

論文 / 著書情報
Article / Book Information

題目(和文)	特異な金属カルコゲン化物コロイドナノ結晶の合成、構造ならびに電気特性
Title(English)	Syntheses, Structures and Electronic Properties of Unconventional Metal Chalcogenide Colloidal Nanocrystals
著者(和文)	MIRANTI RETNO
Author(English)	Retno Miranti
出典(和文)	学位:博士(学術), 学位授与機関:東京工業大学, 報告番号:甲第11656号, 授与年月日:2020年9月25日, 学位の種別:課程博士, 審査員:松下 伸広,矢野 哲司,神谷 利夫,生駒 俊之,宮内 雅浩,SATRIA ZULKARNAEN BI,岩佐 義弘
Citation(English)	Degree:Doctor (Academic), Conferring organization: Tokyo Institute of Technology, Report number:甲第11656号, Conferred date:2020/9/25, Degree Type:Course doctor, Examiner:,,,,,,
学位種別(和文)	博士論文
Category(English)	Doctoral Thesis
種別(和文)	審査の要旨
Type(English)	Exam Summary

論文審査の要旨及び審査員

報告番号	甲第	号	学位申請者氏名	Miranti Retno
		氏 名	職 名	
論文審査	主査	松下伸広	教授	宮内雅浩
審査員	審査員	矢野哲司	教授	Satria Bisri
		神谷利夫	教授	岩佐義宏
		生駒俊之	教授	

論文審査の要旨 (2000 字程度)

本論文は“Syntheses, Structures and Electronic Properties of Unconventional Metal Chalcogenide Colloidal Nanocrystals”(特異な金属カルコゲン化合物コロイドナノ結晶の合成、構造ならびに電気特性)と題して英文にて記述され、下記の様に Chapter 1～7 の 7 章で構成されている。

Chapter 1 “Introduction”では、コロイドナノ結晶半導体の概念とその伝導特性について概説すると共に、テルル化鉛(PbTe)コアと硫化鉛(PbS)シェルからなる特異なコアシェル構造をもつ PbTe@PbS ナノ結晶、ならびに鉛やカドミウムを含まないナノ結晶である硫化錫(SnS)について述べた上で、本論文の章構成を説明している。

Chapter 2 “Charge Carrier Transport of Core@Shell Nanocrystal Assembly”では、コロイドナノ結晶集合体を用いた電界効果型トランジスタ(FET)を構築した。Pb-カルコゲナイドのナノ結晶集合体 FET は一般に電子とホールがともに電気伝導に寄与する両極性伝導を示すのに対して、本研究で取り組んだ PbTe@PbS ナノ結晶集合体 FET は、電子による n 型伝導特性のみを示すことを報告した。コアシェル構造による伝導キャリアのタイプ制御は初めての例で、今後のナノ結晶集合体の伝導性制御に重要な指針を与える結果である。その原因として、PbTe@PbS ナノ結晶の電子構造が Type II 型ヘテロ接合であり、PbS シェルがホール伝導の大きな障壁となっているためであると説明している。

Chapter 3 “Intrinsic Properties of Core@Shell Nanocrystals Assembly”では、まずゲート電極とナノ結晶集合体の間にイオン液体を介在させる電気二重層 FET を作製し、ゲート電圧によって誘起されるキャリア密度を $> 10^{14} / \text{cm}^2$ と通常の FET よりも大幅に増加させることに成功した。その上で、表面に通常 p 型配位子として働く OH⁻ および S²⁻ を被覆した PbTe@PbS ナノ結晶集合体の電気伝導特性が n 型のみとなることを示し、PbTe@PbS ナノ結晶集合体においては n 型が本質的な伝導特性であることを確認した。さらに、同ナノ結晶集合体が、高い電子ドープ量 $9.18 \times 10^{12} / \text{cm}^2$ および高い移動度 $3.4 \text{ cm}^2 / \text{V.s.}$ を示すこと、その特性が type II のヘテロ接合特性と矛盾しないことを明らかにしている。

Chapter 4 “Electrical and Stability Enhancement”では、表面をヨウ素イオンで被覆した PbTe@PbS ナノ結晶集合体において、電界効果移動度が $3 \times 10^{-3} \text{ cm}^2 / \text{V.s.}$ と二倍程度向上する共に、高い電子密度が実現されていることを報告している。さらに、n 型伝導特性が長期間に亘って安定することを示し、コアシェル構造に加えて表面に適切な表面修飾を行うことが実用的な応用に重要であると述べている。

Chapter 5 “Synthesis and Properties of SnS Colloidal Nanocrystals”では、鉛フリーの SnS コロイドナノ結晶を扱っている。コロイドナノ結晶の合成に通常用いられるホットインジェクション法では小さな直径をもつナノ結晶が得られないため量子閉じ込め効果を観測できないという問題点を指摘した上で、ビーカー内で合成可能な単純且つ新規な合成プロセスであるワンポッド法を提案し、これによって SnS コロイドナノ結晶を、従来報告例の無い最小平均直径 4.6 nm、かつ狭い直径分布で合成することに成功している。その結果、直径 7 nm 以下で、直径を小さくすることによってバンドギャップが増加する量子閉じ込め効果を、SnS コロイドナノ結晶で始めて観測した。また、同ナノ結晶が励起子ピークを持たない光吸収スペクトルを示すことを指摘し、これが SnS の間接遷移型のバンド構造に由来する特性であると説明している。

Chapter 6 “Conclusions”では、本研究で得られた各研究成果をまとめて、結論を記している。

Chapter 7 “Thesis Philosophy and Future Prospect”では、本論文の学術的な意義を客観的視点に基づいて説明すると共に将来展望について述べている。

以上を要するに、本研究はコアシェル型コロイドナノ結晶や鉛フリーのコロイドナノ結晶など特異な金属カルコゲン化合物コロイドナノ結晶の新たな合成方法を提案すると共に電気伝導特性を明らかにするなど、コロイドナノ結晶の研究分野の発展に寄与する学術的知見を与えている。よって本研究は博士(学術)の学位論文として十分価値あるものと認められる。