

令和 6 年 6 月 3 日現在

機関番号：24405

研究種目：挑戦的研究（開拓）

研究期間：2021～2023

課題番号：21K18193

研究課題名（和文）機械的揺らぎを抑圧した2次元材料による高純度量子エミッタ

研究課題名（英文）High-purity quantum emitters using two-dimensional materials with suppressed mechanical fluctuations

研究代表者

秋田 成司（Akita, Seiji）

大阪公立大学・大学院工学研究科 ・教授

研究者番号：60202529

交付決定額（研究期間全体）：（直接経費） 19,900,000円

研究成果の概要（和文）：hBN単一光子源の発光特性と静的歪の関係およびそのナノ機械振動子のモード間結合による振動の抑圧、さらに、それらの結合による機械的振動の冷却に関する研究を行った。理論的に複数の振動子のコヒーレント結合系の振動ダイナミクスの数値解析を行い、振動子間の位相同期条件を明らかにした。グラフェン/hBNハイブリッド膜機械共振器とすることで温度安定性が向上した。さらに、積層層間相互作用に起因すると思われる機械的な共振モードの分裂およびそのモード間でのエネルギー移動を実現し、目的とする振動の抑制に成功した。さらに、弱く結合した2つのナノ電気機械共振器の振動制御により同様のモード結合状態を実現した。

研究成果の学術的意義や社会的意義

2次元物質の欠陥は表面近傍に存在しており外場との結合が容易であり高感度な量子センサとして期待されている。本研究ではhBN/グラフェン積層機械振動子という高感度力検出器（Phonon系）との量子系を組み合わせた量子ハイブリッド系のプラットフォームを提供した事に意義がある。これから単体では実現し得ない超高感度なセンサデバイスへの実現に寄与することが期待できる。また、層間相互作用に基づく機械振動のモードカップリングとその機械的な振動エネルギー移動はこれまで報告されたことが無く原子層積層系の相互作用理解への新たな知見を与えたことは学術的に意義があると言える。

研究成果の概要（英文）：We investigated the strain dependence of the emission properties of an hBN single photon source, and the suppression of vibrations by inter-mode coupling in a nanomechanical oscillator. Furthermore, we realized a weakly coupled mechanical oscillator for further cooling of mechanical vibrations due to the energy exchange between them. We performed theoretical analysis of the vibration dynamics of a coherently coupled oscillators, and clarified the conditions for phase synchronization between the oscillators. By stacking graphene and hBN, we found the exceptional temperature stability of the resonance frequency. Furthermore, we realized the mode splitting of mechanical resonance, which originates from the interactions between the stacked layers resulted from the energy transfer between the modes, which results in suppressing the desired vibrations. Furthermore, we realized a similar mode coupling by controlling the vibration of two weakly coupled nanoelectromechanical resonators.

研究分野：電子物理工学

キーワード：量子エミッタ 揺らぎ ナノ電気機械 2次元材料

様式 C-19、F-19-1 (共通)

1. 研究開始当初の背景

原子層膜は機械的特性に優れているだけでなく、従来のバルク材料で構成された機械振動子に比べて軽量であることから省電力駆動かつ数 GHz 程度の高周波動作が可能な原子層膜ナノ電気機械デバイス (NEMS) が実現できる。さらに、窒素空孔(NV)中心を持つダイヤモンドと同様に室温でも単一光子源となる量子エミッタとしても注目を集めている。しかし、発光中心となる欠陥周辺の歪みや電荷の揺らぎのため発光が不安定でスペクトルに広がりがあることが問題となっており、これの抑制技術の開発が必須であった。

2. 研究の目的

本研究では原子層 NEMS 非線形ナノ機械振動子をプラットフォームとし、機械的振動のような低周波フォノンと光・電子系とを協奏させた量子マニピュレーションを行い、機械的揺らぎを量子極限まで抑圧した量子エミッタからの線幅の狭い高純度な単一光子の生成とその応用に関する分野の開拓を究極の目的とし以下の項目を実現することを本研究の目的とした。

(1) hBN カラーセンター種類と歪みの効果の理解

単一光子源と機械的共振モードとの結合の理解には、機械的な振動に起因した電子状態変調の理解が重要となる。本項目では hBN の発光を通し欠陥の電子状態の揺らぎと機械的揺らぎの関係の知見を蓄積することを目的とした。

(2) ナノ機械振動子のモード間結合と機械的エネルギー移動の理解

最終目標の機械的振動の抑圧を実現するにはナノ機械振動子のモード間結合と機械的エネルギー移動の理解が重要である。さらに、非線形振動を通した重ね合わせも利用し、機械振動と外場との間でのエネルギー移動を通した系の共鳴現象による機械的共振制御を実現することを目的とした。

(3) ナノ機械共振器の結合とシステム化による機械的振動モードの冷却

究極の目標に達するためには、単一の機械共振器内でのモード結合によるエネルギー移動の冷却効果を凌駕する冷却効果を実現する必要がある。ここでは、先の項目で得た知見をもとに、まず、複数の NEMS の結合とシステム化による特定の機械的振動モードの冷却や特定モードのみの高純度な共振を実現する事を目的とした。

3. 研究の方法

(1) hBN カラーセンター種類と歪みの効果の理解

単一光子源と機械的共振モードとの結合の理解には、機械的な振動に起因した電子状態変調の理解が重要となる。本項目では hBN の発光を通し欠陥の電子状態の揺らぎと機械的揺らぎで発生する機械的な歪みとの関係の知見を蓄積した。

(2) ナノ機械振動子のモード間結合と機械的エネルギー移動の理解

機械的振動の抑圧を実現するには NEMS 共振器のモード間結合と機械的エネルギー移動の理解が重要である。ここでは、非線形振動を通した重ね合わせも利用し、機械振動のモード間エネルギー移動を通した機械的共振の制御による揺らぎの抑圧を実現する。実験では電界で振動制御の容易なグラフェンと単光子源である hBN を積層したハイブリッド量子系を目指して、積層グラフェン/h-BN 機械的共振器に関して検討を進めた。

(3) ナノ機械共振器の結合とシステム化による機械的振動モードの冷却

単一の機械共振器内でのモード結合によるエネルギー移動の冷却効果を凌駕するために、エネルギー移動が可能な結合した2つのグラフェン NEMS を結合した場合の機械的共振特性の解析をすすめた。さらに、複数の NEMS 共振器ネットワークを実現するために理論的なモデル構築を行い解析した。また、理論モデルを検証するために発光体と Si₃N₄ 膜機械共振器を用いてモデル実験を行った。

4. 研究成果

(1) hBN カラーセンター種類と歪みの効果の理解

①単光子源 h-BN の面内歪み検出

単光子源である hBN を機械共振器とカップリングする上で、hBN の光学特性に影響を与える面内歪みを可視化することは非常に重要である。本研究では hBN に 10¹⁵/cm² のドーズ量で窒素イオンを注入してホウ素空孔 (VB) を導入し、VB由来のフォトルミネッセンス信号を光検出磁

気共鳴 (ODMR) により歪み計測可能な検出手法を確立した。欠陥導入後の hBN 膜のフォトルミネッセンスは 820nm を中心とした VB⁻由来のスペクトルであることが確認できた(図 1)。この信号を用いて ODMR 計測を行った結果、VB⁻のゼロ磁場分裂に起因した 3.48GHz の信号の観測に成功した(図 2)。ピーク分裂は磁場および歪み量に比例し、ピークシフトは温度に比例するため、本研究で導入した VB⁻由来のスピンのみにより磁場と歪み、温度の検出が可能であることを示した。

②原子層膜への歪み印加の検討

単光子源となる hBN 膜の光学特性を制御することを指向し、再現良く歪みを導入するための要素技術を開発した。歪み導入にはナノインプリント技術を適用することで、簡便に再現良くひずみ導入を検討した。原子層膜のモデル材料としてグラフェンを用い、PMMA 上にドライ転写後、インプリントにより面内に周期的に歪みを導入した。周期的なドーム構造の凹み部分でラマンピークが高波数側にシフトしていることが判明した(図 3)。波数シフトから算出される歪みはおよそ 0.3% の圧縮歪みであり、インプリント時の温度や圧力により歪み量は制御可能である。このように原子層膜に損傷を与えることなく周期歪みを再現良く印加できることを実証した。

③単一発光中心による発光と単原子層膜の機械的歪み・振動の相関の理論的解析

単一発光中心による発光と単原子層膜の機械的歪み・振動の相関を調べるための理論的手法を開発するため、理論グループでは初等的モデルで計算可能な膜内の閉じ込め励起による発光と共振器を結合させた場合の反跳力による機械的振動について調べた。まず、薄膜形状の物体に対して物体そのものの発光による光圧 (発光圧) を計算するための理論的手法を新たに開発し、その応用として金属基板上に浮遊する発光体膜の発光圧ダイナミクスを議論した。具体的には、発光現象を微視的に記述する量子マスター方程式と微視的 Maxwell 方程式を、光学的共振器が存在する条件で連立させ光学応答を計算した。さらにその光学応答に基づいて機械振動子に印加される光圧を計算する手法を開発した。そのようにして計算された発光圧に基づいて、発光による反跳力が単原子層機械振動子の運動にどのような影響を与えるかを巨視的な運動方程式により明らかにしてきた。その結果、金属基板と薄膜で形成される光共振器効果により、発光体が捕捉され、自発振動が生じることが明らかになった。

(2) ナノ機械振動子のモード間結合と機械的エネルギー移動の理解

①グラフェン/hBN ハイブリッド機械共振器のエネルギー移動

NEMR はデバイスの熱容量が小さいため、わずかな温度変化でも大きな熱ひずみが生じ、共振周波数が変調されてしまい、デバイスの安定動作を妨げてしまう。そのため、NEMR における共振周波数の温度安定性は極めて重要である。共振周波数シフトの温度依存性についてゲート電圧 (張力) V_g をパラメータとし調べた。その結果、グラフェン/hBN 積層機械共振では最適なゲート電圧では共振周波数シフトが減少し、温度変化により共振周波数が変化しない (1.0%/K 以下) ことが分かった(図 4)。

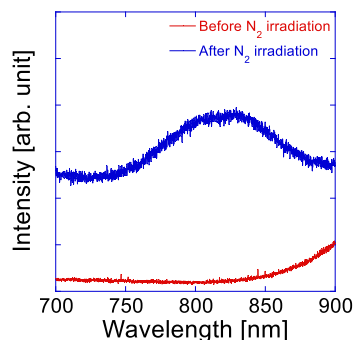


図 1 窒素イオン注入前後の hBN のスペクトル

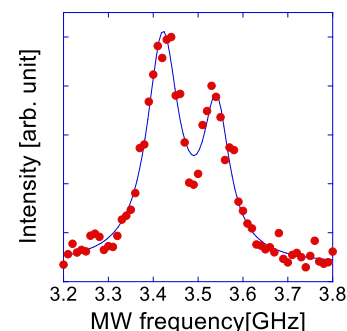


図 2 hBN の ODMR スペクトル

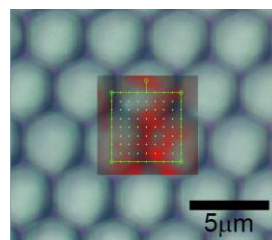


図 3 インプリントによる歪み導入したグラフェンの光学顕微鏡像とラマン強度分布 (赤い部分が高波数)

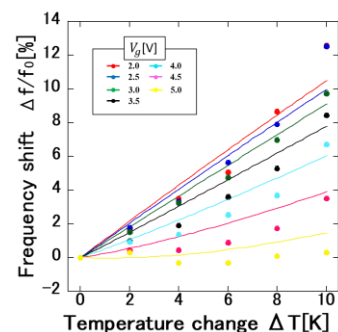


図 4 グラフェン/hBN 積層機械共振器の共振周波数シフトの温度依存性

さらにグラフェン/hBN 機械共振器ではグラフェン単膜の機械共振器では観測されない共振特性を見出した(図 5)。 $V_g=3.1\sim 3.5$ V の領域において縮退した共振モードが Peak A と Peak B の 2 つに分裂していることが分かる。通常は直流のゲート電圧を変調させただけではこのようなモード分裂は発生しない。この原因として、グラフェンと h-BN 間の vdW 結合がゲート電圧によって変調された可能性が考えられる。2 つに分裂したモード間の周波数差 Δf は V_g^2 に比例して増加した(図 6)。ここで、膜にかかる張力 T は V_g^2 に比例することから、膜に発生する張力が分裂した 2 つのモード間に影響を与えていることが分かった。また、2 つの分裂したモードの Q 値の逆数(振動のエネルギー散逸)がゲート電圧の増加に対して、Peak A は減少するが、Peak B は増加するという真逆の傾向が確認できた。また、共振器の総エネルギー損失を示す 2 つのピークの Q 値の逆数の和はほぼ一定であった(図 7)。これらのことから、Peak A から Peak B 間でエネルギー移動が行われていることが明らかとなった。このように、積層層間相互作用に起因すると思われる機械的な共振においてモード分裂および分裂したモード間でのエネルギー移動を見出した。以上のようにモード間エネルギー移動により各々のエネルギー散逸を制御し片方のモードの振動の抑圧に成功した。

②単一発光中心による発光と単原子層膜の機械的歪み・振動の相関の理論的解析

実際の実験を想定して発光体を架橋膜とした系を考え、発光圧ダイナミクスを理論的に解析した。その結果、発光をモニターすることで、機械バネとして働く発光膜の共振特性を計測できることが明らかになった。また機械バネの固有振動数が発光圧によりシフトする「光バネ効果」が現れることを理論的に明らかにした。これらの結果は、発光と、共振周波数の大きく異なる機械共振器の物理的結合が起こることを初めての理論に示したものである。これらの成果は、新奇な物理過程を提案したのみならず、発光体の量子力学的自由度と、マクロな機械的運動の結合を通じたエネルギー変換や情報変換、或いはインコヒーレントな発光のコヒーレントな自由度への変換を実現するための新奇手法開拓の可能性を示している。

(3) ナノ機械共振器の結合とシステム化による機械的振動モードの冷却

①弱く結合した 2 つのナノ電気機械共振器の振動制御 CVD 法で合成した単層グラフェンにより 2 つの結合したグラフェンのドラム構造(各々直径 $6\ \mu\text{m}$) をもつ機械共振器を作製した(Fig. 8)。その結果、一つのグラフェン共振器では観られないような狭い周波数範囲で多モードの共振特性が観察された。これは 2 つのグラフェンドラム型機械共振器が機械的に結合していることを示している。すなわち、これらの共振モードは(2)で観られたのと同様のモードカップリングによるものであると言える。このように 2 つの機械共振器間でのエネルギー移動の観測に成功した。

②単一発光中心による発光と単原子層膜の機械的歪み・振動の相関の理論的解析

理論グループでは発光薄膜を架橋した膜状振動子の共振実験に対するセットアップの提案、理論解析によるフィードバックも行った。さらに発光圧が複数の振動子

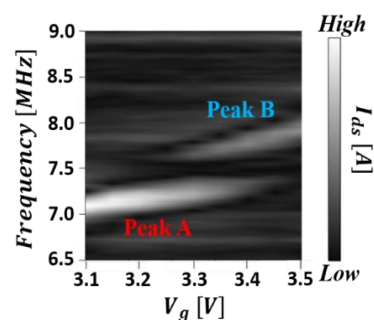


図 5 グラフェン/hBN 積層機械共振器の特異な共振特性

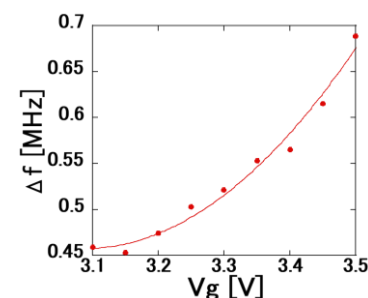


図 6 2 つのモード間の周波数差のゲート電圧依存性

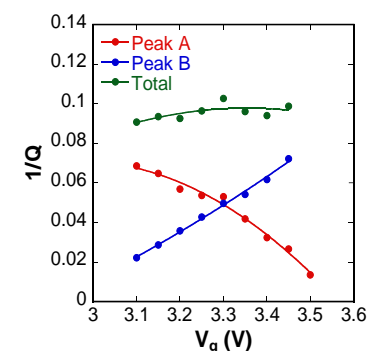


図 7 Q^{-1} (エネルギー散逸)のゲート電圧依存性

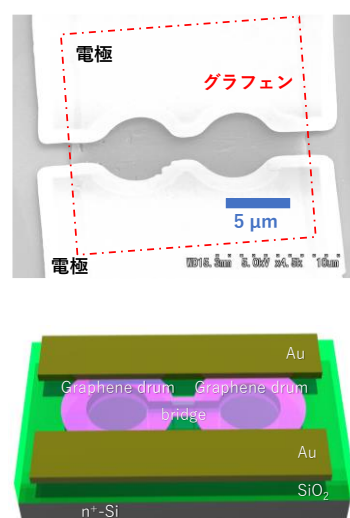


図 8 結合した 2 つのグラフェン機械共振器の SEM 像と模式図

が結合した系に与える影響を調べるための予備研究として、複数の振動子のコヒーレント結合系の振動ダイナミクスの数値解析を行い、振動子間の位相同期条件を明らかにした。これらの成果は単一発光中心による発光と単原子層膜の機械的歪み・振動の相関を明らかにする上で示唆的な結果を与えていると評価できる。

③発光体と機械共振器の共振特性と光熱誘起擾乱の抑制

上記理論で予言されたインコヒーレントな物質の電子状態を反映した蛍光と機械共振器の結合系の実現を目指し研究を進めた。また、蛍光を励起する際に用いる励起光による光誘起熱効果の抑圧は重要である。ここではモデル蛍光物質として強い蛍光を発するペロブスカイト系量子ドットを用いた。これを膜状機械共振器（厚さ 50~100nm、1mm²の SiNx 膜）に塗布し鏡面状の基板の上に数λのギャップを持たせた系を構築した。ここで、機械的振動の駆動法や検出方法の改善により測定系の S/N を向上することで、インコヒーレントな蛍光により機械共振器の機械共振特性の観測に成功した(図 9)。これは理論で予測された光共振器内に置かれた物質の電子系を反映したインコヒーレント発光 (photon) と機械振動(phonon) の結合系が実現できたことを示している。光誘起熱効果の抑制に関しては、熱に関する時定数と光圧の時定数の差に着目しこれらの分離を図った。その結果、蛍光励起光を強度変調したとき、その周波数を高くすることで光誘起熱効果を減少することに成功した(図 10)。このように、システムを構築した際に問題になる熱擾乱の抑制に関して重要な指針を得た。

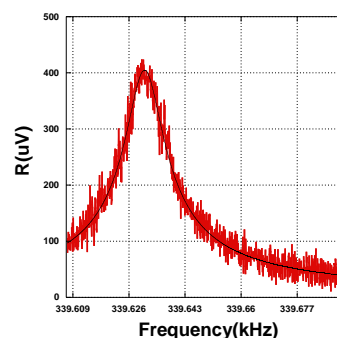


図 9 蛍光により測定した機械共振器の共振スペクトル

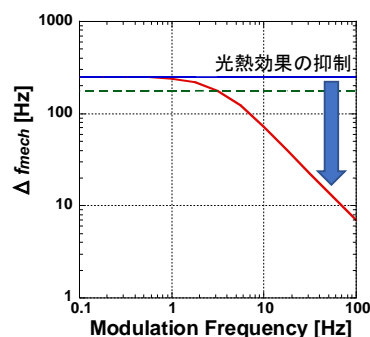


図 10 励起光変調による光誘起熱効果の抑制

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 0件 / うちオープンアクセス 0件）

1. 著者名 K. Yasoshima, R. Oishi, T. Arie, S. Akita	4. 巻 62
2. 論文標題 Unusual resonance property of graphene/h-BN stacked mechanical resonators	5. 発行年 2023年
3. 雑誌名 Japanese Journal of Applied Physics	6. 最初と最後の頁 SG1025 ~ SG1025
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.35848/1347-4065/acbc83	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 -

〔学会発表〕 計10件（うち招待講演 0件 / うち国際学会 1件）

1. 発表者名 掛谷昂平、竹井邦晴、秋田成司、有江隆之
2. 発表標題 二次元材料の積層デバイスにおける層間熱輸送
3. 学会等名 第83回応用物理学会秋季学術講演会
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 荒張秀樹、小西創太、秋田成司、石原一
2. 発表標題 メンブレン型マイクロ機械振動子の発光誘起オプトメカニカル振動
3. 学会等名 第70回応用物理学会春季学術講演会
4. 発表年 2023年

1. 発表者名 荒張秀樹、小西創太、秋田成司、石原一
2. 発表標題 薄膜の発光が誘起するオプトメカニカル振動と光ばね効果
3. 学会等名 第33回光物性研究会
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 荒張秀樹、小西創太、秋田成司、石原一
2. 発表標題 発光により駆動するオプトメカニカル振動運動と光ばね効果
3. 学会等名 第7回フォトニクスワークショップ
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 荒張秀樹、石原一
2. 発表標題 Si ₃ N ₄ 膜を用いた発光駆動キャピティオプトメカニクス
3. 学会等名 日本物理学会
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 K. Yasoshima, R. Oishi, K. Takei, T. Arie, S. Akita
2. 発表標題 Unusual resonance property of graphene/h-BN stacked mechanical resonators
3. 学会等名 35th International Microprocesses and Nanotechnology Conference (国際学会)
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 八十島和輝、大石竜、竹井邦晴、有江隆之、秋田成司
2. 発表標題 グラフェン/h-BN機械共振器の特異な共振特性
3. 学会等名 第83回応用物理学会秋季学術講演会
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 八十島和輝、井上太一、竹井邦晴、有江隆之、秋田成司
2. 発表標題 原子層膜機械共振器の積層による振動制御
3. 学会等名 第82回応用物理学会秋季学術講演会
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 大石竜、竹井邦晴、秋田成司、有江隆之
2. 発表標題 欠陥の導入によるグラフェンの非対角熱電効果
3. 学会等名 第82回応用物理学会秋季学術講演会
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 Yusuke Adachi , Takayuki Arie , Kuniharu Takei , Seiji Akita
2. 発表標題 Activation of single-photon emitter on CVD-hBN treated with thermal process
3. 学会等名 第61回フラーレン・ナノチューブ・グラフェン総合シンポジウム (Web開催、2021年9月1日-3日)
4. 発表年 2021年

〔図書〕 計1件

1. 著者名 Takayuki Arie and Seiji Akita	4. 発行年 2022年
2. 出版社 Springer Nature Singapore Pte Ltd.	5. 総ページ数 341
3. 書名 「Phonon Engineering of Graphene by Structural Modifications」 in Quantum Hybrid Electronics and Materials	

〔産業財産権〕

〔その他〕

大阪公立大学工学研究科 電子物理工学分野 ナノデバイス研究グループ
http://www.pe.osakafu-u.ac.jp/nanodevice-pe4/

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	石原 一 (Ishihara Hajime) (60273611)	大阪大学・大学院基礎工学研究科・教授 (14401)	
研究 分 担 者	有江 隆之 (Arie Takayuki) (80533017)	大阪公立大学・大学院工学研究科・准教授 (24405)	

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
---------	---------