

MoSe₂の層数に依存したコヒーレントフォノンに関する研究

(奈良先端大・物質)

○鈴木 頼乙, 矢野 敬祐, 香月 浩之, 柳 久雄

Observation of coherent phonon in MoSe₂ depending on a layer number

Graduate School of Materials Science, Nara Institute of Science and Technology

○Raiitsu Suzuki, Keisuke Yano, Hiroyuki Katsuki, Hisao Yanagi

【Abstract】

MoSe₂, which is one of the transition metal dichalcogenides (TMD), is a material having a layered structure like graphene. TMDs show various interesting properties both optically and electrically, and are supposed to be the promising next-generation opto-electronic material. The purpose of this study is to investigate the coherent phonon characteristics and the interlayer vibrations of MoSe₂ samples with <6 layers thickness, on which the physical properties remarkably depend, and to observe the phonon relaxation process closely related to thermal conductivity and carrier relaxation. MoSe₂ was exfoliated to several layers on the tape by a scotch tape method and then placed on a glass substrate. The number of layers was identified by Raman spectroscopy. Coherent phonons were identified from the reflectivity of the probe pulse with a normal pump-probe method. As a result we observed vibrations which can be assigned to a coherent longitudinal acoustic phonon mode.

【序】

遷移金属ダイカルコゲナイド(TMD)に属する MoSe₂ は、グラフェンのように原子レベルでの層状構造を有する物質である。TMDsはその層数によって光、電気物性が変化することが知られており[1]、その特異な性質から様々な分野での研究が行われている。特に単層においてはバンドギャップが拡大し、直接遷移半導体となり光と強い相互作用を示すことが知られている、また表面状態の良好な薄膜が容易に作製可能であることからキャビティの活性層としても期待されている[2][3]。本研究で調査するコヒーレントフォノンは、固体中の原子の集団運動であるフォノンがその振動周期以下のパルス幅をもつパルスレーザーで励起することで誘起できる位相の揃ったフォノン運動のことである。コヒーレントフォノンを観測することにより、ラマン分光法の周波数スペクトルでは見ることの出来ないフォノンの緩和プロセスなどを時間領域で調べることができる。そこで本研究では、MoSe₂におけるコヒーレントフォノンの振動数や励起波長特性と、MoSe₂の層数と

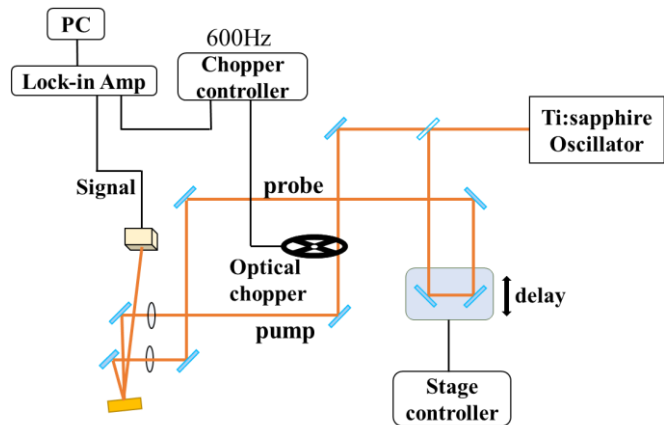


Fig.1 Optical setup for coherent phonon measurement

の関連性を明らかにすることを目的とする。

【方法 (実験・理論)】

測定に使用する MoSe_2 はテープ剥離法によりバルク固体から粘着力の小さなテープ上で数十層まで剥離した後、ガラス基板上に転写した。層数の同定はラマン分光法により行った。

コヒーレントフォノンの測定系を Fig.1 に示す。測定には超短パルスレーザーを用いたポンププローブ法を用い、反射または透過率変化をポンプ-プローブ間の遅延時間を変化させつつコンピュータに取り込んだ。光源は中心波長 830 nm、繰り返し周波数 76 MHz、パルス幅 120 fs の Ti-Sapphire オシレータを用いた。測定は室温で遅延ステップ 300 fs、各ステップ露光時間 1.5 秒、それを複数回積算することで行った。

【結果・考察】

テープ剥離法によって得られたサンプルの顕微鏡写真を Fig. 2 に示す。薄い色の部分ほど層数が薄くなっている。層数の同定をするために、様々な部分を対象としてラマン分光測定を行った結果を Fig.3 に示す。240 cm^{-1} 付近に見えるピークは Mo-Se 間の対称振動(A_{1g})モードであり層数が少なくなると低波数側にシフトすることが確かめられた[4]。

次に、コヒーレントフォノンの測定結果を Fig.4 に示す。横軸はポンプに対するプローブの遅延時間で、ステージスキャンで取り込んだデータからコヒーレントフォノンの振動成分を取り出したものである。

Fig.4 のフーリエ変換スペクトルから振動の周期を求めると 6.25 ps であった。振動周期の長さから今回観測された振動は他の TMD でも報告されているコヒーレント音響フォノンであると考えられる[5]。このコヒーレント音響フォノンと層数との関係は明確な結果がまだ得られていないため当日の発表で紹介する。また、層数が少ない場合に発生するブリージングモードの観測やダブルパルスを用いたコヒーレントフォノンの制御も今後行っていく予定である。

【参考文献】

- [1] Xiao-Li Li et al. *Adv. Funct. Mater.* **27**, 19 (2017).
- [2] J. B. Khurgin et al. *Optica*, **2**, 740-742 (2015).
- [3] N.Lundt et al., *Nature Commun.*, **7**, 13328 (2016).
- [4] P. Tonndorf et al. *Opt Express*, **21**, 4908-4916 (2013).
- [5] S.Ge et al. *Sci Rep.*, **4**, 5722 (2014).

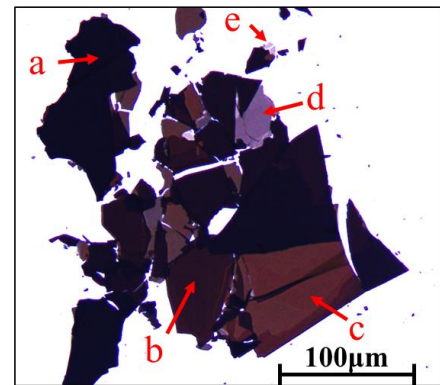


Fig.2 Microscopic image of MoSe_2

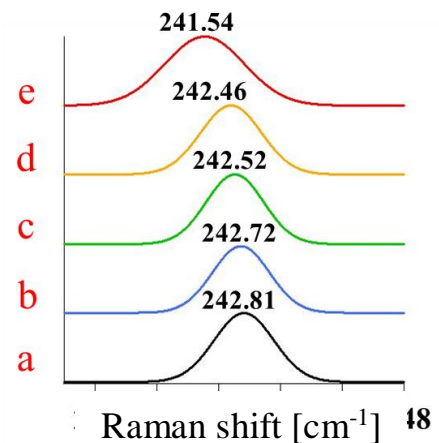


Fig.3 Thickness dependence of Raman spectra of MoSe_2

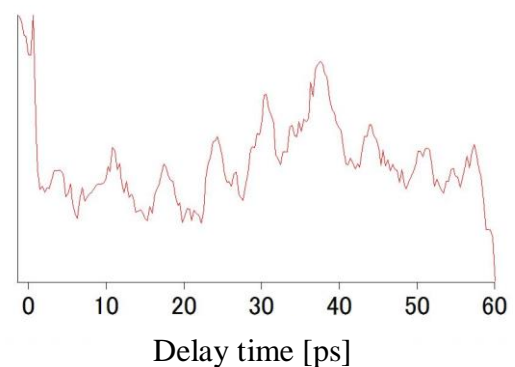


Fig.4 Coherent phonon signal measured as the reflectivity change in MoSe_2