

## 二次元多谷半導体系におけるポリ励起子

### [1] 要旨

ポリ励起子は、複数個の励起子（電子と正孔の束縛状態）が結合した多量体である。一般の半導体では、励起子の二量体（励起子分子）は形成されるが、三量体以上のポリ励起子は形成されない。電子（正孔）がスピン自由度以外に内部自由度を持たないため、パウリ排他律により、二個以上の電子（正孔）が同じ位置を占めることができないからである。本研究では、二重二層グラフェンのタイプ II 構造を念頭に、電子と正孔がそれぞれ異なる二次元面に閉じ込められ、スピンだけでなくバンドの多谷構造に由来する四つの内部自由度を持つ系を考察し、パウリ原理の制限緩和により、励起子の三量体および四量体が形成されることを、量子拡散モンテカルロ法を用いて数値的に厳密に示した。さらに、ポリ励起子のエネルギーを解析して、すべての励起子同士の間には等価な結合エネルギーを持つ化学結合が形成されていることを見出した。

### [2] 本文

強く光励起された真性半導体やタイプ II 型の半導体構造では、伝導帯を占有する電子と、価電子帯の電子の抜け穴（正孔）が同数共存している系を実現できる。一对の電子と正孔が存在すると、これらは Coulomb 引力により束縛状態（励起子）を形成する。また、二対の電子と正孔対が存在すると、これらは励起子の二量体（励起子分子）を形成する。これらはそれぞれ水素原子と水素分子の類似物である。しかし、水素原子の三量体が存在しないのと同様に、通常の半導体では三量体以上のポリ励起子は形成されない。電子（正孔）がスピン自由度以外の内部自由度を持たない場合、パウリ排他原理により、二個以上の電子（正孔）が同時に接近できないからである。しかし、バンドが複数の最小点（谷）を持つ半導体では、電子や正孔がスピン自由度に加えて谷自由度を持つため、パウリ排他原理の制限の緩和により、三量体以上のポリ励起子が形成され得る。この可能性は Wang と Kittel により 1972 年に指摘され、バルクのシリコンやダイヤモンドでは、ポリ励起子由来のエネルギー的に等間隔に並んだ発光スペクトルピークが実測されている。

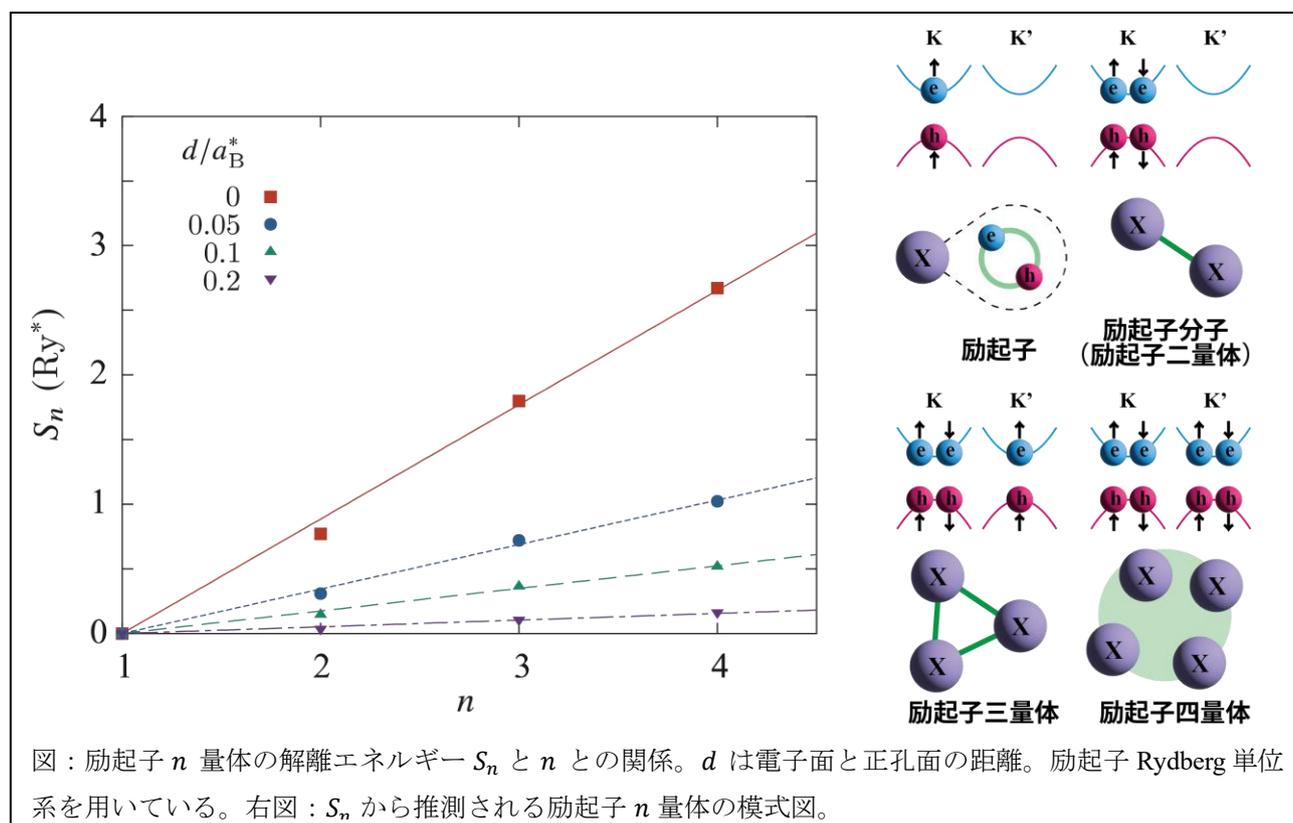
最近、大阪大学全学教育推進機構と大学院理学研究科物理学専攻の理論グループは、二重二層グラフェンのタイプ II 構造が、新しいポリ励起子研究の場として有望だと考え、空間的に離れた二つの二次元面に閉じ込められた電子と正孔が、ともにスピン自由度 2 と谷自由度 2 に由来する内部自由度 4 を持つモデルを考察した。拡散量子モンテカルロ法を用いて、励起子  $n$  量体 ( $1 \leq n \leq 4$ ) の基底エネルギーを数値的に厳密に求めた結果、励起子  $n$  量体 ( $X_n$ ) の解離エネルギー（励起子  $n$  量体から励起子 1 個を分離する際に必要なエネルギー）が  $n$  に比例することを見出した。直観的に言えば、この結果はポリ励起子を形成するすべての励起子間に同等な化学結合が形成されていることを示すものである。この成果は JPSJ の 2023 年 7 月号に掲載された。

二重二層グラフェンのタイプ II 構造では、電子と正孔のエネルギーバンドが共に二つの谷（K 点と K' 点）を持ち、しかも電子と正孔が空間的に離れた二次元面に閉じ込められているため、再結合が抑制されて長い寿命を獲得している。そのため、励起子三量体および四量体形成のための必要条件がそろった状況が実現している。励起子四量体を考えるには、電子と正孔の八体問題を扱う必要がある。一般にはその理論的扱いは難しいものになるが、この系の基底状態では、電子

および正孔がすべて異なる内部自由度を持って、パウリ原理に抵触することなく節無しの波動関数を形成するため、負符号に悩まされることなく拡散量子モンテカルロ法を適用することができ、数値的にはあるが、厳密な基底エネルギーや波動関数を求めることができる。

計算によって得られた励起子  $n$  量体の分離エネルギー（ $n$  量体を  $n-1$  量体と励起子に分離するのに要するエネルギー）は、僅かなずれを除けば励起子数  $n$  に比例していることが分かった（図（左））。この結果はバルク系（三次元系）の実験で観測されている、発光スペクトルピークがエネルギー的に等間隔に整列する現象と同様の物理が、二次元にも内在していることを示している。

直観的に言えば、上記の比例関係はポリ励起子の全ての励起子対の間に等しい化学結合ができていることを表している。励起子二量体 ( $X_2$ ) では二つの励起子がダンベル型に配置、励起子三量体 ( $X_3$ ) では三つの励起子が正三角形型に配置すると考えれば、すべての励起子間に等価な結合が形成されることを説明できる（図（右））。しかし、励起子四量体 ( $X_4$ ) では、すべての励起子間の距離が等距離になるような幾何学的配置を考えることはできない。つまり、励起子四量体の内部では励起子が液滴のように振舞っていると考えられる。この結果は、従来の化学結合とは異なる新しい物質の存在様式を提示している可能性がある。



原論文（2023年6月23日公開済）

Polyexcitons in Two Dimensions

K. Ooe, A. Miyamae, and K. Asano, J. Phys. Soc. Jpn. **92**, 073702 (2023).

<情報提供：浅野 建一（大阪大学全学教育推進機構）>