

令和 3 年 4 月 30 日現在

機関番号：12701

研究種目：挑戦的研究（萌芽）

研究期間：2019～2020

課題番号：19K22100

研究課題名（和文）ナノ空間コヒーレント熱・電子伝播計測システムの開発

研究課題名（英文）Development of a spectroscopic system applicable to nanoscale coherent thermoelectric measurements

研究代表者

武田 淳（Takeda, Jun）

横浜国立大学・大学院工学研究院・教授

研究者番号：60202165

交付決定額（研究期間全体）：（直接経費） 5,000,000円

研究成果の概要（和文）：ナノスケールかつ超高速で熱フォノン・電子伝播を自在に制御する処方箋を構築することは、次世代のナノフォトニクス・熱電変換デバイスの開発にとって必要不可欠である。そこで本研究課題では、広帯域（顕微）コヒーレントフォノン分光、テラヘルツ駆動の走査トンネル顕微鏡を開発した。また2つの手法を駆使し、多層グラフェンの高周波フォノンの電子・格子相互作用の膜厚依存性、単層グラフェンの超高速光学応答のフェルミレベル依存性、周期的孔構造を持つグラフェンフォノンニック結晶の電子状態を明らかにした。

研究成果の学術的意義や社会的意義

次世代のナノフォトニクス・熱電変換デバイスとして期待されるグラフェンの高周波フォノンの伝播ダイナミクスや電子・フォノン相互作用、また周期的孔構造をもつグラフェンフォノンニック結晶の電子状態はこれまで明らかではなかった。本研究で開発した広帯域（顕微）コヒーレントフォノン分光とテラヘルツ電場駆動走査トンネル顕微鏡を駆使することにより、これまで未知であったグラフェンのフォノンダイナミクスやバイアス印可時の超高速光学応答、新規のナノグラフェン物質の電子状態を明らかにすることができた。これらの基礎特性は、今後、グラフェン関連物質の応用研究に極めて重要である。

研究成果の概要（英文）：Observation of electron and phonon dynamics in ultra-high spatiotemporal resolutions is highly desired to develop next generation nanophotonics and thermoelectric devices. In this study, we have built up broadband coherent spectroscopy and terahertz-field-driven scanning tunneling microscopy. By utilizing two spectroscopic techniques, we could unveil high-frequency phonon dynamics in multi-layer graphene, ultrafast optical modulation of gated single-layer graphene, and electronic states of a graphene phononic crystal.

研究分野：光物性、ナノフォトニクス

キーワード：グラフェン コヒーレントフォノン 走査トンネル顕微鏡

様式 C - 19、F - 19 - 1、Z - 19 (共通)

1. 研究開始当初の背景

ナノスケールかつ超高速で熱フォノン・電子伝播を自在に制御する処方箋を構築することは、次世代のナノフォトニクス・熱電変換デバイスの開発にとって必要不可欠である。このため、シリコン (Si) をベースにしたシリコンフォノンニック結晶 (Si-PnC) を用いて、熱フォノンの波動的伝播を制御し、低熱伝導性かつ高電気伝導性を実現しようという研究が行われはじめた (K. D. Parrish *et al.*, **JAP** **122**, 125101, 2017; M. Nomura *et al.*, **APL** **106**, 223106, 2015)。一方、Si-PnC は、その機械的特性 (ヤング率 \sim 100 GPa; デバイ温度 \sim 640 K) から、制御可能なフォノンの帯域は GHz 帯域に限られ、広帯域で熱フォノンを制御することは困難である。そこで、高い対称性に由来したディラック電子により極めて高い電子・正孔易動度を示すグラフェンに着目した (K. S. Novoselov, A. K. Geim *et al.*, **Nature** **438**, 197, 2005 他)。加えて、グラフェンは、2次元平面内で炭素原子が sp^2 結合しているため、Si に比べて1桁大きな機械的特性 (ヤング率 \sim 4 TPa; デバイ温度 \sim 2800 K) を持つ。このため、 \sim 10 nm のナノ周期構造を造り込んだグラフェンフォノンニック結晶 (G-PnC) を作製可能であり、広帯域に渡る熱フォノン制御に基づく高速熱電変換システムの構築が可能である。一方、G-PnC の熱フォノン伝播特性を明らかにするためには、GHz \sim 10 THz の熱フォノン自身の他にグラフェンに特有な高周波 G モード、D モードフォノン (37 \sim 40 THz) を同時に実時間検出することが望ましい。なぜならば、熱フォノンの伝播は、散乱因子に極めて敏感だからである。加えて、フォノン制御を行いながらナノ \sim マイクロスケールでの電子の伝播特性を直接評価する分析ツールを開発することが必要不可欠である。このような背景から、応募者が得意とする超高速ナノフォトニクス技術を活かし、「ナノ空間コヒーレント熱・電子伝播計測システム」の開発にチャレンジすることにした。

2. 研究の目的

ナノスケールかつ超高速で熱フォノン・電子伝播を自在に制御する学理を構築することは、次世代のナノエレクトロニクス・熱電変換デバイスの開発にとって避けては通れない命題である。この実現のためには、(a) フォノンの波動的伝播を微細加工技術により精密制御することおよび (b) フォノン・電子両者の伝播ダイナミクスをナノ \sim マイクロスケールで明らかにする分析ツールを開発することが必要不可欠となる。

(a) においては、高い対称性に由来した特異な線形バンド分散 (ディラック電子) により極めて高い電子・正孔易動度を示すグラフェンに着目した (K. S. Novoselov, A. K. Geim *et al.*, **Nature** **438**, 197, 2005 他)。またグラフェンは、2次元平面内で炭素原子が sp^2 結合しているため、Si に比べて1桁大きな機械的特性 (ヤング率 \sim 4 TPa; デバイ温度 \sim 2800 K) を持つ。このため、 \sim 10 nm サイズのナノ周期構造を造り込むことで、GHz \sim 10 THz 帯域に自在にフォノンニックバンドギャップを形成することができる。 \sim 10 nm サイズの微細加工は現在の技術で達成可能な数値であり、グラフェン自身の持つ良質な電気特性と相まって、構造を造り込んだナノグラフェンは、高周波熱フォノンおよび電子伝播を自在に制御・操作する最適なプラットフォームであると考えられる。

一方、(b) においては、フォノン・電子両者の伝播ダイナミクスをナノ \sim マイクロスケールで明らかにする計測技術がないのが現状である。そこで本研究課題では、グラフェン及びサブ 10 nm の周期的ナノ孔を持つ G-PnC をプラットフォームとし、そのフォノン伝播のダイナミクスを検出する広帯域 (顕微) コヒーレントフォノン分光技術を開発することを目的とする。また、研究代表者が開発した位相制御テラヘルツ走査トンネル顕微鏡 (**THz-STM**: **Nat. Photon.** **10**, 762, 2016) を活用し、熱フォノンや電子の伝播ダイナミクスをナノスケールで評価することを目指した。2つの分析ツールを活用して、グラフェン及び G-PnC のコヒーレント熱・電子伝播特性を計測し、ナノグラフェンを始めとした原子層物質における熱・電子輸送特性を自在にマネジメント

する方法論を創出する。

3. 研究の方法

(1) G-PnC 標準試料の作製とキャラクタリゼーション

収束 He⁺ビームによる超微細ミリング加工技術、電子線による並列ナノ孔アレイ加工技術を駆使し、様々な周期的ナノ孔を持つ大面積 G-PnC を作製しそのキャラクタリゼーションを行う。有限要素シミュレーションによりフォノンニックバンド構造を計算し、対応する G-PnC の作製を試みる。

(2) 広帯域コヒーレントフォノン分光技術の開発

サブ 10 fs 超短パルスオシレータからの出力をポンプ光・プローブ光の 2 つに分け、光学遅延ステージを経由してサンプルに集光する。レーザー波長、光学素子等の工夫により、マイクロスケールでの広帯域ポンプ・プローブコヒーレントフォノン分光を実行する。光学系に挿入した負チャージミラー及びウェッジ、更にはポンプ光側光路に挿入するプログラマブル位相変調器により分散媒質による群速度分散を精密制御し、高時間分解 (~10 fs) を達成する。

(3) STM 及び THz-STM による G-PnC の電子状態観測

STM 及び THz-STM において、探針をナノスケールで移動させながらトンネル電子を計測し、トンネル電子数の空間発展及び微分コンダクタンス計測から G-PnC の電子状態をナノスケールで明らかにする。

4. 研究成果

以下に、得られた成果を列挙する。

(1) CVD 成長させた多層グラフェンの高周波フォノンの電子・格子相互作用の膜厚依存性を明らかにするため、顕微ラマン分光法を用いたファノ共鳴のイメージングを行った。その結果、高周波 G モードの電子・格子結合定数の層数依存性を 1-2 ミクロンの空間分解で計測することができた。観測したファノ共鳴の振る舞いは、レーザー誘起のサンプルの温度上昇によりグラフェンのフェルミレベルと緩和時間が変調を受けることで理解できる。

(2) 単層グラフェンの超高速光学応答のフェルミレベル依存性を、イオン液体によるバイアス印加のもとで、サブ 10 フェムト秒ポンプ・プローブ法により計測した。その結果、フェルミレベルが励起光のエネルギーの半分程度になったとき、電子応答の緩和時間と振幅が最大になることを見出した。ポンプ光誘起の光学伝導度の解析から、緩和経路のブロッキングが超高速の光学変調に寄与していることを明らかにした。

(3) 周期的孔構造を持つ G-PnC において、STM を用いたトポグラフィイ像及びトンネル電子、微分コンダクタンス計測から電子状態を明らかにした。

これらの結果から、レーザーを用いた(顕微)ポンプ・プローブ分光と STM による電子状態計測を複合的に行うことにより、ナノスケールかつ超高速でフォノン・電子伝播を計測できることを見出した。

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計1件（うち査読付論文 1件/うち国際共著 1件/うちオープンアクセス 0件）

1. 著者名 Katayama Ikufumi, Inoue Kei-ichi, Arashida Yusuke, Wu Yang, Yang Hyunsoo, Inoue Taiki, Chiashi Shohei, Maruyama Shigeo, Nagao Tadaaki, Kitajima Masahiro, Takeda Jun	4. 巻 101
2. 論文標題 Ultrafast optical modulation of Dirac electrons in gated single-layer graphene	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 Physical Review B	6. 最初と最後の頁 245408
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1103/PhysRevB.101.245408	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

〔学会発表〕 計8件（うち招待講演 2件/うち国際学会 3件）

1. 発表者名 K. Asakawa, K. Kimura, Y. Morinaga, K. Yoshioka, M. Horikawa, Y. Arashida, H. Imada, I. Katayama, Y. Kim, and J. Takeda
2. 発表標題 Development of Low-Temperature THz-Driven Scanning Tunneling Microscope
3. 学会等名 International Symposium on Hybride Quantum System 2019 (HQS2019) (国際学会)
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 J. Takeda, K. Yoshioka, Y. Arashida, and I. Katayama
2. 発表標題 Ultrafast Electron Manipulation Using THz Scanning Tunneling Microscopy With Tailor-Made Near Fields
3. 学会等名 International Photonics and OptoElectronics Meetings (POEM 2019) (招待講演) (国際学会)
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 片山郁文、吉岡克将、武田 淳
2. 発表標題 パルステラヘルツ近接場によるナノスケール・超高速トンネル電子制御
3. 学会等名 日本光学会年次学術講演会 (招待講演)
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 小玉暢之、嵐田雄介、浅川寛太、金島圭佑、片山郁文、武田 淳
2. 発表標題 表面電子系の高強度THz現象解明へ向けた超高真空THz-STMの開発
3. 学会等名 日本物理学会第75回年次大会
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 M. Kobayashi, Y. Arashida, K. Asakawa, K. Konishi, J. Yumoto, M. Kuwata-Gonokami, J. Takeda, and I. Katayama
2. 発表標題 Ultrafast Dynamics in Ge ₂ Sb ₂ Te ₅ Thin Films during Laser-Induced Successive Surface Modification
3. 学会等名 The 22nd International Conference on Ultrafast Phenomena 2020 (国際学会)
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 金島圭佑、萩原俊雄、青井一右、柴田准希、O. S. Handegard、長尾忠昭、嵐田雄介、武田 淳、片山郁文
2. 発表標題 低温下におけるビスマス中ディラック電子のサブサイクルTHz分光：相対論的加速効果とツェナートンネリング
3. 学会等名 日本物理学会2020年秋季大会
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 小林真隆、嵐田雄介、浅川寛太、金島圭佑、小西邦昭、湯本潤司、五神 真、武田 淳、片山郁文 (2/
2. 発表標題 Ge ₂ Sb ₂ Te ₅ 薄膜のLIPSS形成におけるマルチパルス超高速ダイナミクスの観測
3. 学会等名 日本物理学会第76回年次大会
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 五十嵐一步, 石川雅士, 山本祐揮, 嵐田雄介, 吉田昭二, 武内修, 重川秀実
2. 発表標題 光励起-中赤外STMによる時間分解トンネル電流測定
3. 学会等名 2020年日本表面真空学会学術講演会
4. 発表年 2020年

〔図書〕 計0件

〔産業財産権〕

〔その他〕

武田・片山研究室 http://www.ultrafast.ynu.ac.jp/

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	嵐田 雄介 (Arashida Yusuke) (30715181)	筑波大学・数理物質系・助教 (12102)	

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		
シンガポール	National University of Singapore		