

第4章 結論

本研究では、電場効果ドーピング C_{60} の構造と電子状態を調べるために密度汎関数理論に基づく第一原理計算を行った。この際に、 C_{60} 単層と電極層からなる2次元周期系のモデルを用いて電場効果を取り入れた。このモデルを用いた計算の結果、キャリア数が単位胞当たり1から3個程度と高濃度にドーピングした場合に次のような電場効果ドーピング特有の構造と電子状態の変化が起こることが明らかとなった。まず、電荷密度が C_{60} 分子の北半球(電極に近い半球)で大きく変化する。さらに、最も電荷密度の変化が大きくなる上端六角形では、この六角形を構成する C-C 結合が最大で7%程度長くなった。これに対して南半球では電荷密度の変化は小さく、結合長の変化も見られなかった。また、電極が作る一様電場と C_{60} 分子内での電荷密度分布の偏りによって、電子に働くポテンシャルが大きく変調され、バンド分散の変化や状態密度の構造の分裂が起こることが分かった。以上の結果は、定性的にはホールドーピングでも電子ドーピングでも変わらない。しかしながら、電子ドーピング C_{60} の方が構造の変化が大きく、それに伴って状態密度の分裂がよりはっきりしている。本研究では、 C_{60} 単層モデルの妥当性を調べるために $C_{60}(111)$ 層を3層用いたモデルにおいて、同様のキャリア数での計算も行った。その結果、Fermi 準位近傍の波動関数は表面層にしか振幅を持たないことが分かった。また、電荷密度も表面層で変化するだけで、内部層ではほとんど変化しなかった。これは、計算で仮定した高キャリア濃度の場合には、電子状態を議論するのに C_{60} 単層モデルで十分であることを示唆している。しかしながらキャリア濃度を低くすると、キャリアは内部へ広がり、単層モデルが適用できない。低キャリア濃度の場合として、キャリア数が単位胞あたり0.1個の計算を3層モデルで行い、これを確認した。また本研究では、Thomas-Fermi 法による計算も行った。その結果、やはり高キャリア濃度ではキャリアは表面付近に閉じ込められるが、低濃度になればなるほど内部へ広がっていくことが分かった。

本研究での計算方法やモデルには、いろいろな近似や仮定が含まれている。その1つは、FET 構造において電極と C_{60} の間に挿入されるゲート絶縁膜を、モデルでは真空中に置き換えたことが上げられる。実際の FET 構造では、 C_{60} の表面はこの絶縁膜に接している。したがって、絶縁膜の表面の状態によって C_{60} の電子状態が変わる可能性はある。しかし、絶縁膜表面にダングリングボンドなどが存在せず、さらに十分に平坦であれば、やはり一様な電場が C_{60} に掛かるので、絶縁膜表面の影響は小さいと期待される。また本研究では、分子の配向を3回軸が電場方向に向くことを仮定したが、実際にこの配向となるとは限らない。しかし分子の配向が変化しても、電場効果ドーピングによる構造と電子状態の変化は、定性的には上で述べた結果と変わらないと考えられる。ただし、バンド分散や状態密度の詳細な構造は大きく変化すると思われる。さらに、本研究での計算では電子間相互作用と電子格子相互作用が十分に取り入れられていない。アルカリ金属ドーピング C_{60} においてはこの2つの相互作用がその物性に大きな影響を与えることが明らかにされている。した

がって、この2つの相互作用は電場効果ドーピング C_{60} においても無視できないと考えられる。本研究では、電場効果ドーピング C_{60} はすべてのキャリア数で金属となったが、これら2つの相互作用によって、Mott 絶縁体あるいは Mott-Jahn-Teller 絶縁体と呼ばれる非磁性絶縁体になってしまう可能性は否定できない [65, 66]。したがって、電場効果ドーピング C_{60} における電子間相互作用と電子格子相互作用の大きさとその役割を調べることは今後の課題の1つである。