

カーボンナノ構造における動的電子相関と光学応答

研究代表者 鈴浦秀勝（北海道大学大学院工学研究科）

カーボンナノチューブは炭素の同素体のひとつで炭素原子から構成される直径がナノメートル程度の円筒形状を持つ擬1次元物質である。別の同素体である黒鉛は炭素原子による2次元平面を積層した構造を持つが、ナノチューブはこの平面を丸めてつなげたものとみなすこともできる。炭素原子の sp_2 混成軌道による2次元平面ネットワーク構造はグラフェンと呼ばれ、これを基本単位として1, 2, 3次元のカーボンナノ構造が形成されていることになる。これらの電子状態は質量がゼロの相対論的ディラック方程式で記述され、通常の有効質量を持つ非相対論的シュレディンガー方程式に従う電子とは異なる特異な物性を示すことから、近年、基礎物理から工学的応用に至る多方面で注目を集めている。本研究の目的はこれらのカーボンナノ構造における動的電子相関と光学応答を理論的に解明することにある。

半導体の光学応答を理解するには、原理的には、光励起によるバンド間遷移で生成された電子・正孔系の時間発展を追跡すればよい。それは多体励起状態に内在する動的電子相関を理論的に解析することとほぼ同義であるが、光励起状態を記述する多くの理論は電子と正孔が高密度に励起された極限で正当化される平均場近似に立脚しており、相関効果の取り扱いとは言い難い。さらに、低次元系では量子揺らぎにより平均場理論が正当化されないという大きな問題があり、カーボンナノチューブの光学応答の理論を展開する事は、一見、困難に思われる。しかしながら、電子と正孔の束縛状態である励起子に着目すると別の道が見えてくる。

電子を狭い空間に閉じ込めて運動を制限すると相互作用の効果が増強される。半導体における励起子効果の顕著な増強はその典型例であり、低次元系の光学応答は電子と正孔の運動というよりは電子と正孔が強く束縛した電荷中性の励起子を素励起としてダイナミクスを記述する方が良い描像となる。具体的には、バルク（3次元）半導体の光吸収は、おおまかには、相互作用による相関のない電子・正孔ペアの生成による連続スペクトルに束縛状態である励起子の離散スペクトルが付加されるのに対し、1次元系における光吸収は励起子状態の寄与が、連続状態の寄与が無視できる程、支配的となる。カーボンナノチューブにおける励起子の束縛エネルギーは数百 meV と、GaAs のバルクにおける数 meV、量子井戸（2次元）における数十 meV などと比較して巨大な値を持ち、室温においても光励起状態で励起子が安定に存在し得る。

本研究では、手始めに、ナノカーボン構造の特異な電子状態に起因した光学特性を明らかにし、特に、カーボンナノチューブの励起子状態の特徴を正確に捉えた有効モデルを構築する。実験グループと協力し実験データと計算結果を比較しながらモデルを精密化し、線形光学応答の定量的な記述を行い、光学的性質の決定に必要な不可欠な相互作用を同定する。続いて、強励起状態を少数励起子系とみなした場合に発現する動的相関効果がどのように非線形光学応答に反映されるかを解明

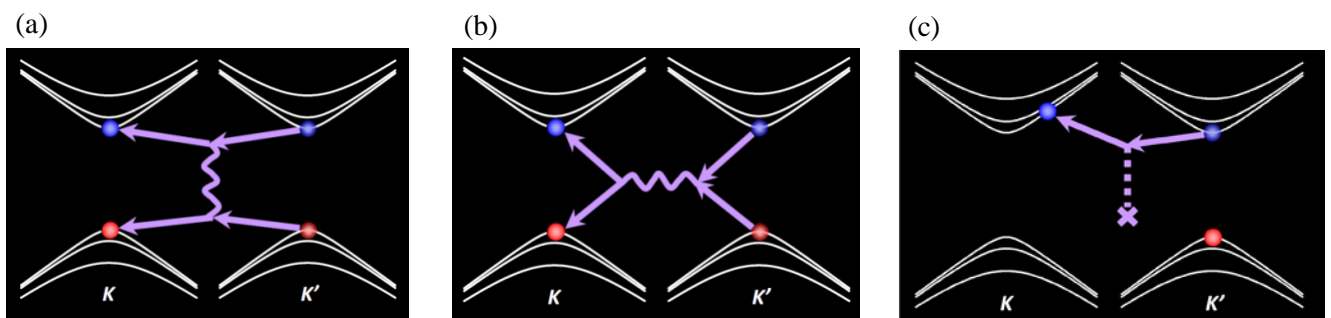
する。最終的には、カーボンナノ構造に留まらず一般の低次元系の光励起状態における電子間相互作用を特徴づける物理量を有効模型から提案し、動的電子相関効果を議論する理論的枠組みの構築を目標とする。

グラフェンのエネルギーバンドが有する多谷構造に起因する擬スピン自由度はグラフェン・カーボンナノチューブに特徴的な量子輸送現象をもたらすが、ナノチューブの光学応答においては複雑な励起子微細構造として反映される。光学活性な明励起子はひとつしか存在しないために、励起子効果により振動子強度が増大しても光学不活性な暗励起子が最低エネルギー状態の場合は、電子・正孔状態として速い非輻射緩和により行きつく先からの基底状態への遷移が禁制となるため発光スペクトル強度は著しく抑制される。多くの実験結果は暗励起子が最低エネルギー状態であることを現状では示唆しているが、逆の結果を示すデータも存在する。最後に、この研究プロジェクトで現在までに得られた励起子微細構造に関する成果を紹介する。

多谷構造による縮退を解くには、短距離相互作用により電子・正孔に大きな運動量変化を与える必要がある。近距離の電子間相互作用の発散を切断するパラメータを導入し電子・正孔間の直接・交換クーロン相互作用を詳細に検討した結果、明・暗励起子のエネルギー分裂に螺旋度（ナノチューブの構造）に依存した補正項が存在して明励起子が最低エネルギー状態となる可能性があることが明らかになり、この螺旋度に関する依存性は現状の実験結果とも整合している。格子欠陥などによる短距離相互作用もまた、励起子微細構造に変調を与える可能性がある。単一の欠陥が存在する場合を調べた所、明・暗励起子の混成は生じないことが明らかとなった。

参考文献

- [1] T. Oshima, K. Matsuno, and H. Suzuura, to be published in Physica E.
- [2] Y. Tomio and H. Suzuura, to be published in Physica E.



相互作用の概念図：(a) 電子・正孔間の直接相互作用。(b) 電子・正孔間の交換相互作用。
(c) 格子欠陥による散乱。この図は K'点周りの谷において光励起された伝導体の電子が不純物によりもう一方の K 点の谷に散乱される過程を表している。