橋渡しするように近藤状態が形成され、電気が流れるようになる。(c) 電気伝導度の温度依存性。図 1 とは異なり、この図の縦軸が伝導度となっていることに注意。

状態を作るようになるのである [図 2(b)]。この近藤状態が導線を橋渡しする役目を果たし、電子は量子ドットを通過することができるようになる。電気伝導度は、温度が下がるにつれ対数的に増加していく [図 2(c)]。これが量子ドットにおける近藤効果である。実験的には 1998 年に初めて報告された [5]。

量子ドットにおける近藤効果については、1980年代後半から理論的に議論されていたが [6, 7]、その実現可能性については、懐疑的な意見も多かったようである。だからこそ、1998 年の報告は大きな興奮を巻き起こした。何よりも面白い点は、近藤効果という典型的な量子多体効果を、人間の手で自由自在に制御することができる、という点にある。それ以前は、金属における電気抵抗や比熱・帯磁率などの熱力学量の変化を通じて観測されていた効果が、いまや制御できる対象となったのである。

私事となるが、私は、1999 年に東京大学 理学系研究科 物理学専攻 藤森淳研究室で学位を取得

するのと前後して、東京大学 物性研究所 勝本信吾研究室の助手となった。藤森研究室では光電子分光法を用いた強相関電子系の研究をしていたため、近藤効果は日常的に見聞きする現象であった。勝本研究室に移って、自分にとっては全く馴染みのないメゾスコピック系の研究を開始したのだが、ちょうどその当時、量子ドットにおける近藤効果の実現が大きな話題となっていた。新しい分野で右も左も分からない状態だった私ではあったが、慣れ親しんでいたトピックに再会できたのはとても嬉しいことであり、物理学の普遍性を実感するとともに研究へのモチベーションが大きく高まったことを思い出す。このときの思いが、その後の私の研究の原動力となっている。

## 5. 近藤効果の新展開

近藤効果は、1960年代から物性物理学の花形であり、徹底的に研究され、ある意味では調べつくされてきた。であれば、この現象を量子ドットを使ってわざわざ実現することにどのような意味があるというのか？ 量子ドットにおける近藤効果が報告された当時、そのような意見があった（実際、私自身、このような質問を受けたことがある）。

上にも書いたように、私にとっての醍醐味は「制御できる」点にある。実際、何かを「理解すること」と「制御できること」の間には質的に大きな隔りがある。例えば、理解しただけではテクノロジーにはならない。テクノロジーを可能にするのは制御可能性である。もちろん、私も、近藤効果がいますぐ何らかのテクノロジーになると主張するつもりはない。しかしながら、電気伝導度を精密に測定しながら、電子の個数を一個ずつ変化させたり、磁場を印加したりすることによって、典型的な量子多体効果である近藤効果をオンオフできる、という状況は、確かに「理解する」以上のものである。さらに、精密測定によって、近藤効果に関わるパラメータ（近藤温度  $T_K$ 、オンサイトクーロンエネルギー  $U$ 、寿命  $\Gamma$  など）を全て取

得することができるので、理論との比較が曖昧さの一切ない状態で可能になる。このような研究手法は、バルク物質において数多くのスピンの平均的性質を相手として行われてきた従来の近藤効果の研究とは異なる、本質的に新しい展開であると言って良い。

それでは、実際に量子ドットにおける近藤効果でどのような研究が行われてきたのか、その例を2つ挙げる。

### 5-1. 位相

近藤状態は理論的には無限個の電子が参加して形成される量子多体状態である。このような状態を通過するとき、電子はどのような影響をうけるのだろうか。実は、その痕跡は、電子の波動関数の「位相」に現れる。さきほど、近藤効果が完成してしまうと、不純物スピンの外からは見えなくなってしまう、と書いた。この状況になると、伝導電子はもはや不純物スピンによって散乱されることはなくなってしまう。あたかも、何もなかったかようになってしまうのである。しかし、電子の波動関数の虚部である位相には、しっかりとその痕跡が残されるのである。理論的には、近藤効果が起きていない通常の場合、離散状態を通過するたびに波動関数の位相は  $\pi(180^\circ)$  だけ変化するが、近藤効果が起きている場合には  $\pi/2(90^\circ)$  の変化となることが予想される [8]。量子ドットにおける近藤効果の実現は、1974年に提出されたこの理論を直接検証する舞台を実験家に与えた。

実験的に電子の波動関数の位相を検出するためには、干渉計を用意する必要がある。図3のように、回路内に「近藤状態にある量子ドット」と「参照経路」という2つの通り道を用意しておいて、どちらを通ったか（電子自身にも）分からないようにすることによって干渉が生じる。参照経路を通過する電子波の位相は、電場や磁場によって変化させることができ、それとともなって回路を通過した電流には位相干渉によって強弱が現れる。こ

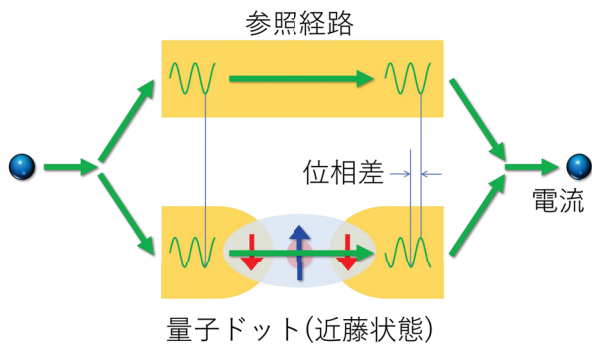


図 3. 近藤状態にある量子ドットにおける位相測定。左から入射した電子は、参照経路 (上) と近藤状態にある量子ドット (下) の両方の経路を通り、右へと通りぬけていく。その電流には、電子波の位相情報が含まれている。緑の波線は電子波を概念的に表している。

のようなメゾスコピックサイズの電子干渉計を用いた実験を行うことによって、近藤状態を通過した電子波の位相を観測することが可能になるのである。私は 2002 年以降、そのような研究を行ってきた [9, 10]。近藤効果に関しても研究を行い、直接的ではないものの、理論的に予想された  $\pi/2$  の位相変化と矛盾しない結果を得ている [11]。近年、より工夫された干渉計によって、この問題が肯定的に解決された [12]。

以上の結果は理論を確認しただけではないかと思われるかもしれない。しかし、このような一見 well-defined な (設定が明確な) 問題に対しても、2000 年以降、いくつかの実験が行われ、種々の混乱があった。例えば、2002 年の実験の論文では「アンダーソン模型だけでは近藤効果を理解することはできない」というやや過激な (結果的には誤った) 結論が記されている [13]。解決までに 10 数年を要したのである。このことは、制御された良い実験によって理論が検証され、次の展開が開かれていく、という物理学の堅実な発展のためには、(場合によっては) 多くの努力と歳月が必要であるという教訓を与えてくれる。

## 5-2. 非平衡ゆらぎ

電子はポテンシャル障壁を通過する際に、確率的に振舞う。つまり、電子はある確率で通過するものの、それ以外の電子は反射されてしまう。このような確率的な散乱過程によって、電流に「ゆらぎ (雑音)」が生じる。このゆらぎは、電子が電荷  $e$  を持つ粒子であることから生じるものであり、「ショット雑音」(ショット=粒) と呼ばれる [14]。

ひとたび近藤状態が完成してしまうと、熱平衡では近藤状態が電子を散乱させることはない。しかし、電圧を印加した非平衡状態では、近藤状態によって電子が散乱されるようになり、ショット雑音が発生する。2006 年以降、多くの理論家が、近藤状態におけるショット雑音が通常のポテンシャル障壁の場合の  $5/3$  倍に増大するという予言を行ってきた [15]。これは、近藤効果があることによって、電子が 1 つ反射される過程 [図 4(a)] だけでなく、2 つ同時に反射されるという散乱過程 [図 4(b)] が発生するためである。直感的には、近藤状態において多数の電子が極めて強く絡み合った状態を作っているため、そこに電子が一個やってくると、(あたかも水面に落ちた水滴から「しぶき」が飛び散るように) 二個の電子が散乱されるのである [16]。

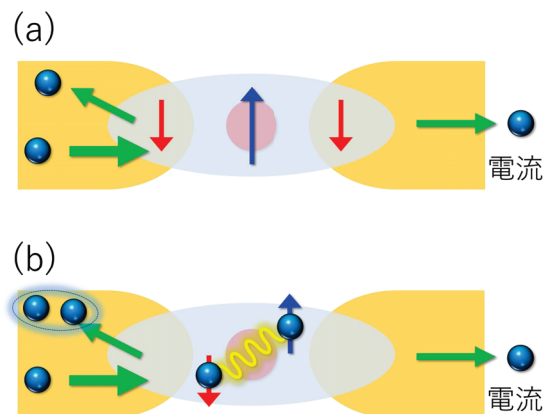


図 4. 近藤状態にある量子ドットにおける散乱過程。左から入射した電子は右へと通過していくが、その際、ある確率で反射され、電流にゆらぎ (雑音) が生じる。(a) は通常の 1 粒子散乱過程、(b) は近藤状態に特有の 2 粒子散乱過程である。



図4(b)には、強く絡み合った状態を生み出す「残留相互作用」を模式的に黄色い波線で示している。

我々はこの理論の実証に長年取り組み、実際にそのような散乱が起きていることを突き止めることができた [16–19]。近藤状態は、ある種の「量子液体」であることが確立しているが、私たちの研究は、量子液体に電子をぶつけたときに何が起るかを定量的に調べたことに相当している。非平衡状態における量子液体の振る舞いを理解することは、現在の物理学にとっても難問であるが、我々の知る限り、本研究は最も精密に非平衡における理論との比較に成功した実験である。

## 6. むすび

本稿では、量子ドットにおける近藤効果の研究について、駆け足で見てきた。近藤効果は古くからある問題だが、その中心には量子多体状態の形成という物理学の本質があり、その重要性は時が経っても全く色褪せない。物理学における重要な主題は、時代を超え、形を変えながら、何度も何度も現れてくるものである。近藤効果はそのような普遍的な主題の1つである。実際、微細加工技術によって初めて可能になった研究手法によって、近藤効果の研究に新展開がもたらされつつある。本稿によってそのことを感じ取っていただければ幸いである。

校正時追記：2020年11月3日、近藤淳先生が文化勲章を受賞されました。心よりお祝い申し上げます。

## 謝辞

本稿は、1999年以降現在に至るまで、私が東京大学 物性研究所 勝本研究室、スイス連邦工科大学チューリッヒ校 (ETH) Ensslin 研究室、京都大学 化学研究所 小野研究室、大阪大学 大学院理学研究科に在籍しながら進めてきた研究に基づいている。大学院生も含めて多数の方々と共にやってきた成果であり、共同研究者の皆様に深く御礼を申し上げます。

## 参考文献

- [1] 近藤淳, 日本物理學會誌 **51**, 415 (1996).
- [2] 近藤淳, 日本物理學會誌 **60**, 85 (2005).
- [3] J. Kondo, *Progress of Theoretical Physics* **32**, 37 (1964).
- [4] 樽茶清悟, 佐々木智, W. van der Wiel, 日本物理學會誌 **60**, 110 (2005).
- [5] D. Goldhaber-Gordon, *et al.*, *Nature* **391**, 156 (1998).
- [6] T. K. Ng, P. A. Lee, *Physical Review Letters* **61**, 1768 (1988).
- [7] L. I. Glazman, M. É. Raïkh, *JETP Letters* **47**, 452 (1988).
- [8] P. Nozières, *Journal of Low Temperature Physics* **17**, 31 (1974).
- [9] K. Kobayashi, H. Aikawa, S. Katsumoto, Y. Iye, *Physical Review Letters* **88**, 256806 (2002).
- [10] 小林研介, 相川恒, 勝本信吾, 家泰弘, 固体物理 **38**, 29 (2003).
- [11] M. Sato, H. Aikawa, K. Kobayashi, S. Katsumoto, Y. Iye, *Physical Review Letters* **95**, 066801 (2005).
- [12] S. Takada, *et al.*, *Physical Review Letters* **113**, 126601 (2014).
- [13] Y. Ji, M. Heiblum, H. Shtrikman, *Physical Review Letters* **88**, 076601 (2002).
- [14] 小林研介, 固体物理 **46**, 519 (2011).
- [15] 阪野墨, 小栗章, 小林研介, 固体物理 **47**, 475 (2012).
- [16] 小林研介, パリティ **32**, 16 (2017).
- [17] Y. Yamauchi, *et al.*, *Physical Review Letters* **106**, 176601 (2011).
- [18] M. Ferrier, *et al.*, *Nature Physics* **12**, 230 (2016).
- [19] M. Ferrier, *et al.*, *Physical Review Letters* **118**, 196803 (2017).

## 著者紹介



小林 研介

量子物性

東京大学 大学院理学系研究科 教授