

VII-6 ナノ構造物性グループ

1. メンバー

| | |
|-----|----------------|
| 准教授 | 岡田晋 |
| 研究員 | 小鍋哲、富田陽子 |
| 学生 | 大学院生 2名、学類生 3名 |

2. 概要

ナノスケール構造を持つ物質においては、その物性は系のサイズ、表面(端)形状等に非常に大きく依存することが知られている。このことは、他方において、既存の物質においても、物質のサイズをナノメートルオーダーとし、その形状を制御することにより、新奇物性、新機能発現を誘起させることが可能であることを示唆している。実際、興味深い物性を示す種々のナノスケール炭素物質群の合成が近年盛んになされている。例えば、有限幅のグラファイト断片(グラファイトリボン)はその端形状に依存して、端を構成する原子にスピン分極が生じる事が知られている。さらに、このリボンを丸めた有限長さのナノチューブでは、そのチューブ直径に依存して、強磁性、反強磁性磁気秩序を示す事が我々の量子論に基づく全エネルギー計算から明らかになっている。また、チューブに5員環と8員環からなるトポロジカル欠陥を導入することにより、欠陥にそって分極電子が局在しチューブ軸にそって強磁性的秩序を発現する。

我々のグループでは、ナノサイズ炭素系(ナノチューブ、フラーレン、グラファイト)の電子物性を理論的に解析することによって、サイズ、形状が誘起する特異な電子物性発現の可能性を探索する事を目的としている。

3. 研究成果

【1】カーボンナノチューブにおける多重励起子生成機構の解明

本論文では、単層カーボンナノチューブにおいて、多重励起子生成(一つの光子から複数個の励起子が生成されるプロセス)の微視的機構を調べた。多重励起子生成については、10数年にわたりゼロ次元物質である量子ドット分野で注目され、現象の理論的解明が試みられてきたが、これまで未解決である。これは、理論と実験との比較が困難なことや、理論モデリングが複雑なことが原因である。本研究は、カーボンナノチューブに注目する事で、量子ドットにおける理論解析の困難を克服し、多重励起子生成の微視的機構を明らかにした(図1)。

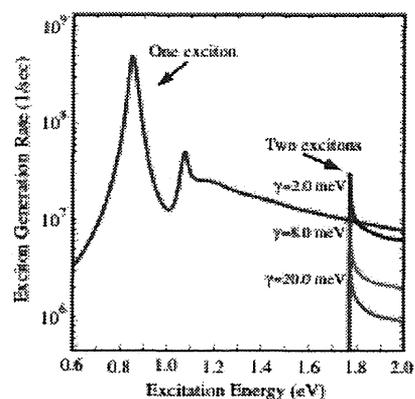


図 1

【2】カーボンナノチューブにおける励起子-キャリア散乱抑制機構の解明

本論文では、キャリアドープした半導体カーボンナノチューブにおいて、励起子の位相緩和ダイナミクスを調べるため、励起子-キャリア弾性散乱率を計算した。その結果、低次元性に伴う多体効果により、励起子-キャリア散乱が強く抑制されることがわかった(図2)。一般に、ドープした半導体では、この散乱は主要な励起子位相緩和プロセスであり、光吸収スペクトルの形状を決める。しかし、本研究により、従来の半導体光物性の常識が相互作用効果の強いナノスケール物質では全く成り立たないことが明らかになった。

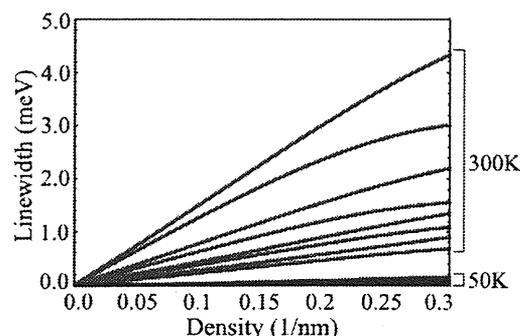


図2

【3】カーボンナノチューブにおける光電流の見積もり

本論文では、単層カーボンナノチューブにおいて、多重励起子生成機構による電流生成を理論的に調べた。カーボンナノチューブでは、多重励起子生成が高效率に起こることが知られているが、それがどの程度電流生成に寄与するかは明らかではなかった。本研究により、多重励起子生成に起因し電流生成も高效率に生じることがわかった(図3)。

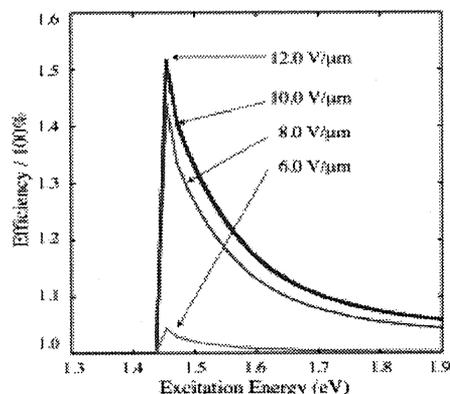


図3

【4】有限長カーボンナノチューブにおける特異な電界遮蔽効果

CNTは半導体デバイスとしての応用が期待されている。デバイス中においてはCNTは本質的に種々の異種物質との複合構造を形成している。そのなかで、電界はデバイスの機能制御において最も重要な広義異種物質である。ここでは、CNTを用いた電界効果トランジスタにおいて考えられる電界効果として、ソースドレイン電極間に架橋されたCNTの電界下における基礎物性を密度汎関数理論に基づく第一原理計算と有効媒質遮蔽モデルを用いて明らかにした。その結果、CNTのキャップ、終端水素に起因するC-C結合の結合交代が外部電界に対する遮蔽において非常に重要な影響を及ぼす事が明らかになった。すなわち、結合長の短い2重結合にかかわる炭素原子において電界遮蔽が強くおこり、結合長の比較的長い単結合領域において電界遮蔽が弱い事が明らかになった。さらに、ジグザグ端を有する有限長ナノチューブにおいては、其の端近傍において異常な電界遮蔽、すなわ

ち電界に対する過剰な遮蔽現象が生じる事が明らかになった。この事は、仮に電極からオーミックにキャリアが注入されたとしても、CNTのジグザグ端近傍においてキャリアが多重散乱を受ける事を示しており、デバイス設計において電極とのコンタクト形状の制御が非常に重要である事を明らかにしたものである。

【5】小さいフラーレンからなる新奇ナノカーボン物質

本研究では、炭素原子数が28個からなるC₂₈フラーレンに着目し、C₂₈フラーレン多面体からなる3次元ネットワーク構造の安定性と電子構造を密度汎関数論に基づく第一原理計算から明らかにした。その結果、C₂₈多面体から形成されるダイヤモンド構造を有する新奇炭素同素体の可能性が明らかになった。また、複数個の準安定構造が存在すること、それら全てが1eV程度の狭いバンドギャップを有する半導体であることが明らかになった。また、それらの準安定相は圧力誘起相転移において構造転移が可能であり、圧力によるバンドギャップエンジニアリングの可能性のある新しい炭素固体相である事を示した。

【6】2層グラフェンの電界による電子物性制御

2層グラフェンは面鉛直方向の電界下において有限のバンドギャップを形成する事が知られている。ここでは、外部電力を必要としない、有限ギャップを有する半導体化された2層グラフェン実現の方法を第一原理計算から理論的に予言した。すなわち、2層グラフェンを上面、下面をそれぞれ正のイオン性液体と負のイオン性液体とでサンドイッチすることにより、イオン性液体間の電気的なポテンシャル差を用いる事により2層グラフェンに有限のバンドギャップを誘起する事が可能となる。また、正、負のイオン性液体のイオン種の組み合わせにより、真性半導体、p型半導体、n型半導体と半導体のキャリアタイプの制御が可能である事を明らかにした。

4. 教育

集中講義:

名古屋大学 理学研究科物質理学専攻(化学系) 化学特別講義 7

5. 受賞、外部資金、知的財産権等

受賞 (賞の名称、受賞者名、タイトル、年月日)

1. 日本物理学会若手奨励賞、小鍋哲、カーボンナノチューブにおける励起子多体効果の理論、2012年3月
2. MNC25 Young Author's Award, 小鍋哲、Multiple exciton generation in graphene nano-ribbon, 2012年11月

外部資金 (名称、氏名、代表・分担の別、採択年度、金額、課題名)

1. 戦略的創造研究推進事業 CREST 「次世代エレクトロニクスデバイスの創出に資する革新材料・プロセス研究」(科学技術振興機構)(2009年度~2014年度) 「計算科学によるグラファイト系材料の基礎物性解明とそのデバイス応用における設計指針の開発」
(総額:82,100千円)

6. 研究業績

(1) 研究論文

1. Satoru Konabe and Susumu Okada: "Multiple Exciton Generation by A Single Photon in Single-Walled Carbon Nanotubes" *Physical Review Letters*, **108**, 227401 (2012).
2. Takuma Shiga, Satoru Konabe, Junichiro Shiomi, Takahiro Yamamoto, Shigeo Maruyama, and Susumu Okada: "Graphene-Diamond Hybrid Structure as Spin-Polarized Conducting Wire with Thermally-Efficient Heat Sinks" *Applied Physics Letters*, **100**, 233101 (2012).
3. Yoshiteru Takagi and Susumu Okada: "Electronic Structure Modulation of Graphene by Metal Electrodes" *Japanese Journal of Applied Physics*, **51**, 085102 (2012).
4. Ayaka Yamanaka and Susumu Okada: "Electronic Properties of Carbon Nanotubes under an Electric Field" *Applied Physics Express*, **5**, 095101 (2012).
5. Donghui Guo, Takahiro Kondo, Takahiro Machida, Keigo Iwatake, Susumu Okada, and Junji Nakamura: "Landau levels under zero magnetic field on potassium intercalated graphite" *Nature Communications*, **3**, 1068 (2012).
6. Yoshiteru Takagi and Susumu Okada: "Modulation of Electron-states of Graphite Thin Films by the Nearly Free Electron States of Metal Surfaces" *Japanese Journal of Applied Physics*, **51**, 100203 (2012).
7. Satoru Konabe and Susumu Okada: "Robustness and Fragility of Linear Dispersion Band of Bilayer Graphene under an Electric Field" *Journal of the Physical Society of Japan*, **81**, 113702 (2012).
8. Mina Maruyama and Susumu Okada: "Elemental semiconductors of fused small fullerenes: Electronic and geometric structures of C₂₈ polymers" *Journal of the Physical Society of Japan*, **81**, 114719 (2012).
9. Satoru Konabe, Kazunari Matsuda, and Susumu Okada: "Suppression of Exciton-Electron Scattering in Doped Single-Walled Carbon Nanotubes" *Physical Review Letters*, **109**, 187403 (2012).
10. Soon-Kil Joung, Toshiya Okazaki, Susumu Okada, and Sumio Iijima: "Modest Response of Metallic Single-Walled Carbon Nano-tubes to C₆₀ Encapsulation Studied by Resonance Raman Spectroscopy" *Journal of Physical Chemistry C* **116**, 23844–23850 (2012).
11. Nguyen Thanh Cuong, Minoru Otani, and Susumu Okada: "Electron-state engineering of bilayer graphene by ionic molecules" *Applied Physics Letters*, **101**, 233106 (2012).
12. Masafumi Kubota, Shigenori Hayashi, Mototsugu Ogura, Yuichiro Sasaki, Susumu Okada, and Kikuo Yamabe: "Effects of Plasma Irradiation in Arsenic Plasma Doping Using Overhang Test Structures" *Japanese Journal of Applied Physics*, **52**, 021301 (2013).
13. Nguyen Thanh Cuong, Minoru Otani, and Susumu Okada: "Absence of Edge State near the 120 deg Corner of Zigzag Graphene Nanoaribbons" *Physical Review B* **87**, 045424 (2013).
14. Rieko Moriya, Kazuhiro Yanagi, Nguyen Thanh Cuong, Minoru Otani, and Susumu Okada: "Charge Manipulation in Molecules Encapsulated Inside Single-Wall Carbon Nanotubes" *Physical Review Letters* **110**, 086801 (2013).

(2) 招待講演

岡田晋: "グラファイト複合構造体の物性" ニューダイヤモンドフォーラム 平成24年度第1回研究会「ナノカーボンの最新研究」東京大学(東京) 2012年6月15日

(3) 新聞発表

1. 日刊工業新聞、 “ナノチューブ太陽電池：シリコン上回る計算 “、2012年5月30日
2. 日刊工業新聞、 “グラフェンの半導体化：シミュレーションで解明 “、2012年12月3日