



| | |
|--------------|---|
| Title | Trions and Biexcitons in Semiconducting Carbon Nanotubes |
| Author(s) | 渡邊, 耕太 |
| Citation | 大阪大学, 2011, 博士論文 |
| Version Type | |
| URL | https://hdl.handle.net/11094/58599 |
| rights | |
| Note | 著者からインターネット公開の許諾が得られていないため、論文の要旨のみを公開しています。全文のご利用をご希望の場合は、大阪大学の博士論文についてをご参照ください。 |

The University of Osaka Institutional Knowledge Archive : OUKA

<https://ir.library.osaka-u.ac.jp/>

The University of Osaka

| | |
|---------------|--|
| 氏 名 | わた なべ こう た |
| 博士の専攻分野の名称 | 博 士 (理 学) |
| 学 位 記 番 号 | 第 2 4 3 2 5 号 |
| 学 位 授 与 年 月 日 | 平 成 23 年 3 月 25 日 |
| 学 位 授 与 の 要 件 | 学位規則第4条第1項該当 理学研究科物理学専攻 |
| 学 位 論 文 名 | Trions and Biexcitons in Semiconducting Carbon Nanotubes (半導体カーボンナノチューブ中の荷電励起子と励起子分子) |
| 論 文 審 査 委 員 | (主査) 教 授 小川 哲生 (副査) 教 授 赤井 久純 教 授 阿久津泰弘 教 授 野末 泰夫 准教授 浅野 建一 |

論 文 内 容 の 要 旨

光励起半導体中の電子・正孔が形成する様々な束縛状態は、光学過程において支配的な寄与を持つため、その詳細な解析は光半導体デバイス作成における基礎として非常に重要である。代表的な束縛状態として、非ドープ半導体中では一電子正孔対から成り、水素原子に類似した性質を持つ励起子や二励起子が作る水素分子様の励起子分子、またドープ半導体中では一励起子と一電子(正孔)から成る水素分子イオン類似の負(正)荷電励起子が存在し、以前から多くの研究が行われてきた。特に、量子井戸や量子細線といった低次元半導体では、キャリア閉じ込め効果による束縛エネルギーの増大が知られており、高温動作可能な光半導体デバイスへの応用が期待されている。

古くから研究されてきた半導体擬一次元系では、励起子束縛エネルギーはバンドギャップよりはるかに小さい。一方、本研究で扱う半導体カーボンナノチューブ(CN)はグラフェンを丸めた擬一次元系物質であり、バンドギャップと同程度の巨大な励起子束縛エネルギーを持つため、クーロン相互作用によるバンド間遷移に起因した多体効果が重要になる。また、グラフェンの特徴を反映した一粒子状態(バンド非放物線性と包絡関数)、谷縮重の自由度に起因する励起子エネルギーの微細構造を持つことが知られている。しかし、既存の半導体 CN における励起子分子や荷電励起子の理論では、通常の半導体擬一次元系と全く同じ模型が用いられているため、新たな物理的知見は得られていない。本研究では、半導体 CN 特有の性質(ナローギャップ半導体類似の性質、グラフェンの特徴を反映した一粒子状態、谷縮重に起因したエネルギー微細構造)に焦点を当て、通常の半導体擬一次元系と半導体 CN との相違を浮き彫りにする事を目指す。

理論的枠組みとして、有効質量近似を用いて一粒子状態を記述し、バンド非放物線性と包絡関数を取り扱った。また、多体効果として自己エネルギーとクーロン相互作用の遮蔽効果をそれぞれ、Screened Hartree-Fock 近似、及び静的 RPA を用いて考慮することで、多電子問題を準電子・準正孔の少数多体系の問題に帰着させ解析を行った。励起子分子や荷電励起子の固有値及び固有ベクトルの解析の際に、計算手法として数値厳密対角化法を用いた。

結果として、クーロン相互作用の遮蔽効果により励起子分子・荷電励起子束縛エネルギーが劇的に減少することが分かった。この減少は励起子分子により強く見られ、遮蔽効果を考慮した場合としない場合とで励起子分子と荷電励起子の発光ピーク位置が逆転することが明らかになった。また、短距離クーロン相互作用の強さを変える

ことにより光学許容な励起子分子・荷電励起子と光学禁制な励起子分子・荷電励起子エネルギーの上下が逆転することが分かった。

論 文 審 査 の 結 果 の 要 旨

カーボンナノチューブは単層グラファイト(グラフェン)を筒状に丸めた構造を持ち、擬一次元系の新しい研究の舞台として近年注目されている。その巻き方(カイラリティ)をうまく選ぶと、この系は半導体となる。ごく一般に、低次元半導体系において励起子(電子と正孔の束縛状態)の束縛エネルギーが閉じ込め効果によって増大することは良く知られているが、半導体カーボンナノチューブでは、特に閉じ込め効果が強く、かつ背景誘電率が小さいため、励起子の束縛エネルギーが数百 meV という桁外れに大きな値を持つ。このことから、室温動作する光デバイスへの応用も含め、半導体カーボンナノチューブの光学応答は実験的・理論的に近年盛んに調べられてきた。この事実の延長として、この系では励起子と電子(あるいは正孔)の束縛状態である荷電励起子や、励起子二個がさらに束縛した励起子分子が安定に存在する可能性があり、それらはそれぞれ、系をドープした場合、非線形光学応答を考えた場合に重要になる。本論文の主題はこれらの束縛状態の理論的な解明にある。

これまで、半導体カーボンナノチューブ上の荷電励起子や励起子分子の研究は、半導体上の量子細線と同じモデルを用いて行われてきた。本論文の最大の発見は、これらの束縛状態を考察する際に、比較的小さなギャップを持つ半導体やセミメタル系に対して用いられる特別な定式化を用いなければならないことを見出した点にある。その理由は、バンドギャップに対する特徴的な相互作用エネルギーの比が、ナノチューブの周長によらない値を持ち、しかも無視できるほどには小さくないためである。この観点は、典型的な半導体ナノチューブが eV オーダーの大きなバンドギャップを持つために、これまでしばしば見落とされてきたが、通常の半導体(GaAs 等)には見られないカーボンナノチューブ特有の重要な側面の一つと言える。その結果として、束縛状態はバンドの非放物線性、自己エネルギー補正、相互作用ポテンシャルの構造因子による変形、相互作用の遮蔽という四つの効果の影響を受ける。本論文では、ハミルトニアンの数値的対角化を用いた考察を行い、これらすべての効果を比較検討して、①遮蔽および構造因子の効果のために束縛エネルギーが大きく減少すること、および②遮蔽効果に対する敏感性が、励起子、荷電励起子、励起子分子の順に強くなり、これまでの一般的な常識を覆し、荷電励起子が励起子分子より大きな束縛エネルギーを持つ場合があることを明らかにしている。

本論文ではさらに、バンドの谷構造と、相互作用の短距離成分を反映して生じる束縛状態の微細構造についても考察している。この谷構造も半導体カーボンナノチューブ特有の性質である。荷電励起子や励起子分子のすべての微細構造をスピン状態、谷の電子配置、およびパリティーについて分類したのは、本論文がはじめてである。また、光学許容な束縛状態のエネルギーだけが谷内散乱と谷間散乱の強さの比に敏感で、それ以外の束縛状態はこの比にほとんど依存しないという興味深い事実も明らかにされた。

既存の研究では、半導体カーボンナノチューブの擬一次元系としての側面だけに焦点が当てられ、荷電励起子や励起子分子に関して、半導体量子細線系と本質的に異なる物理は見出されていなかった。これに対し、本論文は、半導体カーボンナノチューブ特有の新しい物理の側面を様々な角度から明らかにしている。この点において、本論文は当該研究分野に重要な一石を投じるものであり、博士(理学)の学位論文として十分価値があるものと認める。