

科学研究費助成事業 研究成果報告書

令和 4 年 6 月 24 日現在

機関番号：14301

研究種目：挑戦的研究（萌芽）

研究期間：2019～2021

課題番号：19K22142

研究課題名（和文）高次元データ科学による原子層物質のバレースピンの制御

研究課題名（英文）Control of valley-spin in atomically thin materials based on higher-order data science

研究代表者

松田 一成（Matsuda, Kazunari）

京都大学・エネルギー理工学研究所・教授

研究者番号：40311435

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）：近年、計算機・統計科学の進展を背景に、高次元データの中から本質的な要因を抽出することができるようになりつつある。本研究の目的は、高次元データによる計算機・統計科学のアプローチを物性科学に積極的に取り込み、次世代バレートロンクスに求められる物理の理解を進めることにある。実験から得られた大量のスペクトルデータの情報から、機械学習の一種であるランダムフォレストのアプローチを用いて、バレートロンクスにおいて重要な物理量であるバレースピンの分極を予測するアルゴリズムを構築した。さらに、そこからバレースピンの分極に大きな影響を与える因子を抽出し、高いバレースピンの分極を得るための物理的な指針を得た。

研究成果の学術的意義や社会的意義

本研究を通して、次世代バレートロンクスに向けて求められる、バレースピンの分極の情報を得る新たな手法を開発するとともに、高いバレースピンの分極を得るための指針を得ることができるなど、新たな知見が得られている。それに加えて、物性科学の研究に機械学習に代表される高次元データによる計算機・統計科学のアプローチが有用であることを示すことができた。今後、本研究で対象とした原子層二次元半導体のみならず、人工ヘテロ構造など新たな系においての研究展開が期待される。

研究成果の概要（英文）：Recently, the essential physical factors can be extracted from the higher-order data according to development of computational and statistical science. We have investigated the valley-physics by newly approach of solid state physics using higher-order data science. The prediction method of valley-spin polarization could be developed from large amount of spectral data using random-forest algorithm toward valley-tronics. Moreover, we have obtained the physical guide for gaining large valley-spin polarization in monolayer semiconductors.

研究分野：工学（応用物性）

キーワード：原子層物質 バレースピンの制御 バレートロンクス データ科学

1. 研究開始当初の背景

近年、計算機・統計科学の進展を背景に、高次元データの中から本質的な要因を抽出することができるようになりつつある。物性科学においても、計測技術の進展により数多くのデータが取得できるようになり、その中からいかに本質を抽出するかの視点が重要となっている。それと同調するように、大量のデータの解析アルゴリズムの提案など、計算機・統計科学を利用し新しい物性科学を拓くための研究が進展している。その一方で、次世代エレクトロニクスに向けて、電子スピンの加え運動量空間でのバレー（谷）自由度を利用した「バレー(スピン)トロニクス」と呼ばれる研究の新しい潮流ができつつある。わずかに原子一層分の厚みを有するグラフェン類縁物質である単層遷移金属ダイカルコゲナイド MX_2 ($\text{M} = \text{Mo}, \text{W}; \text{X} = \text{S}, \text{Se}$) では、空間反転対称性の破れと強いスピン軌道相互作用により、運動量空間の $+\text{K}$ ($-\text{K}$) バレーにアップ（ダウン）スピンの自発的に分極する。そのため、スピンとバレーが結合した新しい物理自由度「バレースピン」が発現する。このバレー(スピン)自由度を操作し、情報をエンコードし処理・保存することで、バレートロニクスを活用した物性科学やデバイス応用が期待されている。しかしその実現に向けて数多くの技術的なハードルが存在するのが現状である。

2. 研究の目的

本研究提案の目的は、高次元データを基にした計算機・統計科学のアプローチを物性科学に積極的に取り込み、次世代バレートロニクスに求められる、高いバレースピン分極、極めて長いバレースピン分極保持時間、などを実現するために必要とされる物理の理解を進める、ことにある。具体的には、バレースピン分極を測る方法として円偏光分解分光が用いられるが、ここで得られた大量のスペクトルデータの解析手法を確立する。さらに、大規模スペクトルデータとバレースピン分極の情報から導き出される相関から、バレースピン分極に大きな影響を与える因子を抽出し、高いバレースピン分極を得るための物理的な指針を得る。

3. 研究の方法

バレースピン分極の情報を得るため、室温ならびに極低温で測定可能な円偏光分解発光測定システムを用いる。特に、大量のスペクトル情報を得るため、サンプルステージをスキャンし、サンプル上の各点での円偏光発光スペクトルを測定可能な実験システムとしている。さらにそれに合わせて、 σ^+ ならびに σ^- 円偏光励起と発光検出が可能な光学系を設置している。ここで室温ならびに極低温での大量の円偏光分解発光スペクトルを取得し、これをこの後で詳しく述べる解析に用いた。なお、単層遷移金属ダイカルコゲナイド MX_2 は、単結晶からの機械剥離法で SiO_2/Si 基板上に作製した。また複数の単層 MX_2 からなるヘテロ構造は、ドライトランスファー法を用いて作製している。

4. 研究成果

まず、室温で σ^+ 円偏光励起において、単層 WSe_2 の円偏光分解発光スペクトル測定を行い、発光スペクトルの σ^+ ならびに σ^- 成分を検出した。これまでの報告と同様に、 σ^+ と σ^- 成分の発光スペクトルに差が生じず、室温においては K ならびに $-\text{K}$ バレー間のバレースピン緩和時間が非常に短く、バレースピン分極が生じていないことが確認できる。ここで、サンプル上でのある点で得られた室温での発光スペクトルから、i) 発光エネルギー位置、ii) 強度、iii) 線幅、iv) 強度比（励起子と荷電励起子（トリオン）でのエネルギー）などの、物理的な特徴量を抽出し、この後での解析用のデータセットとした。

さらに、それと空間的に同じ場所において、極低温での円偏光分解発光スペクトル測定を行い、バレースピン分極の情報を得た。実際の円偏光分解の発光スペクトルでは、 σ^+ 円偏光励起において、 σ^+ ならびに σ^- 成分で発光スペクトルの強度差が生じる。この強度差は、 σ^+ 円偏光励起によるバレー選択励起によって、 K バレーのみに励起子が生成され、バレースピン分極が生じていることを示している。そのため、ここから σ^+ と σ^- 成分の強度差に比例する、バレースピン分極の値を得る。これにより、室温での特徴量のデータセット（エネルギー、強度、線幅、強度比）と低温でのバレースピン分極の値が、互いに関係づけられる。次に、複数のサンプルにおいて同様の測定を行い、およそ 30000 点のデータセットを取得した。

次に、機械学習のアプローチを用いて、室温での特徴量のデータセットとここで注目する物理量であるバレースピン分極の間を結びつける、アルゴリズムを導く。ここでは、機械学習の中でも教師あり学習の一種である、ランダムフォレストと呼ばれるアプローチを用いた。これは、ある物理的な複数の特徴量に対して、分類のルールをツリーで表現した決定木を作成し、作成した多数の決定木からアンサンブル学習を行うものとなっている。大量の特徴量のデータセット（エネルギー、強度、線幅、強度比）とバレースピン分極の値から、低温でのバレースピン分極を予測する決定木を作成した。実際にこの決定木を用いて、あるサンプルでのバレースピン分極を予測し、それと実際の実験で得られた値を比較し、それを複数のサンプルで行うことで、相

関係数が 0.97 の高い相関を示すことがわかった。これにより、高次データ科学の一つのアプローチである機械学習、特に、ランダムフォレストのアルゴリズムにより、バレートロンクスに向けて重要な物理量であるバレースピン分極を予測することが可能となった。またこの結果から、励起子の寿命に関する発光強度、さらには、キャリア濃度を反映する強度比とバレースピン分極の間に強い相関があることが確認された。

さらに、複数の単層 MX_2 をファンデアワールス力で重ねた、人工ヘテロ構造においてもバレースピン分極を生じうる。そのため、ここまでで進めてきた研究アプローチを $\text{MoSe}_2/\text{WSe}_2$ 人工ヘテロ構造に適用することを検討した。まずは、バレースピン分極を計測することが可能な、高い品質を有する人工ヘテロ構造の作製を試みた。ポリマーを利用したドライピックアップ・トランスファー法による作製条件、さらには界面でのコンタクト向上、などの最適化を継続して進めた。

そのようにして作製した $\text{MoSe}_2/\text{WSe}_2$ ヘテロ構造に対して、その基礎光学特性となる極低温での発光スペクトルを測定し、モアレ励起子に起因する鋭い発光スペクトルを得た。さらに、この系において極低温でのバレースピン分極の測定を進めた。その結果、微細なスペクトル構造と共に、大きな負のバレースピン分極を観測した。合わせて $\text{MoSe}_2/\text{WSe}_2$ ヘテロ構造における、バレースピン分極とその緩和メカニズムに関する研究を進めた。その結果、フォノン共鳴でバレースピン分極が増大する事、さらに、励起強度に強く依存してバレースピン分極が変化するなどの実験結果が得られた。これらの結果は、 $\text{MoSe}_2/\text{WSe}_2$ ヘテロ構造におけるモアレ励起子の微細構造、ならびに、その励起子準位間のバレー緩和に関係していると考えられる。今後、交換モンテカルロ法などのアルゴリズムを適用し、この微細なスペクトル構造を高い精度でスペクトル分離するための手法について、それを単純化した系を想定し研究を進めるとともに、それが可能かどうか検討する予定としている。

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計9件（うち査読付論文 9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 Tanaka Kenya, Hachiya Kengo, Zhang Wenjin, Matsuda Kazunari, Miyauchi Yuhei	4. 巻 13
2. 論文標題 Machine-Learning Analysis to Predict the Exciton Valley Polarization Landscape of 2D Semiconductors	5. 発行年 2019年
3. 雑誌名 ACS Nano	6. 最初と最後の頁 12687 ~ 12693
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1021/acsnano.9b04220	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 Wang Xiaofan, Shinokita Keisuke, Miyauchi Yuhei, Cuong Nguyen Thanh, Okada Susumu, Matsuda Kazunari	4. 巻 29
2. 論文標題 Experimental Evidence of Anisotropic and Stable Charged Excitons (Trions) in Atomically Thin 2D ReS ₂	5. 発行年 2019年
3. 雑誌名 Advanced Functional Materials	6. 最初と最後の頁 1905961 ~ 1905961
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1002/adfm.201905961	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 Zhang Yan, Shinokita Keisuke, Watanabe Kenji, Taniguchi Takashi, Goto Masato, Kan Daisuke, Shimakawa Yuichi, Moritomo Yutaka, Nishihara Taishi, Miyauchi Yuhei, Matsuda Kazunari	4. 巻 32
2. 論文標題 Controllable Magnetic Proximity Effect and Charge Transfer in 2D Semiconductor and Double Layered Perovskite Manganese Oxide van der Waals Heterostructure	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 Advanced Materials	6. 最初と最後の頁 2003501 ~ 2003501
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1002/adma.202003501	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 Zhang Yan, Shinokita Keisuke, Watanabe Kenji, Taniguchi Takashi, Miyauchi Yuhei, Matsuda Kazunari	4. 巻 31
2. 論文標題 Magnetic Field Induced Inter Valley Trion Dynamics in Monolayer 2D Semiconductor	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 Advanced Functional Materials	6. 最初と最後の頁 2006064 ~ 2006064
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1002/adfm.202006064	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 Wang Xiaofan, Shinokita Keisuke, Matsuda Kazunari	4. 巻 119
2. 論文標題 Radiative lifetime and dynamics of trions in few-layered ReS ₂	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 Applied Physics Letters	6. 最初と最後の頁 113103 ~ 113103
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1063/5.0059198	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 Sato Yuichiro, Nishimura Tomonori, Duanfei Dong, Ueno Keiji, Shinokita Keisuke, Matsuda Kazunari, Nagashio Kosuke	4. 巻 7
2. 論文標題 Intrinsic Electronic Transport Properties and Carrier Densities in PtS ₂ and SnSe ₂ : Exploration of n ⁺ Source for 2D Tunnel FETs	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 Advanced Electronic Materials	6. 最初と最後の頁 2100292 ~ 2100292
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1002/aelm.202100292	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 Shinokita Keisuke, Miyauchi Yuhei, Watanabe Kenji, Taniguchi Takashi, Matsuda Kazunari	4. 巻 21
2. 論文標題 Resonant Coupling of a Moiré Exciton to a Phonon in a WSe ₂ /MoSe ₂ Heterobilayer	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 Nano Letters	6. 最初と最後の頁 5938 ~ 5944
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1021/acs.nanolett.1c00733	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 Pu Jiang, Zhang Wenjin, Matsuoka Hirofumi, Kobayashi Yu, Takaguchi Yuhei, Miyata Yasumitsu, Matsuda Kazunari, Miyauchi Yuhei, Takenobu Taishi	4. 巻 33
2. 論文標題 Room Temperature Chiral Light Emitting Diode Based on Strained Monolayer Semiconductors	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 Advanced Materials	6. 最初と最後の頁 2100601 ~ 2100601
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1002/adma.202100601	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 Zhang Yan, Kim Heejun, Zhang Wenjin, Watanabe Kenji, Taniguchi Takashi, Gao Yanlin, Maruyama Mina, Okada Susumu, Shinokita Keisuke, Matsuda Kazunari	4. 巻 34
2. 論文標題 Magnon Coupled Intralayer Moire Trion in Monolayer Semiconductor-Antiferromagnet Heterostructures	5. 発行年 2022年
3. 雑誌名 Advanced Materials	6. 最初と最後の頁 2200301 ~ 2200301
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1002/adma.202200301	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9件 (うち招待講演 9件 / うち国際学会 5件)

1. 発表者名 Kazunari Matsuda
2. 発表標題 Optical physics in two-dimensional layered materials and its hetero-structures
3. 学会等名 Material Research Meeting (招待講演) (国際学会)
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 Kazunari Matsuda
2. 発表標題 Optical physics in nano-carbon and atomically thin two-dimensional materials
3. 学会等名 The 11th International Conference on Advanced Materials and Devices (ICAMD2019) (招待講演) (国際学会)
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 Kazunari Matsuda
2. 発表標題 Novel optical science in monolayer transition metal dichalcogenide and its heterostructure,
3. 学会等名 The 8th International Workshop on 2D Material (招待講演) (国際学会)
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 Kazunari Matsuda
2. 発表標題 Optical physics of moire excitonic systems in two-dimensional (2D) hetero-structures
3. 学会等名 The 11th A3 Symposium on Emerging Materials (招待講演) (国際学会)
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 Kazunari Matsuda
2. 発表標題 Optical probing of excitonic states in nano-carbon and anisotropic atomically thin two-dimensional materials,
3. 学会等名 2021 International Chemical Congress of Pacific Basin Societies (PacifiChem. 2021) (招待講演) (国際学会)
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 松田一成
2. 発表標題 ナノカーボン・二次元材料の光物性の基礎と応用
3. 学会等名 フラーレン・ナノチューブ・グラフェン学会リレーウエビナー (招待講演)
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 松田一成
2. 発表標題 二次元物質と集積構造の光科学
3. 学会等名 第81回 応用物理学会 秋季学術講演会 (招待講演)
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 松田一成
2. 発表標題 ナノカーボン・原子層物質の光物性の基礎と応用
3. 学会等名 第59回フラーレン・ナノチューブ・グラフェン学会チュートリアル（招待講演）
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 松田一成
2. 発表標題 原子層半導体・ヘテロ構造の光科学とその展開
3. 学会等名 日本物理学会2021秋季大会（招待講演）
4. 発表年 2021年

〔図書〕 計0件

〔産業財産権〕

〔その他〕

-

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

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