

Second-Order Nonlinearity of Excitons in hBN-Encapsulated Monolayer Transition Metal Dichalcogenides

M23海自27

派遣先 2023 Conference on Lasers and Electro-Optics/
Europe – European Quantum Electronics Conferences
(CLEO/Europe-EQEC) (ドイツ・ミュンヘン、ドイツ・ケルン)

期 間 2023年6月25日～2023年7月21日 (27日間)

申請者 京都大学 大学院 理学研究科 博士課程後期2年 高 橋 伸 弥

海外における研究活動状況

研究目的

単層遷移金属ダイカルコゲナイド (TMDs) は次世代の光電子デバイスへの応用が期待されている半導体である。単層TMDsの光学応答は、電子正孔対である励起子によって支配されることが知られている。しかしながら、試料品質の問題や測定手法の制約などから、励起子のエネルギー準位構造等の特性にまだ未解明な点が存在する。本研究は、高品質な単層TMDs試料に対して非線形光学測定を行い、励起子特性を解明することを目的とする。

海外における研究活動報告

申請者は2023年6月25日から6月30日にドイツ・ミュンヘンで開催された国際学会「2023 Conference on Lasers and Electro-Optics/Europe – European Quantum Electronics Conferences (CLEO/Europe-EQEC)」に参加した。本学会は発表者だけでも千人程度と、光関連で最も規模が大きな国際学会の一つであり、2年に1回開催されている。申請者は、「Second-order Nonlinearity of Excitons in hBN-encapsulated Monolayer Transition Metal Dichalcogenides」

という題目でポスター発表を行った上、他の発表を聴講することで最新の研究動向を調査した。

単層遷移金属ダイカルコゲナイド (TMDs) 励起子は、他のバルク半導体と異なって非水素様のエネルギー準位構造を有することが知られている。しかし、その要因に関しては、薄膜であることによる誘電遮蔽効果の減少やベリール曲率の影響など複数挙げられており、これまで統一した見解は得られていない。申請者は、別の層状物質であるhBNで封止した高品質な単層TMDs試料に対して、2次非線形光学応答を調べる和周波分光を行った。線形分光で観測されるs系列に加え、非線形分光でのみ観測可能なp系列励起子の観測に成功した。遷移金属とカルコゲンの種類を系統的に変えて測定を行い、励起子準位構造と電子バンド構造の間に相関があることを見出した。さらに誘電遮蔽効果やベリール曲率の影響等を考慮した数値計算を行ったところ、励起子束縛エネルギーがほとんど励起子半径によって決まっている可能性が示唆された。この成果を発表し、聴講に来ていただいた方から興味深いというコメントをいただくなど有意義な学会となった。また、現在の潮流が単層TMDsの特異な光学特性をど

のように応用に生かしていくかにあることをつかむなど、視野を広げることもできた。このように得られた知見を取り入れながら、本学会で発表を行った研究成果を公表論文にまとめたいと考えている。

申請者はさらに2023年7月3日から7月21日にドイツ・ケルン大学のvan Loosdrecht教授の研究室に滞在し、4光波混合測定実験に関する研究指導を受けた。励起子2体からなる励起子分子は励起子間相互作用の格好の舞台である。これまで単層TMDsに対して先行研究はいくつかあるものの、励起子分子束縛エネルギーに相違があったり、スペクトル線幅が未解明であったりするなど、特性は十分に理解されていない。申請者はhBN封止した高品質な単層TMDs試料に対する4光波混合測定で励起子分子の特性を解明したいと考え、単層TMDsに対する4光波混合測定で実績のあるvan Loosdrecht教授に連絡を取り、研究指導を承諾いただいた。出国前にhBN封止したもの、封止していないものを含め複数の単層TMDs試料を準備し、4光波混合測定実験を行った。結果としてすべての試料において4光波混合信号の観測に成功した。さらにポンプ光のパワー及び過渡回折格子の周期を変えながら測定を行ったことで、室温ではhBN封止による拡散の増大はほとんどないものの、多体効果が抑制されている可能性が示唆された。こうした測定において、信号を最適化するための微調整を自ら行い、4光波混合信号を観測する経験を積むことができた。その他雑音を抑え高感度な測定を行うためのノウハウも学ぶことができた。また使用した光学系を含め、実験室が移行直後であることから、立ち上げの様子を見学することもでき、貴重な経験となった。今後の展望として、ケルン大学での研究指導をもとに4光波混合測定系の構築に取り組む予定である。特に申請者自身が

作製した試料において、自ら光学系等の微調整を行い、4光波混合信号を観測する経験をしたことは非常に有益であると考えている。

最後に、本海外渡航において、CLEO/Europe-EQEC 2023という規模の大きい国際学会に参加し、海外の大学で研究活動を行うという、非常に貴重な経験を積むことができました。本助成を通じてご支援頂いた村田学術振興財団及び関係者の皆様に深く感謝を申し上げます。

**この派遣の研究成果等を発表した
著書、論文、報告書の書名・講演題目**

S. Takahashi, S. Kusaba, K. Watanabe, T. Taniguchi, K. Yanagi, and K. Tanaka, "Second-Order Nonlinearity of Excitons in hBN-Encapsulated Monolayer Transition Metal Dichalcogenides," 2023 Conference on Lasers and Electro-Optics/Europe - European Quantum Electronics Conference, EI-P.6.