

審査の結果の要旨

論文提出者氏名 恩河 大

物質科学の劇的な進展によって、原子層レベルの厚みを有する多彩な2次元物質が得られるようになり、その物性や機能性が大きな注目を集めている。特に、遷移金属ダイカルコゲナイド (TMD) の単層は、非常に大きな励起子の束縛エネルギーやバレー自由度という従来にない自由度をもつため、2次元励起子物性の典型物質となっている。また異種の2次元物質をはり合わせたファン・デル・ワールス (vdW) ヘテロ界面、とくに最近見出された単層あるいは数層の磁性体 (2次元磁性体) と単層 TMD とのヘテロ接合は、2次元励起子の磁気光機能の観点から注目を集めている。

「Excitonic functionalities in two-dimensional materials and van der Waals heterointerfaces (2次元物質とファン・デル・ワールスヘテロ界面における励起子機能)」と題された本博士論文は、単層 TMD とその磁性 vdW ヘテロ接合における2次元励起子の物性と機能の開発を目的とした多角的な研究の成果報告である。本論文は6章から構成されており、以下にその概要を述べる。

第1章では、2次元物質および vdW ヘテロ界面という対象物質の紹介の後、これらの物質における2次元励起子の基礎物性、特に TMD の励起子におけるバレー自由度について解説されている。第2章で上記の目的が明示されたのち、第3章では、実験手法についてまとめている。まず、スコッチテープを用いたへき開による単層試料作製法、ドライトランスファー法と呼ばれる vdW ヘテロ界面作製法を説明している。次に試料の膜厚測定法について、原子間力顕微鏡による直接的な方法と、光学写真の RGB のコントラストを利用した間接的な方法を説明している。続いて、本研究の中心となった光学的な測定技術の説明がなされている。

第4章は、「Valley exciton transport」と題して、単層 TMD における2次元励起子のホール効果の発見について述べられている。ここでいうホール効果とは、荷電粒子が磁場中で進行方向と垂直方向の力を受けて曲げられる通常の現象ではなく、磁場は必要とせず、粒子が電荷を有している必要もない。粒子が有する、バンドの幾何学的性質に由来するベリー曲率が磁場として作用し、粒子の運動に横向きの速度を与えるのである。これまで、スピン、光、マグノン、フォノンについてもホール効果が見いだされてきたが、励起子については報告がなかった。本研究では、単層 TMD における励起子のベリー曲率が、反転対称性の破れによって有限となっていることに着目した。レーザー照射によって形成された熱(化学ポテンシャル)勾配による励起子拡散を、発光の空間分布によって観測し、勾配とは垂直方向の成分を有していることを見出した。さらにそのホール角が0.2と非常に大きな値であることを明らかにした。これは、発光する物体(励起子)の軌跡を直接追うことで、本質的なホール角を測定することができたためである。

第5章では、「Excitons at magnetic vdW interfaces」と題して、(1)反強磁性-TMD ヘテロ接合、(2)YIG-TMD ヘテロ接合という2種類の系について研究成果が述べられている。本章の最初に磁性 vdW ヘテロ接合の研究対象が、おもに強磁性体であることを説明した後、(1)MnPS₃、FePSe₃などの層状面内反強磁性体と単層 TMD のヘテロ界面の光物性を報告している。観測された TMD の2次元励起子の発光スペクトルのピーク位置が、ネール温度で異常な振る舞いを示すことを発見し、これを、

その他の可能性を排除したうえで、励起子—マグノン相互作用で説明できるとの仮説を提出した。次に、(2) YIG-TMD ヘテロ接合におけるマイクロ波と可視光を同時に照射する実験により、励起子—マグノン相互作用を直接観測した結果を報告している。具体的には、マイクロ波照射による強磁性共鳴によって YIG のスピンの歳差運動をおこし、それによって誘起される磁場を、TMD の 2 次元励起子におけるバレーゼーマン効果を通して直接観測した。さらに、TMD の厚み依存性の測定によって、TMD の感じる磁場が交換相互作用に帰着できることを示した。以上の結果は、YIG-TMD ヘテロ接合を通した励起子—マグノン相互作用により、マイクロ波—可視光の情報変換が可能であることを示している。

第 6 章では、TMD を用いた光電デバイスの研究について報告している。まず、MoSe₂ の電気二重層トランジスタ構造を利用して、円偏光発光トランジスタを作製し、先行研究よりも高い円偏光分極率を実現した。さらに、その偏光方向が電流の注入方向によって反転する現象を確認した。また、2 層および単層 WS₂ および、WS₂ ナノチューブにおけるゼロバイアス光電流測定を行い、ナノチューブにおいてのみ、ゼロバイアス光電流を検出した。この結果は、チューブ化による発生する分極が、異常光電流に大きな役割を果たしていることを示している。

第 7 章では、本研究によって得られた成果について総括を行い、展望について述べている。

以上をまとめると、本研究は、単層 TMD における反転対称性の破れや非常に束縛エネルギーの大きな 2 次元励起子という特徴を生かし、単層 TMD そのものと磁性体との vdW ヘテロ界面における新たな光物性とその機能を明らかにしたものである。後者からは、マイクロ波—可視光の情報変換の高効率化に向けた新たな展開が期待される。以上の知見は、2 次元物質の光物性・機能に対して先端的な寄与をするとともに、物性科学・物理工学の発展に大きく寄与すると期待され、本論文は博士（工学）の学位請求論文として合格と認められる。