

科学研究費助成事業 研究成果報告書

平成 27 年 5 月 14 日現在

機関番号：11301

研究種目：若手研究(B)

研究期間：2012～2014

課題番号：24740193

研究課題名(和文)原子薄膜の量子物性理論

研究課題名(英文)Quantum theory of atomic layer materials

研究代表者

越野 幹人(Mikito, Koshino)

東北大学・理学(系)研究科(研究院)・准教授

研究者番号：60361797

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 2,700,000円

研究成果の概要(和文)：異種原子層からなる界面、回転積層グラフェン、2層カーボンナノチューブなど、非整合な結晶構造が接する複合系における物性理論を構築し、その電子構造、磁場効果、光物性を調べた。回転積層グラフェン2層系、グラフェン-hBN複合系における電子状態計算および光吸収スペクトルの計算を行い、特に磁場中においては、電子は磁場とモアレ模様両方から影響を受けて非常に複雑な運動をし、スペクトルにHofstadter蝶と呼ばれるフラクタル構造が生ずることを理論、実験両面から明らかにした。

研究成果の概要(英文)：We theoretically studied the basic electronic properties of a wide variety of misoriented atomic layers, including graphene, boron-nitride and also multi-wall carbon nanotubes. We developed an general effective theory to extract the relevant moire super-period by an appropriate coarse-graining process, and calculate the energy band structure, Landau level spectrum in magnetic field and the optical absorption spectra. In magnetic field, particularly, we found that the electron motion becomes highly complicated due to the co-existence of the cyclotron motion and periodic superstructure, giving rise to the fractal energy spectrum called Hofstadter's butterfly. We demonstrate that moire superlattices arising in bilayer graphene coupled to hBN provide a periodic modulation with ideal length scales of the order of 10nm, and confirm the evidence of their recursive structure in the transport measurements.

研究分野：物性理論

キーワード：グラフェン カーボンナノチューブ 原子薄膜

1. 研究開始当初の背景

グラフェンは炭素原子 1 層からなる 2 次元結晶である。その電子構造は母体となる 3 次元物質グラファイトとは大きく異なるため、3 次元系では見られなかった様々な特異な現象が観測され、その研究が爆発的に広がった。グラフェンに続いて他の物質で新しい原子薄膜 (厚さが原子 1 ~ 数個分の薄膜) を探す動きが始まっている。MoS₂, NbSe₂, Bi₂Sr₂CaCu₂O_x といった層状物質で安定な原子薄膜が得られることが示され、また最近では ZnO, BN といった酸化物、窒化物、さらにトポロジカル絶縁体である BiSe 系の薄膜も作成されている。グラフェン同様薄膜なので電場による電荷注入が可能で、また微細加工によるナノ構造作成も可能であり、次世代エレクトロニクス材料としても大いに期待される。これら物質系の研究は、グラフェンを超え原子薄膜 2 次元系という新しい固体物理分野に発展すると予想され、その系統的な基礎理論研究を世界に先駆けて始めることは、今後の実験的、応用的発展のためには極めて重要である。

2. 研究の目的

この研究計画の目的は、様々な原子薄膜物質の量子物性についての系統的な理論を確立し、新たな物性や機能を探査、創成することである。

(1) 原子薄膜の電子構造を理解する 層数、エッジ効果

原子薄膜の電子構造を記述する基礎理論を確立する。薄膜物質は層の数に依存して物性が劇的に変化することが大きな特徴である。一般の原子薄膜でこのような系統的な電子構造解析を行うことは物性解析への最初のステップとなる。

(2) 電気伝導を明らかにする 原子薄膜エレクトロニクスの基礎の確立

原子薄膜が示す電気伝導特性、量子干渉効果、量子ホール効果を明らかにする。原子薄膜の母体となる 3 次元物質には金属 (グラファイト)、半導体 (BN, ZnO, MoS₂)、トポロジカル絶縁体 (BiSe 等; 表面状態を伴う特殊な絶縁体) があり、それを反映して薄膜系も全く異なる伝導特性や干渉効果を持つと期待される。エネルギーギャップの開いた半導体型の原子薄膜では電界効果で電流の on/off が可能でありトランジスタ等の応用上重要である。究極的には異なる薄膜を組み合わせた原子薄膜エレクトロニクスへと発展することも期待される。

3. 研究の方法

研究対象と研究方法:

・物質: 金属 (グラフェン)、半導体 (ZnO, BN, MoS₂ 等)、トポロジカル絶縁体 (BiSe, BiTe

等)

・現象: 電子構造、電気伝導、光物性、軌道反磁性、バレートロニクス
・方法: 有効質量近似に基づく基礎理論の構築 + 海外実験グループとの連携研究

研究年次計画:

ステージ I (1 年目): 原子薄膜の電子構造を記述する理論の構築

ステージ II (1-2 年目): 電気伝導・光物性の理論 / バレー依存の物性の探究

ステージ III (2-3 年目): バレートロニクスの基礎理論確立 / 巨大反磁性物質の探究

1 年目 (平成 24 年度):

・原子薄膜の電子構造を記述する基礎有効理論を構築する。

電気伝導・光物性の理論解析の開始。

・海外研究グループとの連携の立ち上げ

2 年目 (平成 25 年度):

・原子薄膜の電気伝導理論・光物性理論の確立

・バレートロニクスへの取り組み

・海外実験グループとの連携強化: 理論へのフィードバック

3 年目 (平成 26 年度): 研究の総括

・原子薄膜バレートロニクス理論の確立、電子デバイス、光デバイスの提案

・巨大反磁性効果。常温完全反磁性を持つ積層物質の設計

・研究成果の発表 (国内・国際会議)

4. 研究成果

(1) 非整合原子層膜の物性理論 モアレ積層 2 層膜、2 層カーボンナノチューブ、準結晶

グラフェンに続く新たな 2 次元物質として MoS₂ をはじめとする遷移金属カルコゲナイド、hBN (六方晶窒化ホウ素)、黒リンなど様々な原子層膜が実現され、またそれらを組み合わせさせた複合系が注目を集めている。異なる原子膜を重ねた系では格子の周期が一致しないのでいわゆるモアレ干渉模様を生じ、それがしばしば電子状態に大きな影響を与える (図 1)。

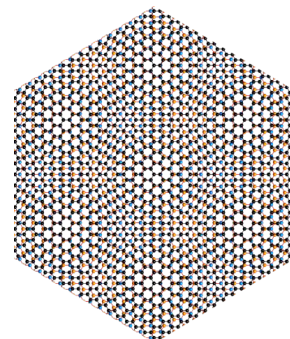
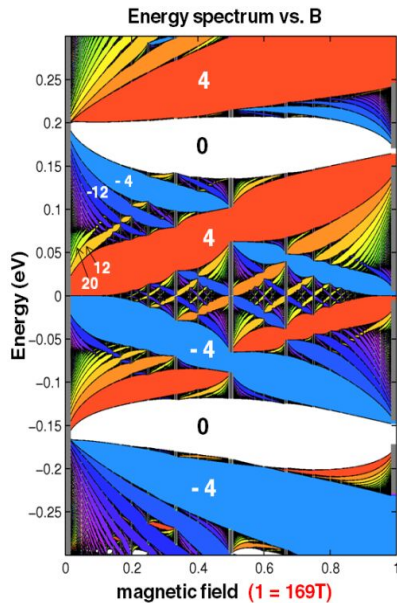


図 1: グラフェンのモアレ積層 2 層膜

この非整合な2次元結晶の物理に着目し、その電子状態を求める手法、及びそれがもたらす物理現象に関して幅広く研究を行った。非整合結晶構造では互いに重なる結晶の間で共通の周期が存在しないため、全体としては非周期系となる。このため結晶周期に依存した従来の固体物理学の基本法則が適用できないという困難が存在する。これを解決するため、我々は適切な疎視化によってモアレの周期のみを取り出す有効理論を確立し[2,14]、それを様々な具体的な非整合系に適用した。まず最も単純なモアレ系である回転積層したグラフェン2層系における電子状態計算および光吸収スペクトルの計算を行った[5,9,14]。特に磁場中においては、電子は磁場とモアレ模様両方から影響を受けて非常に複雑な運動をし、スペクトルにHofstadter 蝶と呼ばれるフラクタル構造が生ずることを明らかにした(図2)。これは非整合積層膜が単独の原子層と大きく異なる



性質を持つことを示す重要な成果である。

図2：モアレ積層2層グラフェンにおける磁場中の電子スペクトル。

グラフェン-hBN 複合系は異種物質からなる非整合系の中で最も代表的なものである。我々は上記の2層グラフェンの研究の方法に基づきグラフェン-hBN 2層系の電子状態と磁場中の量子ホール効果を調べ、モアレ構造が電子の振る舞いに決定的な影響を与えることを示した[5]。hBNは非常に平坦な結晶面を持つ基板として原子層の実験で幅広く使われており、この結果はそれらの実験に対してモアレ相互作用の重要性を示す結果である。

(2) 2層カーボンナノチューブの理論
モアレ積層系の有効理論の適用範囲は2次

元系にとどまらない。原子面が非整合に重なった物質としては、以前より2層カーボンナノチューブ(CNT)が知られていた。CNTはグラフェンを筒状に丸めたものであり、2層CNTは直径の異なる二つのCNTが同軸で重なった構造をとる。内外のチューブの原子構造は特別な場合を除いては非整合であり、そのような場合電子状態が実際にどのようなものかわかっていなかった。我々は上述モアレ相互作用の理論を2層CNTに適用することで、層間の相互作用がそれぞれのナノチューブの性質を大きく変えてしまうことを明らかにした。[4] 具体的には、二つのCNTの結晶構造の関連性によって、半導体チューブが金属に変化したり、また金属のチューブだったものが量子ドットの集合体になり電子の伝導性がほとんど失われたりする。これらは決して珍しい現象ではなく、前者はアームチェアと呼ばれる構造からわずかにずれた時、また後者はジグザグ構造からわずかにずれた時に生じることが明らかになった。

(3) グラフェン hBN系における Hofstadter スペクトルの実現

(Columbia University, MITとの共同研究)
前述のHofstadter蝶は、磁場下の周期構造に見られる一般的現象として1970年代に理論的に予言されたが、観測に必要な長周期を持つ現実の物質がなかったために、現在に至るまで見つかっていなかった。我々の理論研究が示したように、モアレ系は10nm以上の長くかつ正確な周期構造を持つ自然の物質であり、Hofstadter蝶が現実的な磁場の大きさで実現可能となる。我々はコロビア大学のC. Dean, P. Kimらとの共同研究で、磁場中の2層グラフェン-hBN系におけるホール伝導度測定を行い、その電子構造と量子化ホール伝導度の値を理論計算と照らし合わせることで、Hofstadter蝶のフラクタルギャップであることを証明した[13](図3)。これは40年来待たれていたHofstadter蝶の最初の実験的実現となった。次いでMITのA. Young, P. Jarillo-Herreroらとの共同研究において、単層グラフェン-hBN系におけるHofstadter蝶の観測に成功した[12]。

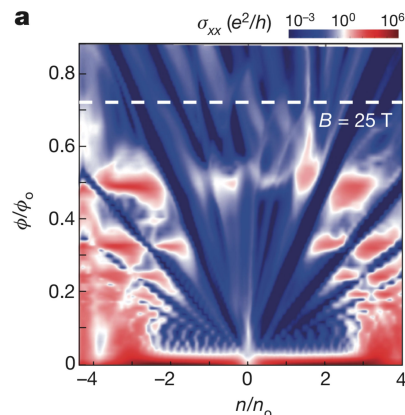


図3：グラフェン-hBN系で測定された電気伝

導度の密度図。[13]

5. 主な発表論文等

(研究代表者、研究分担者及び連携研究者には下線)

[雑誌論文](計22件)

1. Spin-dependent Refraction at the Atomic Step of Transition-metal Dichalcogenides, *Tetsuro Habe and Mikito Koshino, accepted in Phys. Rev. B Rapid Communications.
2. Interlayer interaction in general incommensurate atomic layers, *Mikito Koshino, New J. Phys. 17, 015014 (2015). (査読有)
3. Quantum transport in three-dimensional Weyl electron system in the presence of charged impurity scattering, *Yuya Ominato, Mikito Koshino, Phys. Rev. B 91, 035202 (2015). (査読有)
4. Incommensurate double-walled carbon nanotubes as one-dimensional moiré crystals, * Mikito Koshino, Pilkyung Moon, Young-Woo Son, Phys. Rev. B 91, 035405 (2015). (査読有)
5. Optical absorption of twisted bilayer graphene with interlayer potential asymmetry, *Pilkyung Moon, Young-Woo Son and Mikito Koshino, Phys. Rev. B 90, 155427 (2014). (査読有)
6. Electronic properties of graphene / hexagonal-boron-nitride moire superlattice, * Pilkyung Moon and Mikito Koshino, Phys. Rev. B 90, 155406 (2014) (査読有)
7. Topological zero modes and Dirac points protected by spatial symmetry and chiral symmetry, * Mikito Koshino, Takahiro Morimoto, and Masatoshi Sato, Phys. Rev. B 90, 115207 (2014) [Editors' Suggestion]. (査読有)
8. Quantum transport in three-dimensional massless Dirac electron system. * Yuya Ominato and Mikito Koshino, Phys. Rev. B 89, 054202 (2014). (査読有)
9. Optical properties of the Hofstadter butterfly in the moire superlattice, *Pilkyung Moon and Mikito Koshino, Phys. Rev. B 88, 241412(R) (2013) . (査読有)
10. Orbital magnetism of graphene nanostructures, * Yuya Ominato and Mikito Koshino, Solid State Commun. 175-176, 51 (2013) . (査読有)
11. Electronic transmission through AB-BA domain boundary in bilayer graphene, *Mikito Koshino, Phys. Rev. B 88, 115409 (2013) . (査読有)
12. Massive Dirac fermions and Hofstadter butterfly in a van der Waals heterostructure, B. Hunt, J. D. Sanchez-Yamagishi, A. F. Young, K. Watanabe, T. Taniguchi, P. Moon, Mikito Koshino, *P. Jarillo-Herrero, R. C. Ashoori Science 340, 1427 (2013) . (査読有)
13. Hofstadter's butterfly in moire superlattices: A fractal quantum Hall effect, C. R. Dean, L. Wang, P. Maher, C. Forsythe, F. Ghahari, Y. Gao, J. Katoch, M. Ishigami, P. Moon, M. Koshino, T. Taniguchi, K. Watanabe, K. L. Shepard, J. Hone, and * P. Kim, Nature 497, 598 (2013) . (査読有)
14. Optical Absorption in Twisted Bilayer Graphene, * Pilkyung Moon and Mikito Koshino, Phys. Rev. B 87, 205404 (2013)
15. The electronic properties of bilayer graphene, * Edward McCann and Mikito Koshino, Rep. Prog. Phys. 76, 056503 (2013) . (査読有)
16. Orbital magnetism of graphene flakes, Yuya Ominato and Mikito Koshino, Phys. Rev. B 87, 115433 (2013) . (査読有)
17. Gate-induced Dirac cones in multilayer graphenes, * Takahiro Morimoto and Mikito Koshino, Phys. Rev. B 87, 085424 (2013) . (査読有)
18. Multilayer graphenes with mixed stacking structure --- interplay of Bernal and rhombohedral stacking, *Mikito Koshino and Edward McCann, Phys. Rev. B 87, 045420 (2013) . (査読有)
19. Stacking-dependent optical absorption in multilayer graphene, * Mikito Koshino, New J. Phys. 15, 015010 (2013) . (査読有)
20. Faraday rotation in bilayer and trilayer graphene in the quantum Hall regime, Takahiro Morimoto, Mikito Koshino and Hideo Aoki Phys. Rev. B 86, 155426 (2012) (査読有)
21. Energy Spectrum and Quantum Hall Effect in Twisted Bilayer Graphene, Pilkyung Moon and Mikito Koshino Phys. Rev. B 85, 195458 (2012) (査

読有)

22. Orbital magnetic susceptibility of finite-sized graphene
Yuya Ominato and Mikito Koshino
Phys. Rev. B 85, 165454 (2012) (査読有)

[学会発表](計12件)

国際学会(招待講演)

1. Mikito Koshino
“Topological protection of Dirac points in spatial symmetry with chiral symmetry”, NQS2014: Novel Quantum State in Condensed Matter 2014 (2014年11月, 京都大学, 京都)
2. Mikito Koshino
“Electronic properties in moire superlattice in rotationally stacked atomic layers”, NT14: The Fifteenth International Conference on the Science and Application of Nanotubes (2014年6月, ロサンゼルス, アメリカ合衆国)
3. Mikito Koshino
“Physics of misoriented atomic layers”
Collaborative Conference on 3D & Materials Research (2014年6月, 仁川, 韓国)
4. Mikito Koshino
“Electronic properties in Moire superlattice in graphene”,
Nanophysics: from fundamentals to applications (2013年8月, Qui Nhon, ベトナム)
5. Mikito Koshino
“Anomalous properties of Dirac particles in graphene and its multilayers”, Anomalous properties of Dirac particles in graphene and its multilayers (2012年12月, 香港, 中国)
6. Mikito Koshino
“Unusual Diamagnetic Response of Graphene”, The 4th International Conference on Recent Progress in Graphene Research (2012年10月, 北京, 中国)
7. Mikito Koshino
“Anomalous magnetic field effects on graphene”, NATO Advanced Research Workshop, Low-Dimensional Functional Materials (2012年10月, Tashkent, Uzbekistan)

国内学会(招待講演)

1. 越野幹人「ディラック電子系の物理 2次元から3次元へ」第三回固体中のディ

ラック電子研究会(2013年12月, かんぼの宿赤穂, 赤穂)

2. 越野幹人「グラフェン:「質量の無い電子」物理」東北大学電気通信研究所共同プロジェクト研究会(2013年11月, 東北大学, 仙台)
3. 越野幹人「モアレ積層グラフェンの強磁場物性」東京大学物性研究所 短期研究会「極限強磁場科学-場、物質、プローブのリンクから融合へ」,(2013年10月, 東大物性研, 柏)
4. 越野幹人“Emergence of massless Dirac electrons in graphene and related materials”
研究会「固体中におけるディラック電子系物理の新展開」(2013年6月, 京都大学, 京都)
5. 越野幹人
「グラフェンの量子物性」(2014年8月, 物性若手夏の学校(浜松ロイヤルホテル, 浜松))

[図書](計1件)

Mikito Koshino and Tsuneya Ando,
“Electronic properties of monolayer and multilayer graphene”, in *Physics of Graphene* (Edited by H. Aoki and M. Dresselhaus), Springer International Publishing 2014.

[その他]

ホームページ等

<http://www.cmpt.phys.tohoku.ac.jp/~koshino/index-j.html>

6. 研究組織

(1)研究代表者

越野 幹人 (Mikito Koshino)

東北大学・大学院理学研究科・准教授

研究者番号: 60361797