

Title	Behavior of photocarrier in atomically thin two-dimensional semiconducting materials for optoelectronics(Abstract_要旨)
Author(s)	Kozawa, Daichi
Citation	Kyoto University (京都大学)
Issue Date	2015-03-23
URL	http://dx.doi.org/10.14989/doctor.k19096
Right	許諾条件により本文は2015/05/02に公開; 許諾条件により要旨は2015/05/02に公開
Type	Thesis or Dissertation
Textversion	ETD

(続紙 1)

京都大学	博士 (エネルギー科学)	氏名	小澤 大知
論文題目	Behavior of photocarrier in atomically thin two-dimensional semiconducting materials for optoelectronics (オプトエレクトロニクスに向けた原子層二次元半導体における光キャリアの挙動に関する研究)		
(論文内容の要旨)			
<p>本論文は、原子層半導体物質において、オプトエレクトロニクス (光・電子) デバイスの設計に向けて必須となる光キャリアの挙動について、論じた結果をまとめたものであり 6 章から構成されている。</p> <p>第 1 章は序論で、本研究のエネルギー科学上また社会的な意義について述べ、これまでに行われた関連する研究について解説し、本論文の目的について述べている。</p> <p>第 2 章では、本研究の基となる、原子層半導体物質の酸化グラフェン (GO)、遷移金属ダイカルコゲナイド (TMD) の基本的な光・電気伝導特性について述べている。</p> <p>第 3 章では、遠心分離により選択的に得られた、100 nm 程度の比較的小さな GO シートにおいて、青色および紫外領域における発光が観測されることを示し、この発光機構を詳細に調べている。これらの発光起源は、ベンゼン環数個に酸素官能基が共有結合した分子様の発光種であり、これらが GO シート中に埋め込まれたような状況で、発光していることを明らかにしている。</p> <p>第 4 章では、1 μm 程度の比較的大きな GO シートにおいては、近赤外から青色領域の幅広い領域で発光が観測され、この光吸収・発光機構について調べている。これらの発光は、GO シート中に埋め込まれた、数 nm 程度のナノサイズのグラフェン領域 (ナノディスク) から生じていることを明らかにしている。これらグラフェンナノディスク中の光励起状態については、電子と正孔とのクーロン相互作用を考慮する必要があると、これらを考慮することで、光学遷移のエネルギーを説明できることを、発光励起分光と第一原理計算の結果から明らかにした。これら第 3 章と第 4 章で得られた知見から、これまで議論が続いてきた GO の発光機構を、包括的に理解するためのモデルを提示している。さらに、その中での光キャリアは、エネルギーギャップの大きい (サイズが小さい) ナノディスクから、小さい (サイズが大きい) ナノディスクへと、エネルギー移動をしながら緩和していくことを、実験ならびにモデル計算より示している。このエネルギー移動が GO での発光効率に寄与し得ることから、発光デバイスへの展開に向けた、その効率向上のための指針を見出している。</p> <p>第 5 章では、単層および二層の TMD シートにおける光キャリア生成および緩和過程を調べている。光反射測定、発光励起分光測定の実験結果と第一原理計算の計算結果との対応から、高エネルギー (青色) 領域の非常に強い光吸収は、エネルギーバンド構造の平行な領域、つまりバンドネスティングに起因することを示している。さらに、光キャリアの緩和経路が励起エネルギーに強く依存すること、及び、高エネルギー励起でホットキャリアが効率的に生成されることを示している。このホットキャリアを外部に取り出すことができれば、より高い電圧、</p>			

多くの光電流を取り出せることになり、TMDは次世代の非常に効率の高い太陽電池や、高感度光検出器として利用可能であると期待される。これらを考慮することで、高効率エネルギー生成および利用に向けた、TMDのデバイスの設計指針を示している。

第6章では、本論文の総括と結論を記述している。さらに本論文で得られた知見を基に、これらの原子層半導体物質のエネルギー利用への展望と、研究課題に対して明確な指針を提示している。

これらの研究成果は、原子層半導体物質のエネルギー利用を目指した、新しい光・電子機能デバイスの設計指針を示したという、工学的な意義とともに、原子層半導体物質の本質的な光学特性の解明という、基礎科学への重要な寄与を行っている。よって、本論文は博士（エネルギー科学）の学位論文として価値あるものと認める。

(続紙 2)

(論文審査の結果の要旨)

本論文は、原子層半導体物質を利用したオプトエレクトロニクス(光・電子)デバイスの設計に向けて、必須となる光キャリアの挙動について研究した結果をまとめたものであり、得られた主な成果は次のとおりである。

本論文では、酸化グラフェン(GO)の発光波長可変であるという、その光学材料としての利点に対して、発光中心のサイズによって、発光エネルギーが紫外から近赤外の幅広い領域で変化していく機構を体系的に説明している。さらに、GO中のナノグラフェンのサイズが大きい場合は、ナノグラフェン間でエネルギー移動が効率的に起こるといふ、光励起状態のダイナミクスを明らかにしている。このエネルギー移動過程が、GOの発光効率に寄与し得ることから、デバイス応用に向けた発光効率の向上指針を見出している。

遷移金属ダイカルコゲナイド(TMD)に関しては、光吸収が非常に大きいという、光学材料としての利点に対して、その巨大な光吸収機構を解明している。ここでは、励起する光エネルギーに依存して、異なるバンドが励起され、光吸収・緩和経路が変化する機構を明らかにしている。さらに高いエネルギーでの励起により、効率的にホットキャリアを生成しうることを示している。このホットキャリアを外部的に取り出すことができれば、より高い電圧、多くの光電流を取り出せることになり、高効率な太陽電池の活性層となりうることを期待できる。これらを考慮することで、TMDのエネルギー利用に向けたデバイス設計指針を示している。

これらの研究成果は、原子層半導体物質における光キャリアの特異な挙動を明らかにするとともに、新しい光機能電子デバイスの実現に向けた設計指針を示したという、工学的な意義とともに、原子層半導体物質の本質的な光学特性の解明という、基礎科学への重要な寄与を行っている。

よって、本論文は博士(エネルギー科学)の学位論文として価値あるものと認める。また、平成27年2月24日実施した論文内容とそれに関連した試問の結果合格と認めた。

論文内容の要旨、審査の結果の要旨及び学位論文の全文は、本学学術情報リポジトリに掲載し、公表とする。ただし、特許申請、雑誌掲載等の関係により、要旨を学位授与後即日公表することに支障がある場合は、以下に公表可能とする日付を記入すること。

要旨公開可能日： 2015年 5月 2日以降