

( 続紙 1 )

京都大学	博士 (エネルギー科学)	氏名	KIM HEEJUN
論文題目	Exploring the Optical Properties of Two-Dimensional Transition Metal Dichalcogenides Moiré Superlattice (二次元遷移金属ダイカルコゲナイドのモアレ超格子における光学特性の探求)		
(論文内容の要旨)			
<p>本論文は、単層遷移金属ダイカルコゲナイドなど半導体二次元物質からなる人工ヘテロ構造において発現する、特異な光学的性質やそのデバイス応用に深く関与するモアレ超格子によるモアレ励起子に関する研究について述べたものであり、序論 (第1章、第2章)、実験方法 (第3章)、本論3章 (第4—6章) と結論 (第7章) より構成されている。</p> <p>第1章では本研究に至る背景について、半導体二次元物質 (単層遷移金属ダイカルコゲナイドなど) やそのヘテロ構造の概略を説明した後、関連研究の現状と問題点、および本研究に至る動機を述べている。</p> <p>第2章では、本研究を理解するための背景となる半導体二次元物質の光物性物理の基礎事項を説明した。その後、研究対象となる単層遷移金属ダイカルコゲナイドからなる人工ヘテロ構造の電子構造、これまでに明らかとなっているモアレ励起子 (束縛電子-正孔対) などが関与した光学的性質の基礎についてレビューしている。</p> <p>第3章では主として、本研究で用いた試料やデバイスの作製方法と、各種分光分析のための実験手法について説明している。</p> <p>第4章では、これまで実験的に明らかとなっていなかった単層 MoSe<sub>2</sub> (二セレン化モリブデン) /WSe<sub>2</sub> (二セレン化タングステン) におけるモアレ励起子状態の詳細を、定常・時間分解発光分光法を用いて詳細に調べた。その結果を定量的に解析することで、発光に寄与するブライトモアレ励起子の直上に、ダーク励起子状態が存在することを見出している。</p> <p>第5章では、ゲート電圧制御が可能な MoSe<sub>2</sub>/WSe<sub>2</sub> ヘテロ構造デバイスに対して、微細加工を駆使し、従来困難であったわずか数個の少数のモアレ励起子やモアレ荷電励起子からの発光スペクトルを得ることに成功した。さらに、その温度依存性や円偏光分解発光によりモアレ荷電励起子において、数100ナノ秒にも及ぶ極めて長いバレー緩和時間の観測に成功している。</p> <p>第6章では、単層 MoSe<sub>2</sub>/WSe<sub>2</sub> ヘテロ構造において、MoSe<sub>2</sub> と WSe<sub>2</sub> 間に <i>h</i>-BN (窒化ホウ素) 層を導入することで、モアレ励起子の次元性を制御する新しい方法を提案した。スペーサー層の有無によって、その振る舞いがゼロ次元的なモアレ励起子から、二次元的な層間自由励起子へと変化していることを実験的に明らかにしている。</p> <p>第7章においては、最終的に本研究で得られた知見を要約し、今後の研究展望について述べている。</p> <p>このように本論文は、二次元遷移金属ダイカルコゲナイドのモアレ超格子の光学的性質について明らかにするとともに、様々な光・量子デバイスなどへの応用可能性とその指針を示したものである。これらの成果は、将来のエネルギー応用研究に寄与するものであり、博士の学位審査の請求に値すると認める。また、修了に必要な単位を修得済みであることを確認した。</p>			

(続紙 2)

(論文審査の結果の要旨)

本論文は、単層遷移金属ダイカルコゲナイドなど半導体二次元物質からなる人工ヘテロ構造において発現する、特異な光学的性質やそのデバイス応用に深く関与する電子正孔対であるモアレ励起子に関する研究について述べている。これまでその詳細が明らかとなっていなかったモアレ励起子状態やそのダイナミクス、さらには、モアレ励起子が関与した光学特性に関して研究した結果をまとめたものであり、得られた主な成果は次のとおりである。

1) 単層  $\text{MoSe}_2$  (二セレン化モリブデン) /  $\text{WSe}_2$  (二セレン化タングステン) ヘテロ構造を作製し、モアレ励起子に起因する光学特性を定常・時間分解発光測定によって調べた。その結果、温度上昇に伴ってモアレ励起子からの発光強度が急激に低下することなどの実験結果とレート方程式による解析から、発光に寄与するブライト励起子の数  $\text{meV}$  上に、ダーク励起子状態が存在することを見出した。さらにモアレ励起子ダイナミクスには、フォノンが関与した散乱プロセスが重要な役割を果たしていることを明らかにした。

2) ゲート電圧制御が可能な  $\text{MoSe}_2/\text{WSe}_2$  ヘテロ構造デバイスに対して、Ga イオンビーム加工を施し、光学的に観測するモアレポテンシャルの数を制限する新たなアプローチを提案した。これにより従来困難であった、わずか数個の少数のモアレ励起子やモアレ荷電励起子からの発光スペクトルを得ることに成功した。さらに、その温度依存性や円偏光分解発光測定によりモアレ荷電励起子において、温度に依存せず安定かつ数 100 ナノ秒にも及ぶ極めて長いバレー緩和現象の観測に成功した。

3) さらに単層  $\text{MoSe}_2/\text{WSe}_2$  ヘテロ構造において、 $\text{MoSe}_2$  と  $\text{WSe}_2$  間に  $h\text{-BN}$  (窒化ホウ素) スペーサーを導入することにより、モアレポテンシャルを変調しモアレ励起子の次元性を制御する新しい方法を提案した。スペーサー層の有無によって、発光エネルギーの位置や発光強度の温度依存性が明確に変化し、その振る舞いがゼロ次元的なモアレ励起子から、二次元的な層間自由励起子へと変化していることを明らかにした。

以上のようにここで得られた知見は、モアレ物理などの新たな物性創発の観点での基礎科学的意義とともに、モアレ励起子を利用した量子科学・技術への応用の基礎となるなど、エネルギー科学分野の基礎から応用にわたり、大きく貢献するものである。

よって、本論文は博士 (エネルギー科学) の学位論文として価値あるものと認める。また、令和 6 年 4 月 24 日に実施した論文内容とそれに関連した試問の結果合格と認めた。

なお、本論文は、京都大学学位規程第 14 条第 2 項に該当するものと判断し、公表に際しては、当該論文の全文に代えてその内容を要約したものとすることを認める。

論文内容の要旨、審査の結果の要旨及び学位論文の全文は、本学学術情報リポジトリに掲載し、公表とする。ただし、特許申請、雑誌掲載等の関係により、要旨を学位授与後即日公表することに支障がある場合は、以下に公表可能とする日付を記入すること。

要旨公開可能日： 令和 6 年 5 月 24 日以降