

令和 3 年 6 月 8 日現在

機関番号：82401
研究種目：基盤研究(A)（一般）
研究期間：2017～2020
課題番号：17H01138
研究課題名（和文）原子層物質におけるバレースピントロニクスの研究

研究課題名（英文）Valley-spintronics in atomic layer materials

研究代表者

山本 倫久（Yamamoto, Michihisa）

国立研究開発法人理化学研究所・創発物性科学研究センター・チームリーダー

研究者番号：00376493

交付決定額（研究期間全体）：（直接経費） 33,700,000円

研究成果の概要（和文）：本研究では、原子層物質におけるバレーとスピンを情報媒体とする「バレースピントロニクス」の原理開発に取り組んだ。グラフェンのバレースピントロニクスに関しては、共に非電荷流であるスピン流とバレー流の変換原理であるスピンバレーホール効果を発見し、バレーとスピンの両方からなる新しい非電荷流「スピンバレー流」の検証に成功した。同時に、同検証実験を通じて、グラフェン研究の長年の課題であったグラフェンの量子ホール磁性の相転移について明らかにした。また、本研究では遷移金属ダイカルコゲナイドの原子層物質を用いたスピンバレーオプトエレクトロニクスの開発にも取り組み、デバイス作製の技術要素を開発した。

研究成果の学術的意義や社会的意義

スピン流やバレー流などの電荷中性流は、電流に比べて散逸が少なく、省電力デバイスの原理として研究されている。本研究では、電子相関がもたらす反強磁性秩序に起因した、新しい電荷中性流の生成を実証した。電子相関を起源とした新しいメカニズムによって、電荷中性流生成物質の幅が広がることが期待できる。さらに、この電荷中性流はスピンとバレーが組み合わさった流れであり、現在実用化研究が進められているスピン流と、スピン流より高効率で生成可能なバレー流とを相互変換するデバイスへの応用が期待される。また、本研究では、バレースピントロニクス開発に重要な反強磁性秩序の相転移やTMDデバイス作製に関する知見が得られた。

研究成果の概要（英文）：We developed technologies and working principles for "valley-spintronics", where valley and spin in 2D materials are used for information carriers. We discovered "spin-valley Hall effect" in bilayer graphene, which can be used to mutually convert spin current and valley current. We demonstrated generation of a charge neutral current of spin and valley using this spin-valley Hall effect. We also revealed phase transition of the quantum Hall antiferromagnetic state in bilayer graphene, which is a platform for the spin-valley Hall effect. We also investigated device technologies for transition-metal-dichalcogenides-based spin-valley-optoelectronics devices.

研究分野：メゾスコピック系

キーワード：原子層物質 メゾスコピック系 バレースピントロニクス スピントロニクス

様式 C - 19、F - 19 - 1、Z - 19 (共通)

1. 研究開始当初の背景

原子層物質の二次元電子系は、従来の半導体の電子系にはないユニークな内因的性質を有している。しかし、その内因的な性質の多くはまだ十分に解明されておらず、その利用のための指導原理が確立していない。研究代表者らは、その中でもエネルギーバンドの縮退した非等価な構造で定義され、波動関数の自己回転として解釈される量子自由度“バレー”を起源とする内因的性質に着目した研究を行ってきた。運動量空間で離れたバレーは、実空間では格子間隔程度の短距離散乱によってしか散乱されないため、結晶品質が高い物質中では非常に良い量子自由度となる。バレーに依存する内因性ホール伝導度を利用すると、電圧を、電流を伴わない非散逸なバレーの流れに変換できる。これを利用して、研究代表者らは、2層グラフェンにおいて世界で初めて純バレー流の電氣的生成、検出実験に成功している (Nature Phys. 2015, JPSJ2015)。バレー流を情報媒体として利用する技術はバレートロンクスと呼ばれ、スピントロンクスに次ぐ次世代エレクトロニクス技術として注目を集めている。

2. 研究の目的

本研究は、原子層物質中で電圧をバレー流へと変換するバレーホール効果にとどまらず、バレー自由度を、偏光、スピン(磁気メモリ)と相互に変換する原理の開発を通じ、バレーを中心として非電荷系エレクトロニクスを構成するための指導原理を明らかにすることを目的とした。特に、グラフェンのバレーとスピン自由度の制御を研究対象の中心とした。また、遷移金属ダイカルコゲナイド(TMD)の原子層物質について、バレーをスピンや偏光と相互に変換する技術の開発も研究対象とした。

3. 研究の方法

グラフェン及び TMD 原子層の転写技術を開発してバレースピントロニクスデバイスを作製し、その電氣的、光学的特性を評価する。

(1)グラフェンのバレースピントロニクス

2層グラフェンでは、電荷中性点において、電子相関効果によって層内のスピンの向き、層間のスピンの向きとなる「層間反強磁性状態」が基底状態になる。この状態では、スピンとバレーに依存する自発的なホール伝導(電子の運動の方向が曲げられる現象)が生じる。これを利用して、バレー流を、それと垂直な方向のスピン流と相互に変換できる。この相互変換が実現すれば、バレー自由度を磁気メモリに不揮発に記録したり、逆に磁気メモリの情報をバレー流へと変換したりすることが可能になる。それに向けた最初の一步として、研究代表者らがバレー流の生成検出実験で利用した非局所抵抗測定でバレーとスピンの混成した電荷中性流を電氣的に捉える。すなわち、H型のホールバーにおいて、まず電圧をスピン・バレー混成流に変換し、この混成流をその逆効果によって電圧へと再変換して検出する。この実験は、自発的なホール伝導の検証となる。

また、磁性体を取り付けることによってスピン流を注入し、そのスピン流がバレー流へと変換される様子を逆バレーホール効果を介して電圧で検出することによる「バレー流とスピン流の相互変換技術の確立を目指す。

(2)TMDのバレースピントロニクス

MoSe₂/WSe₂積層構造において、各層に独立に電氣的接触を取り、層間の間接励起子を用いたバレースピントロニクスデバイスの開発を行う。TMDバレートロンクス応用の欠点とされている短いバレー緩和長を克服し、長所とされるスピン-バレー-偏光の結合を電氣的に制御することを将来的な目標とした課題であり、本研究ではそのデバイス作製技術の開発を主に挙げる。

4. 研究成果

グラフェンのバレースピントロニクス、TMDのバレースピントロニクスの両方に取り組んだが、グラフェンデバイスの開発過程で予想外の興味深い結果が出たこと、TMDのデバイス開発が難航したことから、期間後半は主にグラフェンの研究に集中した。

(1)グラフェンのバレースピントロニクス

まず、六方晶窒化ホウ素(h-BN)を介してトップゲートとバックで挟まれた高品質な2層グラフェンのホールバー試料を開発し、図2に示す非局所抵抗測定により、層間反強磁性状態における自発的なホール伝導(スピンバレーホール効果)の実証と、それを利用したスピンバレー流の生成、検出に成功した(PRL2021、理研からプレスリリース)。

実験では、試料に加える電場を調整し、面直電場ゼロ、キャリア密度ゼロの付近で反強磁性秩

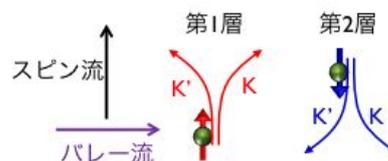


図1:層間反強磁性状態でのスピン流-バレー流変換。

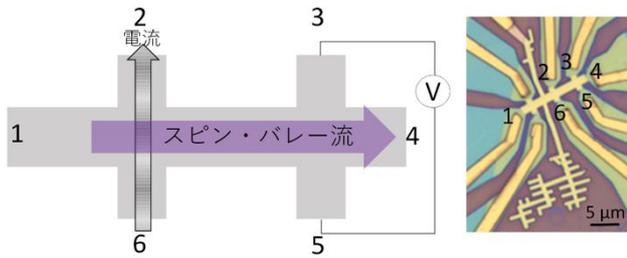


図2：非局所抵抗測定概念図(左)と本研究で使用したホールバー試料の顕微鏡写真(右)。端子3-5間の電圧を電流で割った値を非局所抵抗と定義する。

電荷中性流が発生していることの証拠である。尚、この実験では、局所抵抗が非局所抵抗が温度に対して非一様に変化している様子が観測された。

続いて、層間反強磁性状態におけるスピンの超流動が理論的に予想されている。スピン流の兆候らしきものは見られたが、確定には至らなかった。本来はここでスピン流とバレー流の相互変換の実験に移る予定であったが、局所抵抗や非局所抵抗の温度依存性や磁場依存性が複雑な振る舞いを示し、層間反強磁性状態に関する相変化の様子を明らかにできる可能性が示唆されたことから、予定を変更してその解決に優先的に取り組んだ。単層や2層グラフェンの電荷中性点における相変化は、グラフェン発見以来の長年の課題であり、大きなインパクトが見込まれた。

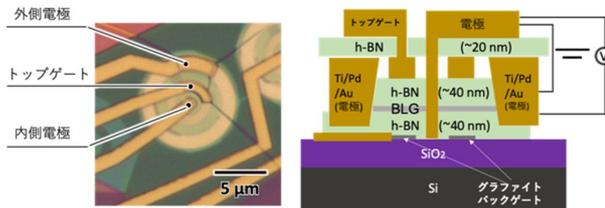


図3：2層グラフェンのコルビノ型デバイスの顕微鏡写真(左)と概念図(右)。

(コストリッツ-サウレス転移) 金属的な状態が現れる。この長距離秩序の消失は非局所抵抗の抑制にも対応しており、上記スピンバレーホール効果が長距離秩序の下で起きていることが確認できる。更に温度を上げると、短距離秩序である層間反強磁性自体を消失する。

これらの研究成果は、スピン流とバレー流を変換できる反強磁性状態の性質について詳細に明らかにしたもので、現在実用化研究が進められているスピン流と、スピン流より高効率で生成可能なバレー流とを相互変換するデバイスへの応用が期待される。

(2) TMD のバレースピントロニクス

TMD に関しては、図4のように MoSe₂/WSe₂ 積層構造において、各層に独立に電氣的接触を取り付けたデバイスの作製を目指した。独立した電氣的接触を得るためには、面積の大きな単層の MoSe₂、WSe₂ を得る必要がある。そこで、金薄膜を利用した単層膜の劈開方法を開発し、非常に大きな単層膜を得ることに成功した。しかし、同手法で得られる薄膜は光学不活になるという問題が生じたため、ポリマーを使った通常の劈開方法の開発も進めた。また、単層膜を転写してヘテロ構造を作製する技術の開発にも取り組んだ。

また、本研究で最も困難なのは、電氣的な接触を取ることである。MoSe₂ については、レジストが原子層膜に触れない方法で、電氣的な接触を取ること成功した。

序が発現することを確認した。そこで非局所抵抗を測定すると、局所抵抗(通常の電気抵抗)の1/10に達する非局所抵抗が観測された。これは電荷中性流がない場合に観測される値の2000倍以上の値であり、電荷中性流の存在を確認した。さらに、非局所抵抗の起源が電荷中性流であることを確かめるために、局所抵抗と非局所抵抗の関係を温度と磁場を変えることで測定した。その結果、非局所抵抗は、局所抵抗が低いときには局所抵抗の3乗、高いときには局所抵抗の1乗に比例する様子が確認できた。これは電荷中性流を起源とした理論モデルとよく合っており、

2層グラフェンの電荷中性点における相変化を調べるために、試料端がないコルビノ型の試料を開発し、バルクの電気伝導を温度、磁場、垂直電場の関数として測定した。この実験結果と上記非局所測定の結果を合わせて解析することにより、相変化の様子が初めて明らかになった(投稿準備中)。絶縁体である層間反強磁性状態で温度を上げていくと、まず長距離秩序が消失し

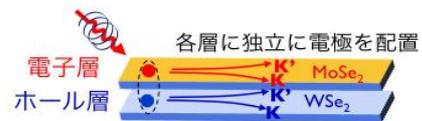


図4 TMD バレースピントロニクスの研究で作製を目指した MoSe₂/WSe₂ 積層構造の概念図。長寿命の間接励起子を利用する。照射する光の偏光に応じてバレーを選択的に励起できる。その結果、偏光(バレー)に依存したホール伝導度が生じる。励起子は、電子-正孔が層間に分離しているため、各層に接続した電極で電氣的に検出できる。

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計6件（うち査読付論文 5件/うち国際共著 2件/うちオープンアクセス 1件）

1. 著者名 Tanaka Miuko, Shimazaki Yuya, Borzenets Ivan Valerievich, Watanabe Kenji, Taniguchi Takashi, Tarucha Seigo, Yamamoto Michihisa	4. 巻 126
2. 論文標題 Charge Neutral Current Generation in a Spontaneous Quantum Hall Antiferromagnet	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 Physical Review Letters	6. 最初と最後の頁 16801
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1103/physrevlett.126.016801	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -
1. 著者名 Ke C. T., Draelos A. W., Seredinski A., Wei M. T., Li H., Hernandez-Rivera M., Watanabe K., Taniguchi T., Yamamoto M., Tarucha S., Bomze Y., Borzenets I. V., Amet F., Finkelstein G.	4. 巻 1
2. 論文標題 Anomalous periodicity of magnetic interference patterns in encapsulated graphene Josephson junctions	5. 発行年 2019年
3. 雑誌名 Physical Review Research	6. 最初と最後の頁 33084
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1103/physrevresearch.1.033084	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスとしている（また、その予定である）	国際共著 -
1. 著者名 Wei M. T., Draelos A. W., Seredinski A., Ke C. T., Li H., Mehta Y., Watanabe K., Taniguchi T., Yamamoto M., Tarucha S., Finkelstein G., Amet F., Borzenets I. V.	4. 巻 100
2. 論文標題 Chiral quasiparticle tunneling between quantum Hall edges in proximity with a superconductor	5. 発行年 2019年
3. 雑誌名 Physical Review B	6. 最初と最後の頁 121403
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1103/physrevb.100.121403	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -
1. 著者名 A. Seredinski, A. Draelos, M.-T. Wei, C.-T. Ke, T. Fleming, Y. Mehta, E. Mancil, H. Li, T. Taniguchi, K. Watanabe, S. Tarucha, M. Yamamoto, I. V. Borzenets, F. Amet, and G. Finkelstein	4. 巻 3
2. 論文標題 Supercurrent in Graphene Josephson Junctions with Narrow Trenches in the Quantum Hall Regime	5. 発行年 2018年
3. 雑誌名 MRS Advances	6. 最初と最後の頁 2855-2864
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1557/adv.2018.469	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 該当する

1. 著者名 A. W. Draelos, M. T. Wei, A. Seredinski, C. T. Ke, Y. Mehta, R. Chamberlain, K. Watanabe, T. Taniguchi, M. Yamamoto, S. Tarucha, I. V. Borzenets, F. Amet, and G. Finkelstein	4. 巻 191
2. 論文標題 Investigation of Supercurrent in the Quantum Hall Regime in Graphene Josephson Junctions	5. 発行年 2018年
3. 雑誌名 J. Low Temp. Phys.	6. 最初と最後の頁 288-300
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1007/s10909-018-1872-9	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 該当する

1. 著者名 山本倫久	4. 巻 88
2. 論文標題 固体の電子波の非電荷自由度	5. 発行年 2018年
3. 雑誌名 応用物理	6. 最初と最後の頁 96-100
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) なし	査読の有無 無
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

〔学会発表〕 計22件 (うち招待講演 11件 / うち国際学会 10件)

1. 発表者名 Michihisa Yamamoto
2. 発表標題 Electron transport in a correlated quantum Hall antiferromagnetic state of bilayer graphene
3. 学会等名 6th International Workshop on 2D Materials (招待講演) (国際学会)
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 Miuko Tanaka
2. 発表標題 Electron transport mechanism in a correlated quantum Hall antiferromagnetic state of bilayer graphene
3. 学会等名 6th International Workshop on 2D Materials (国際学会)
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 田中未羽子, 渡辺賢司, 谷口尚, 樽茶清悟, 山本倫久
2. 発表標題 2層グラフェンの量子ホール反強磁性相の相転移と伝導機構
3. 学会等名 日本物理学会
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 山本倫久
2. 発表標題 グラフェンにおけるスピンバレートロニクス
3. 学会等名 仙台“プラズマフォーラム”(招待講演)
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 Michihisa Yamamoto
2. 発表標題 Spin-valleytronics in graphene
3. 学会等名 1and2DM 2020 International Conference (招待講演) (国際学会)
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 Michihisa Yamamoto
2. 発表標題 Spin-valleytronics in atomic layer materials
3. 学会等名 The 11th Conferences on Recent Progress in Graphene and Two-dimensional Materials Research (RPGR2019) (招待講演) (国際学会)
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 Takamoto Yokosawa
2. 発表標題 Towards Current Driven Neutral Interlayer Exciton Transport in Transition Metal Dichalcogenide
3. 学会等名 第9回半導体/超伝導体量子効果と量子情報の夏期研修会 (9th spin camp)
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 Miuko Tanaka
2. 発表標題 Towards a spin injection and detection in quantum Hall antiferro- magnetic state of bilayer graphene
3. 学会等名 第9回半導体/超伝導体量子効果と量子情報の夏期研修会 (9th spin camp)
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 M. Tanaka, Y. Shimazaki, I. Borzenets, K. Watanabe, T. Taniguchi, S. Tarucha, M. Yamamoto
2. 発表標題 Spin-valley Hall effect in zero Landau level of bilayer graphene
3. 学会等名 The 11th Conferences on Recent Progress in Graphene and Two-dimensional Materials Research (RPGR2019) (国際学会)
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 M. Yamamoto
2. 発表標題 Spin-valleytronics in graphene
3. 学会等名 6th International Conference on Superconductivity and Magnetism (ICSM2018) (招待講演) (国際学会)
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 M. Tanaka, Y. Shimazaki, I. Borzenets, T. Taniguchi, K. Watanabe, M. Yamamoto, S. Tarucha
2. 発表標題 Spin-valley Hall effect in zero Landau level of bilayer graphene
3. 学会等名 34th International conference on the physics of semiconductors (ICPS2018) (国際学会)
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 T. Yokosawa, A. Popert, M. D. Fraser, Y. Shimazaki, K. Watanabe, T. Taniguchi, M. Yamamoto, A. Imamoglu, S. Tarucha
2. 発表標題 Towards Electrical Control of Interlayer Excitons in Heterostructures of Monolayer Transition Metal Dichalcogenides
3. 学会等名 8th Summer School on Semiconductor/Superconductor Quantum Coherence Effect and Quantum Information (国際学会)
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 横澤 峻元, A. Popert, M. D. Fraser, 島崎 佑也, 渡邊 賢司, 谷口 尚, 山本 倫久, A. Imamoglu, 樽茶 清悟
2. 発表標題 単層遷移金属ダイカルコゲナイドヘテロ積層構造における層間励起子の電氣的駆動に向けて
3. 学会等名 日本物理学会2018年秋季大会
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 田中未羽子, 島崎佑也, Ivan Borzenets, 渡辺賢司, 谷口尚, 山本倫久, 樽茶清悟
2. 発表標題 2層グラフェンのゼロランダウ準位におけるスピンパレーホール効果の観測
3. 学会等名 日本物理学会2018年秋季大会
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 Michihisa Yamamoto
2. 発表標題 Spin-valleytronics in bilayer graphene
3. 学会等名 3rd International Conference on Emerging Advanced Nanomaterials (ICEAN2018) (招待講演) (国際学会)
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 Michihisa Yamamoto
2. 発表標題 Spin-valleytronics in atomic layer materials
3. 学会等名 1st International Workshop on 2D Materials (招待講演) (国際学会)
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 山本倫久
2. 発表標題 2層グラフェンにおけるスピンバレー流
3. 学会等名 日本物理学会第74回年次大会 (招待講演)
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 田中未羽子, 島崎佑也, Borzenets Ivan, 谷口尚, 渡辺賢司, Deacon Russell, 山本倫久, 樽茶清悟
2. 発表標題 数層グラフェンの磁場下での非局所測定
3. 学会等名 日本物理学会
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 山本倫久
2. 発表標題 グラフェンにおけるスピンバレートロニクス
3. 学会等名 CUPALワークショップ「トポロジカル物質・原子層物質の新規物性」(招待講演)
4. 発表年 2017年

1. 発表者名 M. Yamamoto
2. 発表標題 Graphene-based superconductor electronics
3. 学会等名 The 9th Conferences on Recent Progress in Graphene and Two-dimensional Materials Research (RPGR2017) (招待講演)
4. 発表年 2017年

1. 発表者名 M. Tanaka, Y. Shimazaki, I. Borzenets, T. Taniguchi, K. Watanabe, M. Yamamoto, and S. Tarucha
2. 発表標題 Non-local transport in symmetry broken state of bilayer graphene under magnetic field
3. 学会等名 The 9th Conferences on Recent Progress in Graphene and Two-dimensional Materials Research (RPGR2017)
4. 発表年 2017年

1. 発表者名 M. Yamamoto
2. 発表標題 Graphene-based valleytronics and superconductor electronics
3. 学会等名 2nd EU flagship-Japan workshop (招待講演)
4. 発表年 2017年

〔図書〕 計1件

1. 著者名 山本倫久	4. 発行年 2017年
2. 出版社 丸善プラネット	5. 総ページ数 16
3. 書名 “カーボンが生む新しい物理 - グラフェンバレートロニクス” (「カーボンが創る未来社会」)	

〔産業財産権〕

〔その他〕

ホームページ (理化学研究所) https://www.cems.riken.jp/jp/laboratory/qedru
--

6. 研究組織

	氏名 (ローマ字氏名) (研究者番号)	所属研究機関・部局・職 (機関番号)	備考
研究分担者	樽茶 清悟 (Tarucha Seigo) (40302799)	国立研究開発法人理化学研究所・創発物性科学研究センター・グループディレクター (82401)	

7. 科研費を使用して開催した国際研究集会

〔国際研究集会〕 計0件

8. 本研究に関連して実施した国際共同研究の実施状況

共同研究相手国	相手方研究機関			
スイス	ETHチューリッヒ			
米国	デューク大学			
香港	City University of Hong Kong			