

# 論文審査の結果の要旨

氏名 劉 若 亞

二次元結晶構造を持つ遷移金属ダイカルコゲナイドは、近年、新しい光エレクトロニクス、スピントロニクス、バレートロニクスの実現が期待される材料として注目を集めている。これらの新しいエレクトロニクスの実現には、注入された電子キャリアーの非平衡状態、光励起状態におけるダイナミックスの解明が必須である。本論文では、遷移金属ダイカルコゲナイドのなかでも強いスピン-軌道相互作用を持つ  $\text{WSe}_2$  の単結晶および単原子層薄膜を、高調波レーザーおよび放射光を用いたフェムト秒からナノ秒にわたる時間領域での時間分解光電子分光により調べている。

本論文は 7 章および付録からなる。第 1 章では、本論文への導入として遷移金属ダイカルコゲナイドの紹介をした後、 $\text{WSe}_2$  に時間分解光電子分光法を適用した本論文の研究動機が述べられている。

第 2 章では、本論文の背景として、 $\text{WSe}_2$  のバルクおよび単原子層膜のバンド構造、周期的な光駆動により生成される Floquet-Bloch 状態、表面の光起電力とその緩和過程、表面への原子・分子の吸着について基本概念の説明が行われ、代表的な先行研究が紹介されている。

続く第 3 章では、本論文で用いた実験手法である角度分解光電子分光 (ARPES) と時間分解 ARPES、時間分解 X 線光電子分光 (XPS) の原理および実験装置について説明している。本論文では、物性研の高調波紫外線レーザーを用いた ARPES 装置、英国 Rutherford Appleton Laboratory の高調波紫外線レーザーを用いた時間分解 ARPES 装置、Spring-8 東大ビームラインの時間分解 XPS 装置を使っている。

第 4 章では、物性研の装置を用いた、単結晶試料のバンドギャップ以下の励起光によるフェムト秒領域時間分解 ARPES の結果が述べられている。ポンプ光照射と同時に価電子帯のバンド構造のレプリカがバンドギャップ中に生じ、Floquet-Bloch 状態が観測されたと結論している。また、ポンプ後光電子スペクトルのピーク強度が振動し、その振動数からブリルアン域境界の音響フォノンの 2 倍高調波が電子状態と強く結合するとしているが、振動数の近い光学フォノンの可能性も指摘している。

第 5 章では、Rutherford Appleton Laboratory の装置を用いて、バンドギャップを越すポンプ光で励起されたバルクおよび単原子層試料中の電子の緩和ダイナミックスを直接観測している。光ポンプと同時に価電子帯のエネルギーシ

フトが観測され、光励起によるバンドギャップの再規格化と解釈されている。

第 6 章では、K 原子あるいは C<sub>60</sub> 分子が吸着した WSe<sub>2</sub> 表面の光起電力の緩和過程を、SPring-8 の放射光を用いたナノ秒スケールの時間分解 XPS で調べている。その結果、K 原子が電子ドナーとして、C<sub>60</sub> 分子が電子アクセプターとして働くことが示されている。吸着により緩和が早くなることが見いだされ、吸着原子・分子が再結合中心として働いていることが示唆されている。

最後の第 7 章で以上の結果がまとめられ、本論文で得られた新しい知見と今後の展望が述べられている。付録では、第 6 章で行われた K 原子、C<sub>60</sub> 分子の吸着実験に関して、吸着量の見積り方法が述べられている。

以上のように、本論文では遷移金属ダイカルコゲナイド WSe<sub>2</sub> のバルク単結晶および単原子層試料に時間分解光電子分光を適用し、Floquet-Bloch 状態と考えられる状態の観測、コヒーレントフォノン振動の観測、原子・分子吸着による光起電力の緩和過程の変化の観測など、多方面から新しい知見を得た研究として高く評価される。なお、本論文は松田巖、Tai-Chang Chiang、小澤健一、辛埴、岡崎浩三、石田行章、山本達、渡邊真莉、鈴木剛、岡田大、染谷隆史、小川優、寺島矢、夏井祐人、加藤博雄、伊藤俊、Wei-Chuan Chen、Cheng-Maw Cheng、Meng-Kai Lin、Baojie Feng、Philippa Clark、Nathan Lewis、Alfred Jones、Adam Wyatt、Richard Chapman、Cephise Cacho、Wendy Flavell、Emma Springate、Cephise Cacho、Peng Chen の各氏との共同研究であるが、論文提出者が主体となって研究計画を立て実験と解析を行ったもので、論文提出者の寄与が十分であると判断する。

したがって、博士（理学）の学位を授与できると認める。