

基板表面ラフネスに依存した WS_2 単層膜における励起子-励起子消滅

Exciton-exciton annihilation in WS_2 monolayer depending on surface roughness of substrate

千葉大院理 [○]梶野 祐人, 音 賢一, 山田 泰裕

Chiba Univ. [○]Yuto Kajino, Kenichi Oto, Yasuhiro Yamada

E-mail: kajino@chiba-u.jp

遷移金属ダイカルコゲナイド(TMDCs)単層膜に代表される二次元単層物質は、特異な光電子物性及びスピン・バレー物理などから近年注目を集めている。高い表面/体積比のためにその物性が周囲環境に対して極めて敏感であることは、外部誘電率を用いた物性制御:クローンエンジニアリング[1,2]のような新しい物性制御手法を可能にする。一方で、基板表面ラフネスや単層膜のコラゲーションは、単層膜における電子ポテンシャルの空間変動を引き起こし、本質的な電氣的・光学的特性の観測を阻害する主な原因となる。

この空間的なポテンシャル変動は、本質的な励起子非線形緩和ダイナミクスにおいても重要であることが知られている[3,4,5]。先行研究において、本来物質固有のパラメータである WS_2 単層膜の励起子-励起子消滅(EEA)レート定数が、h-BN によるカプセル化によって SiO_2/Si 基板上と比較して約二桁程度抑制されることが報告された[4,5]。このことは、基板表面から強く影響を受けるランダムなポテンシャル揺らぎが局所的な励起子密度を増加させることで、実効的な EEA レート定数を増大させるためだと考えられている。しかし、空間的なポテンシャル変動と励起子緩和ダイナミクスの詳細な物理は、未だ十分に理解されていない。そこで本研究では、基板表面ラフネスに対する実効的な EEA レート定数の影響及び、ポテンシャル変動を考慮した新たな EEA モデルについて検討した。

スコッチテープ法を用いて、様々な基板上へ WS_2 単層膜を作製し、室温における発光緩和ダイナミクスの測定を行った。解析から、基板表面ラフネスに依存した実効 EEA レート定数の大きな変化(最大で四桁程度)を見積もった。また、最も低い EEA レート定数($\sim 10^4 \text{ cm}^{-2}\text{s}^{-1}$)を示した原子レベルで平坦なテラス構造を持つ $SrTiO_3$ ステップ基板上の WS_2 単層膜において、励起密度の増加と共に離散的な緩和時定数を持つ複数の減衰成分が逐次的に現れることを見出した。このことは、励起子発光ダイナミクスが、ポテンシャルバリアによって区切られた微小領域内の励起子数により量子化された EEA のアンサンブル平均として観測されることを示唆する。さらに、この量子化 EEA(QEEA)モデルから推定された EEA レート定数は、h-BN でカプセル化された空間的に均一なポテンシャルを持つ WS_2 単層膜において推定された値[4,5]とほとんど一致した。講演では、QEEA モデルの詳細及び推定されたポテンシャル変動の大きさについて議論する。

[1] A. Raja *et al.*, Nat. Commun. **8**, 15251 (2017). [2] Y. Kajino, K. Oto, and Y. Yamada, J. Phys. Chem. C **123**,14097 (2019). [3] L. Yuan and L. Huang, Nanoscale **7**, 7402 (2015). [4] Y. Hoshi *et al.*, Phys. Rev. B **95**, 241403 (2017). [5] J. Zipfel *et al.*, Phys. Rev. B **101**, 115430 (2020).