

論文の内容の要旨

論文題目 反転対称性の破れた遷移金属ダイカルコゲナイド2次元物質の光・電子物性

氏名 鈴木 龍二

背景と目的

2010年の『グラフェン』の発見に対するノーベル物理学賞に見られるように、層状物質から形成される、単層あるいは数層の超薄膜結晶はバルクと大きく異なる特異な性質が現れることがあり、基礎物性からエレクトロニクス応用まで、様々な方面から期待されている。様々な層状物質の中で、本研究は遷移金属カルコゲナイドTransition Metal Dichalcogenide (TMD)と呼ばれる物質群に着目する。それは、単層の結晶において反転対称性の破れに起因するベリー位相(曲率)由来の特異な物性が期待されるからである。

本博士論文では、それら反転対称性の破れ由来の物性のうち、主に「バレートロンクス」に焦点を当て、その基礎物性を電子状態の検出からデバイス作成に至るまで包括的に解明することを目指した。また、TMDナノチューブにおける反転対称性の破れに由来するユニークな光電効果の観測も目的としている。

I. TMDにおけるバレー基礎物性

「バレー」とは伝導帯(価電子帯)の底(頂点)を意味するもので、エネルギー的に縮退した系を「マルチバレー系」と呼ぶ。近年、マルチバレーのそれぞれのバンドに選択的にキャリアを励起し、スピンの加わるもう一つの量子自由度の実現を目指す「バレートロンクス」が注目を集めている。本研究では、TMDにおけるマルチバレーの電子状態の解明と、バレー励起子の状態の解明を試みた。

I-I. スピン偏極バンドの直接観測

TMDの反転対称性の破れるように積層した3R型構造の内、半導体である3R-MoS₂を用いて、TMDのマルチバレーの価電子帯における特異なスピン軌道相互作用から生じる面直スピン偏極バンドの直接観測に成功した。また、異なるバレー間で異なるスピン偏極の方向を持っていることが判明し、これらは理論予測で見積もられていた結果と整合した。また、反転対称性が保たれるように積層した2H-MoS₂においてはスピン偏極が観測されなかった。これも理論予測と一致している。

I-II. 準粒子干渉観測

金属の3R型TMDである3R-NbS₂における準粒子干渉を、STMを用いて観測した。バレー内散乱、バレー間散乱由来の準粒子干渉を共に観測することに成功した。特に、バレー間散乱の準粒子干渉スペクトルより、バレー間散乱の選択則にスピンだけでなく軌道も関わっていることを明らかにした。

I-III. バレー励起子の積層構造依存性

TMDの異なる積層様式である2H型と3R型のMoS₂において、存在する励起子はその次元性の異なることが光学スペクトルの解析によって明らかになった。また、円偏光分解フォトルミネッセンスによって、2H型よりも3R型積層の方がバレー情報が失われにくいことが明らかになった。両者の違いは層間のホッピングタームの有無によって異なるものであることが明らかになった。

II. TMDにおけるバレーデバイス作成

非線形バレー伝導を用いたバレー流デバイスの作成に成功した。これを、伝導方向の二色性を検出する倍波ロックイン非相反伝導測定を用いて検出した。

III. TMDナノチューブにおける光電効果

Si基板上にスピコートしたTMDナノチューブにおいて異常フォトボルティック効果を観測した。p-n接合を作らず、電極の非対称性を作ることなしに、ナノチューブにおいて光起電力を得ることができた。この効果は2次元の単層TMDフレークにおいては観測されず、チューブの曲率が現象の本質であることが示唆される。

結論

TMDのバレー物性について、電子状態の直接観測からバレーデバイスに至るまで包括的な研究を行った。特に、バレー物性においては反転対称性の破れが非常に重要であり、バンド構造や励起子においては顕著に積層構造依存性が発現することが明らかになった。

デバイス化研究においても、非相反伝導の形でバレー流検出することに初めて成功し、バレートロンクス研究に新たな道を拓く端緒となった。また、スピコート法を適用できるTMDナノチューブにおける異常フォトボルティック効果の発見は、新たな太陽電池モジュールの開発に繋がるものであり、TMD研究の裾野を広げるものである。