

hBN 封止単層遷移金属ダイカルコゲナイド励起子の 2 次非線形光学応答

Second-order nonlinear optical response of excitons in hBN-encapsulated monolayer transition metal dichalcogenides

京大院理¹, 物材機構², 東京都立大院理³, 京大 iCeMS⁴

○高橋 伸弥¹, 草場 哲¹, 渡邊 賢司², 谷口 尚², 柳 和宏³, 田中耕一郎^{1,4}

Dept. Phys., Kyoto Univ.¹, NIMS², Dept. Phys., Tokyo Metro. Univ.³, iCeMS, Kyoto Univ.⁴

○Shinya Takahashi¹, Satoshi Kusaba¹, Kenji Watanabe², Takashi Taniguchi², Kazuhiro Yanagi³,
Koichiro Tanaka^{1,4}

E-mail: takahashi.shinya.87v@st.kyoto-u.ac.jp

単層遷移金属ダイカルコゲナイド (TMDs) は原子薄膜ながら光との結合が強く、次世代の光電デバイスへの応用が期待されている。単層 TMDs の光学特性は常温でも安定な励起子 (電子正孔対) に支配される。これは、2 次元系であることから電子正孔間クーロン相互作用の誘電遮蔽効果が緩和され、数百 meV に及ぶ大きな束縛エネルギーを有することに起因する。低次元性は単層 TMDs 励起子の準位構造にも現れ、3 次元バルク半導体と異なって非水素様の準位構造を持つことが報告されている [1]。これまでに、線形分光で観測された s 系列励起子に対して、現象論的な Rytova-Keldysh ポテンシャルモデル [2,3] を用いて解析がなされている [4,5]。一方、3 次非線形光学応答で観測された p 系列励起子に対しては、Berry 曲率の効果による分裂が示唆されている [6]。しかし、いまだに単層 TMDs 励起子の準位構造の適切なモデル描像は得られていない。

本研究では、高品質な hBN 封止単層 TMDs 試料に対して和周波分光測定を行い、励起子の 2 次非線形光学応答を調べた。図 1 に、10 K に冷却した hBN 封止単層 MoSe₂ 試料に 0.56-1.3 eV の広帯域赤外光を照射した際の放射スペクトルを示す。各ピークを 1s、2p、2s、3p、異なるバンド間遷移の B:1s 励起子準位の共鳴和周波発生に由来するピークと同定した。講演では単層 MoSe₂ に加え、WSe₂ [7]、MoS₂、WS₂ に対する結果を比較し、和周波分光測定で観測されたピークのエネルギー位置、線幅、偏光依存性等から、単層 TMDs 励起子の 2 次非線形光学応答を議論する。

References

- [1] A. Chernikov *et al.*, Phys. Rev. Lett. **113**, 076802 (2014).
- [2] N. S. Rytova, Mosc. Univ. Phys. Bull. **3**, 30 (1967).
- [3] L. V. Keldysh, JETP Lett. **29**, 658 (1979).
- [4] A. V. Stier *et al.*, Phys. Rev. Lett. **120**, 057405 (2018).
- [5] M. Goryca *et al.*, Nat. Commun. **10**, 4172 (2019).
- [6] C. K. Yong *et al.*, Nat. Mater. **18**, 1065 (2019).
- [7] S. Kusaba *et al.*, Opt. Express **29**, 24629 (2021).

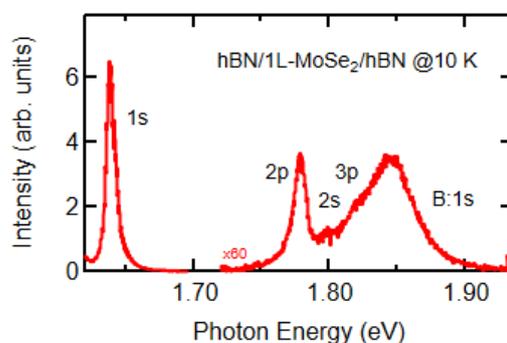


Fig.1 Nonlinear emission spectrum of hBN-encapsulated monolayer MoSe₂ obtained at 10 K under illumination of near-infrared broadband picosecond pulse (0.56-1.3 eV).