

科学研究費助成事業（基盤研究（S））公表用資料
〔平成31年度（2019年度）研究進捗評価用〕

平成28年度採択分
平成31年 3月 19日現在

原子層物質におけるバレースピフォトニクスの創生と応用
Development and application of valley-spin photonics in
atomically thin layered materials

課題番号：16H06331

松田 一成 (Matsuda, Kazunari)

京都大学・エネルギー理工学研究所・教授



研究の概要（4行以内）

本研究では、バレーとスピン自由度が結合した物性を発現しうる原子層物質を舞台に、特異な量子光学現象の解明を通してバレースピン物理を理解し、その知見を活用したバレースピン制御を実現する。さらに、バレースピン制御によるフォトニクスデバイスなど「原子層物質によるバレースピフォトニクス」という研究分野を開拓し、光科学・物質科学の発展を目指す。

研究分野：光科学、ナノサイエンス

キーワード：原子層物質、フォトニクス

1. 研究開始当初の背景

近年、グラフェン、カーボンナノチューブ、遷移金属ダイカルコゲナイドなど原子一層（数層）の物質系が出現し、物質科学・光学の分野で大きなパラダイムシフトを迎えつつある。単層の遷移金属ダイカルコゲナイドに代表される原子層物質では、波数空間での谷（バレー）とスピが結合した新たな自由度が生じる。このようなバレーとスピン自由度が結合したバレースピンは、従来の電子の電荷自由度のみを利用した電子（エレクトロニクス）・光（フォトニクス）応用とは大きく異なる、新たな研究分野の開拓を担いうる。

2. 研究の目的

本研究では、遷移金属ダイカルコゲナイドに代表される原子層物質を舞台に、バレースピンが関与した特異な量子光学現象を解明し、光学技術を駆使したバレースピン制御を目指す。さらに、原子層物質の特徴である極めて大きな量子効果を利活用しながら、バレースピン自由度が関与した「原子層物質によるバレースピフォトニクス」という研究分野を開拓し、光科学・物質科学の発展を目指すものである。

3. 研究の方法

本研究で提案するバレースピフォトニクスの実現に向け、原子層物質でのバレースピンの発生・検出・制御のために必要とされ

る要素技術の研究を進める。そのための具体的なアプローチとして、1) バレースピフォトニクスに向けた高品質な原子層物質や人工ヘテロ構造の作製技術の確立、2) 先端光学技術を利用しバレースピン物理の本質的な理解、そこでの知見を発展させたバレースピン制御、3) バレースピが関与した新たなフォトニクスデバイスの実現、などを目指す。

4. これまでの成果

原子層物質の作製において、基礎物性の解明に資するため単結晶機械剥離法の高度化を、また、応用を見据え従来の化学気層堆積成長(CVD)法に加え、新しい手法による研究を進めた。前者については、画像認識プログラムと顕微鏡ステージの自動化などで、比較的大きな原子層物質を省力化かつ短時間で探索することを可能とした。さらに、酸素や水を除去した嫌気下環境であるグローブボックス中での機械剥離やヘテロ構造作製を可能としたことで、作製可能な原子層物質の幅が大きく広がった。また後者については、研究分担者を中心に、より高度に制御された原子層物質作製を可能とするため、超高真空下での分子線エピタキシ(MBE)法や有機金属気層成長(MOCVD)法などの新しい手法による作製を試みた。これにより、高品質な単層MoS₂などの作製に成功している。高品質化に加え大面積化のアプローチとして、成長時の核密度を抑え、超高真空下で原料比を精密制御し成長するなどの最適化を進めている。

さらにバレースピンの制御に向けて、原子層物質中でキャリア数の精密変調や電流検出技術が必要であり、電子線描画などの微細加工を用いた電界効果トランジスタ (FET) デバイス作製を進めた。特に、これまでの標準的なデバイス作製プロセスではウェットプロセスを併用しており、その際の汚染物が原子層物質の光学特性に大きな悪影響を及ぼすことが知られていた。それを避けるために、ドライトランスファーによる転写プロセスと *h*-BN による原子層表面の保護層を設けることで、高い発光特性を維持したデバイス作製に成功した。

次に、バレースピン生成・検出とその本質であるバレースピン緩和のメカニズムに関する理解を進め、バレースピンの高度な制御へと挑戦した。まず、高いバレースピン分極を実現するには、その情報が失われるプロセスを明らかにする必要がある。そこで、単層 WSe₂ を対象として円偏光励起によって、束縛電子-正孔対 (励起子) のバレースピン分極を生成し、発光円偏光度からバレースピン分極率を光学的に検出し、その温度依存性を詳細に調べた。その結果、80K 付近から温度とともに急激にバレースピン分極率が低下する特徴的な振る舞いを示すことがわかった。この振る舞いを理解するために、円偏光分解した発光時間分解測定や温度依存性測定を行い、励起子寿命 (緩和時間) に関する情報を得た。これら詳細な実験結果を受け、研究分担者を中心に励起子のバレースピン分極を支配する緩和プロセスを明らかにするため、微視的機構の解明に取り組んだ。クーロン相互作用に起因する交換相互作用とドーピングされたキャリアによるクーロン遮蔽効果に注目することで、多体効果を考慮したバレー緩和時間を理論的に導くことができた。この理論計算と実験結果を直接比較することで、バレースピン緩和時間の温度変化やキャリア濃度に対する依存性を定量的に理解することに初めて成功した。これらの研究成果から、バレースピノフォニクスに向けて最も重要な知見である、バレースピン緩和時間延長とそれに伴うバレースピン分極率増大のために、必要とされる条件に関する指針を得ることができた。

上記で得られた重要な知見から、外部からキャリア数を制御して増減することで、クーロン遮蔽効果を通してバレー緩和を支配する交換相互作用を変調しうることの着想を得た。この実現には、高性能な電界効果トランジスタ構造の特徴と利点を最大限活用した。実際に、ゲート電圧の印可によって、外部からキャリア数を連続的に制御し、その発光円偏光度からバレースピン分極率を測定した。その結果、我々が期待するようにキャリア数を増加させることによって、クーロン遮蔽を通してバレースピン緩和の

要因である交換相互作用を抑制し、バレースピン分極の外部制御とその増大に成功した。この方法では、外部からのゲート電圧という簡便な方法によって、連続的にバレースピン分極を制御しうる新しいストラテジーであることから、我々が本研究提案で目指すバレースピノフォニクスに向けた一つの大きなマイルストーンであると言える。

5. 今後の計画

今後、研究を更に発展させるために新しい成長技術の高度化を進め、高品質かつ大面積の原子層物質やヘテロ構造を作製する。さらに、バレースピンを利用したデバイスを実現するために、より高度なバレースピン分極のコヒーレント制御などの研究に取り組むとともに、バレースピン制御を利用したデバイスの実現を目指す。これらの研究を通して、「原子層物質によるバレースピノフォニクス」という新しい研究分野を開拓し、光科学・物質科学の発展を目指す。

6. これまでの発表論文等 (受賞等も含む)

1. X. Wang, K. Shinokita, H-E. Lim, N. B. Mohamed, Y. Miyauchi, N. T. Cuong, S. Okada, and K. Matsuda, *Adv. Funct. Mater.* **29**, 1806169-1-1806169-7 (2019).
2. Y. Miyauchi, S. Konabe, F. Wang, W. Zhang, A. Hwang, Y. Hasegawa, L. Zhou, S. Mouri, M. Toh, G. Eda, and K. Matsuda, *Nat. Commun.* **9**, 2598-1-2598-10 (2018).
3. T. Yamaoka, H-E Lim, S. Koirala, X. Wang, K. Shinokita, M. Maruyama, S. Okada, Y. Miyauchi, and K. Matsuda, *Adv. Funct. Mater.* **28**, 1801021-1-1801021-7 (2018).
4. D. Tan, X. Wang, W. Zhang, H. E. Lim, K. Shinokita, Y. Miyauchi, M. Maruyama, S. Okada, and K. Matsuda, *Small* **14**, 704559-1-704559-7 (2018).
5. M-Y. Li, J. Pu, J-K. Huang, Y. Miyauchi, K. Matsuda, T. Takenobu, and L-J Li, *Adv. Funct. Mater.* **28**, 1706860-1-1706860-7 (2018).

受賞

1. Kazunari Matsuda, Spectra-Physics Prize, Excon 2018, 2018 年 7 月
7. ホームページ等
<http://www.iae.kyoto-u.ac.jp/conv/matsuda@iae.kyoto-u.jp>