

第 10 回ナノカーボンセミナー

『第一原理 Bethe-Salpeter 方程式計算に基づく 水分子吸着カーボンナノチューブの光物性の研究』

鈴木 康光 (理学部物理・助教)

2017 年 4 月 13 日 (木) 16 : 10–17 : 40

東京理科大学 神楽坂キャンパス 833

カーボンナノチューブ (CNT) が示す特徴的な光学特性に対して、ナノサイズの光デバイス開発への応用への期待から広く研究が行われている[1]。吸収・発光特性の制御は重要な研究課題の一つであるが、CNT がおかれている環境 (CNT 周囲の溶媒や気相分子、吸着分子) の変化によって、吸収・発光スペクトルのピークがシフトすることが知られており、環境効果と呼ばれている。これは従来、CNT 内の誘電率の変化が CNT 内にできる励起子状態の安定性を変えるためとして解釈されている[2]。

一方、最近の研究[3]により、水雰囲気下の CNT において水分子が CNT 周囲に吸着することが示され、広く注目を集めている。この水分子吸着によって、CNT の吸収・発光スペクトルのピークは長波長側にシフト (red shift) することが報告されており、CNT の光学特性を理解・制御する上で重要な実験事実として興味を持たれている。この red shift のメカニズムに関しても、CNT 周囲の水がもたらす誘電率の変化が CNT の励起子状態を安定化させるためとして解釈されているが、さらに詳細な機構の解明のためには、第一原理計算に基づく定量的な解析が望まれる。

本研究では、密度汎関数理論および第一原理多体摂動論に基づく誘電関数の計算を行い、水吸着がもたらす光物性の変化について第一原理的に調べた。まず、真空中に CNT 単体をおいた計算セル、および CNT 周囲に水分子を 5 個あるいは 10 個吸着させた計算セルを用意し、独立粒子-乱雑位相近似に基づく手法でそれぞれの誘電関数を計算したところ、吸着水分子数の増加に伴い吸収スペクトルのピークが red shift するという結果を得た。これは、水分子が吸着することで、水分子と CNT の電子状態の間に相互作用が起こり、バンドギャップが縮小することによるものであることを明らかにした[4]。次に、以上の結果が、電子の自己エネルギーおよび励起子効果を含めたときにも成り立つかを明らかにするために、GW 近似と Bethe-Salpeter 方程式による誘電関数の計算を行った。その結果、自己エネルギー補正および励起子効果を含めた計算においても、水分子吸着による red shift が再現されることを明らかにした。ただし、今回は限られた吸着構造に対しての結果である。その他の検討すべき課題についても併せて発表する。

[1] Y. Miyauchi, M. Iwamura, S. Mouri, T. Kawazoe, M. Ohtsu, and K. Matsuda, *Nature Photon.* **7**, 715 (2013).

[2] Y. Miyauchi, R. Saito, K. Sato, Y. Ohno, S. Iwasaki, T. Mizutani, J. Jing, and S. Maruyama, *Chem. Phys. Lett.* **442**, 394 (2007).

[3] Y. Homma, S. Chiashi, T. Yamamoto, K. Kono, D. Matsumoto, J. Shibata, and S. Saito, *Phys. Rev. Lett.* **110**, 157402 (2013).

[4] D. Iwasaki, Y. Suzuki, and K. Watanabe, *Appl. Phys. Express* **10**, 045101 (2017).

問い合わせ：小鍋哲 (総合研究院 ナノカーボン研究部門)