

科学研究費助成事業（基盤研究（S））公表用資料

〔令和4（2022）年度 中間評価用〕

令和4年3月31日現在

研究期間：2020年度～2024年度
課題番号：20H05664
研究課題名：原子層人工ヘテロ構造におけるバレースピン量子光学の開拓と応用

研究代表者氏名（ローマ字）：松田一成（Matsuda Kazunari）
所属研究機関・部局・職：京都大学・エネルギー理工学研究所・教授
研究者番号：40311435

研究の概要：

本研究では、独立に研究が進展してきた原子層物質科学と量子光学の接点に位置し、既存のデバイス原理の延長線上にない「バレースピン量子光学」に向けた研究を展開する。さらにバレースピン量子光学を応用へと橋渡しし「バレースピン量子フォトンクス」という新しい研究領域を生み出すことを目指し研究を進める。

研究分野：応用物性

キーワード：光科学、ナノサイエンス、量子科学

1. 研究開始当初の背景

近い将来社会に必要なとされる量子状態制御を利用したデバイスにおいて、量子光学を基礎とした光技術は、パルス制御や外部インターフェース構築が容易などのメリットがある一方で、物質中での量子コヒーレンス消失という壁によってその用途が大きく制限されている。近年、従来予想できなかったわずかな原子数層からなる原子層物質に関する研究が勃興し、光科学分野で大きな学術変革を迎えつつある。我々は、単層遷移金属ダイカルコゲナイド（ MX_2 ; $\text{M}=\text{Mo}, \text{W}$, $\text{X}=\text{S}, \text{Se}$ ）において、その特異な量子状態により発現する光学的性質を明らかにするなど、新しい光科学への道筋を切り拓いてきた。

単層 MX_2 では、空間反転対称性の消失とスピン軌道相互作用によるクラマース縮重の破れに起因し、運動量空間でのバレーと電子系のスピンの結合したバレースピンという新たな物理自由度が生じる。我々は、バレースピンという物理自由度を一つの量子状態として見做し、制御する新たな道筋を見出し、量子状態制御を基礎とした「バレースピン量子光学」という新しい研究潮流への可能性が拓けた。さらに、この原子層物質を積み重ね構成した人工ヘテロ構造において、モアレなどの新しい形での量子閉じ込めポテンシャルを導入し、ゼロ次元（量子二準位系）半導体量子ドットを実現しうる。この絶好の機会を生かして、量子ドットを原子層ヘテロ構造で実現し、従来の量子光学とは大きく異なるバレースピン量子光学とはどのようなものか、という本質的な問いに答えを出す。我々が培ってきた先端的な知見や技術的優位を基にして、光科学・物質科学の新領域である「バレースピン量子光学」を構築し先導するための研究を推進する。

2. 研究の目的

本研究の目的は、ゼロ次元量子ドットが実現していると期待される原子層人工ヘテロ構造において、バレースピン制御を基軸とした「バレースピン量子光学」の新しい学理の構築と、それを応用し「バレースピン量子フォトンクス」へと発展させることにある。具体的には、未だ理論・実験的に未開拓であるバレースピン量子光学に向けて、原子層人工ヘテロ構造でのバレースピン量子状態の詳細を明らかにし、その制御へと繋げることを試みる。

3. 研究の方法

本研究で提案するバレースピン量子光学の実現に向け、まずはそのプラットフォームである原子層人工ヘテロ構造とデバイス作製の技術を確認する。その後、バレースピン量子状態の本質であるコヒーレンス時間計測とデコヒーレンスを含む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量子制御へと挑戦する。最終的にそれらの研究成果を基にして、バレースピンの特色を有する単一光子光源などの量子デバイスなどを実現することで、バレースピン量子光学の基盤を確認する。具体的な研究アプローチは以下の通りである。

- [1] 原子層人工ヘテロ構造およびデバイス作製技術の確認
- [2] 原子層人工ヘテロ構造での量子光学現象の開拓
- [3] バレースピン量子光学に向けた量子制御
- [4] バレースピン制御を利用した量子情報処理デバイスへの応用

4. これまでの成果

[1] 原子層人工ヘテロ構造の作製・デバイス作製技術の確立

本研究で提案するバレースピン量子光学の実現に向け、単層遷移金属ダイカルコゲナイドなどを積み重ねた、原子層人工ヘテロ構造の作製とその高度化を進めた。まず、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単層物質探索、ドライトランスファーによるヘテロ構造作製までを一貫して可能とするなど最適化を進めた。一方、ドライトランスファーで積層する方法では実現困難な、新たなヘテロ構造作製技術に関する研究を進めた。実際に、機械剥離法では原理的に困難な接合ヘテロ構造を、原子レベルで構造制御する技術確立した。これら高度に制御された結晶成長技術による、新奇原子層人工ヘテロ構造を利用することで、新たな研究の展開が可能となった。

バレースピン量子制御に向けて、原子層ヘテロ構造中でキャリア数の精密変調の技術が必要であり、電界効果トランジスタ (FET) デバイス作製を検討した。その結果、外部ゲート印可によってキャリア数を精密制御し、詳細な光学測定と物理を議論する事が可能となった。またデバイス性能の更なる向上のため第一原理計算により、グラフェン関連物質や原子層ヘテロ構造の構造や物性予測の研究を並行して進めた。

[2] バレースピン量子状態の観測とコヒーレント制御

原子層人工ヘテロ構造において生じるモアレポテンシャルと、それに補足された電子・ホール束縛状態である励起子 (モアレ励起子) が、本研究計画の核となる量子二準位系として振る舞うかどうかは必ずしも自明ではない。そのため我々は、 $\text{WSe}_2/\text{MoSe}_2$ からなる原子層人工ヘテロ構造において、先端分光手法を駆使し、モアレ励起子の電子状態を詳細に調べることに挑戦した。その結果、発光励起分光が与える光吸収スペクトルに相当する情報から、モアレポテンシャルに量子的に閉じ込められたモアレ励起子が、基底と励起状態からなる量子二準位系と見做すことができ、新たな量子システムであることが明らかとなった。またこのモアレ励起子が、フォノンと強く結合しうること、このフォノン共鳴を巧みに使いバレースピン分極の増大が可能な事を初めて見出している。上記の成果に加え、原子層二次元半導体と磁性体による新奇な人工ヘテロ構造に関する研究を進めた。その結果、磁気励起であるマグノンとモアレ荷電励起子が結合した、マグノン・モアレ荷電励起子複合体という新たな素励起を、実験的に初めて確認することに成功した。

[3] バレースピン量子デバイスの実現

バレースピン量子制御を利用したデバイス実現に向け、電気二重層電界発光デバイスや微小共振器作製などの研究を進めた。これらは、バレースピン量子制御を利用した電流注入、共振器を利用した発光や単一光子発生デバイスの基盤技術として位置付けられる。特に、原子レベルで急峻な界面を有する WSe_2/WS_2 ヘテロ構造において、イオンゲルを用いた電気二重層による高密度キャリア注入により、電界発光とバレースピン分極の制御に成功している。

5. 今後の計画

前期に引き続き、高品質・新奇な原子層ヘテロ構造とデバイス作製の研究を進める。さらに、時間領域でバレー量子二準位系のコヒーレンスの実時間計測とデコヒーレンスが生じる物理メカニズムに迫り、どこまでそれを維持することが可能であることを明らかにする。次の段階として更なる高みを目指して、バレースピン量子光学に向け、量子ビット操作に対応する量子二準位系の重ね合わせ状態生成とその光制御に挑戦する。前期で確立した技術である高品質な原子層人工ヘテロ構造作製とイオンゲルによる電気二重層ドーピングによる電界効果トランジスタ構造を組み合わせ、バレースピン分極を量子制御した単一光子発生を可能とするデバイス作製を進める。

6. これまでの発表論文等 (受賞等も含む)

- [1] Y. Zhang, H. Kim, W. Zhang, K. Watanabe, T. Taniguchi, Y. Gao, M. Maruyama, S. Okada, K. Shinokita, and K. Matsuda*, Magnon-coupled intralayer moiré trion in monolayer semiconductor-antiferromagnet heterostructures, *Adv. Mat.* in press.
- [2] K. Shinokita*, Y. Miyauchi, K. Watanabe, T. Taniguchi, and K. Matsuda*, Resonant coupling of a moiré exciton to a phonon in a $\text{WSe}_2/\text{MoSe}_2$ heterobilayer, *Nano Lett.* **21**, 5938-5944 (2021).
- [3] J. Pu, W. Zhang, H. Matsuoka, Y. Kobayashi, Y. Takaguchi, Y. Miyata, K. Matsuda, Y. Miyauchi, and T. Takenobu*, Room-temperature chiral light-emitting diode based on strained monolayer semiconductors, *Adv. Mat.* **33**, 2100601(1-9) (2021).
- [4] X. Wang, K. Shinokita, and K. Matsuda*, Radiative lifetime and dynamics of trions in few-layered ReS_2 , *Appl. Phys. Lett.* **119**, 113103(1-6) (2021).

7. ホームページ等

<http://www.iae.kyoto-u.ac.jp/conv/>