

令和元年6月14日現在

機関番号：12601

研究種目：挑戦的研究（萌芽）

研究期間：2017～2018

課題番号：17K18748

研究課題名（和文）遷移金属ダイカルコゲナイドにおけるバレーカロリトロニクスの学理構築

研究課題名（英文）Study of valley caloritronics in transition metal dichalcogenides

研究代表者

井手上 敏也（Ideue, Toshiya）

東京大学・大学院工学系研究科（工学部）・助教

研究者番号：90757014

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）：本研究では、円偏光やスピンの結合したバレー自由度を持つ単層遷移金属ダイカルコゲナイドにおいて、熱勾配や化学ポテンシャル勾配に由来するバレー偏極励起子の特長的輸送現象を包括的に研究した。その結果、バレー偏極励起子が遷移金属ダイカルコゲナイド中を数マイクロメートルにわたって拡散すると同時に、バレー自由度に依存して横方向の運動をするホール効果を示すことを発見した。さらに、遷移金属ダイカルコゲナイドとフェリ磁性体や反強磁性体の界面において、特徴的バレー・スピン緩和現象を観測し、従来研究されてきた遷移金属ダイカルコゲナイドと強磁性体界面におけるバレー・スピン緩和現象を拡張した。

研究成果の学術的意義や社会的意義

本研究は、熱勾配や化学ポテンシャル勾配に由来するバレー輸送に着目したユニークな研究であり、発見した特徴的バレー輸送現象は、バレートロニクスの飛躍的發展に寄与する成果である。励起子ホール効果はバレー偏極励起子流の方向制御に有望であると同時に、バレー流生成の基本的手法になり得る可能性があり、本現象を契機としたバレートロニクス研究の新展開が期待される。また、遷移金属ダイカルコゲナイドとフェリ磁性体や反強磁性体の界面において観測した特徴的バレー・スピン緩和現象は、バレートロニクスとスピントロニクスを橋渡しする重要な成果であり、今後他分野とのさらなる学理融合と相互発展が望まれる。

研究成果の概要（英文）：We studied the characteristic valley transport originating from thermal or chemical potential gradient in a monolayer transition metal dichalcogenide, in which valley degree of freedom couples with circular polarized light or electron spin. We discovered that valley-polarized exciton can diffuse over several micrometers in a monolayer transition metal dichalcogenide and shows the valley-dependent Hall effect. In addition, we further studied the optical properties of the interface between a monolayer transition metal dichalcogenide and ferrimagnetic or antiferromagnetic insulators. We observed spin-dependent or magnon-mediated valley relaxation, which has been only studied in the interface of a monolayer transition metal dichalcogenide and ferromagnetic insulator so far. Our results pave a new way for studying the thermally driven valley transport and spin-related valley physics.

研究分野：固体物理学

キーワード：遷移金属ダイカルコゲナイド バレートロニクス 励起子

様式 C-19、F-19-1、Z-19、CK-19（共通）

1. 研究開始当初の背景

(1) バレーとは非等価な複数の結晶運動量におけるエネルギー縮退した電子バンド構造の自由度であり、電荷・軌道・スピン等に次ぐ固体電子の新たな量子力学的自由度として注目を集めていた。

(2) グラフェンや単層遷移金属ダイカルコゲナイド（図1左）は蜂の巣格子構造を持ち、二つの副格子自由度を反映した運動量空間における非等価な2点（図1右のK点、K'点）において、前述のような電子バンドのエネルギー縮退が生じることが知られており、有望なバレー物質として盛んに研究がなされていた。

(3) 特に、遷移金属ダイカルコゲナイドにおいては、スピンや光の偏光の自由度とバレー自由度が結びついていることが近年明らかにされ（図1右）、円偏光によるバレー偏極電流の生成やバレーホール効果の予言と観測等の新現象の発見に加え、スピントロニクスやオプトエレクトロニクス等、他分野との学理融合・相互発展も飛躍的に進んできていた

(4) しかしながら、熱や化学ポテンシャル勾配に由来するバレー偏極素励起の特徴的拡散・輸送現象の報告は限られていた。

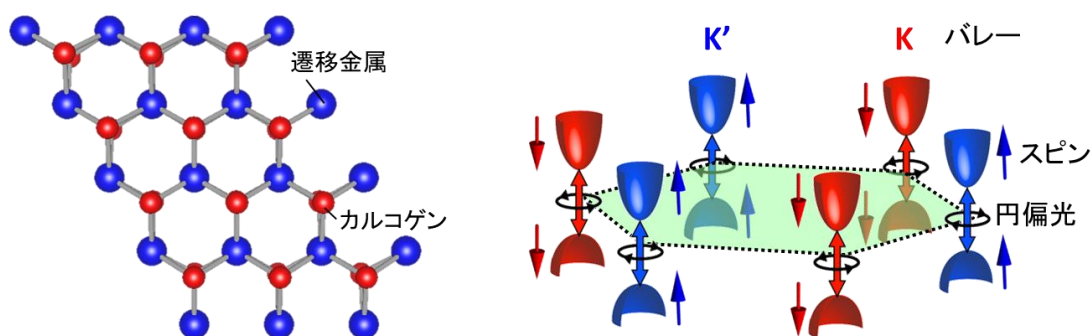


図1. 遷移金属ダイカルコゲナイドの結晶構造（左）とバンド構造（右）

2. 研究の目的

以上の背景のもと、本研究では、熱や化学ポテンシャル勾配に由来するバレー偏極素励起の特徴的拡散・輸送現象を基盤にしたテクノロジー（バレーカロリトロニクス）の基礎学理構築に向けて、2次元遷移金属ダイカルコゲナイドにおける、新規熱バレー輸送現象の開拓を目的とした。

3. 研究の方法

単層遷移金属ダイカルコゲナイドそのものおよび単層遷移金属ダイカルコゲナイドと磁性体界面におけるバレー偏極素励起の特徴的拡散・輸送現象をフォトルミネセンス（PL）測定によって調べた（図2）。非磁性および磁性基板上に劈開法によって単層の遷移金属ダイカルコゲナイドデバイスを作製して、直線偏光や円偏光を照射することで、KバレーおよびK'バレーを等しくあるいは選択的に励起し、その際に試料に生じる円偏光フォトルミネセンスの強度や場所依存性、磁性基板のスピン方位依存性等を観測することにより、バレー偏極した素励起が拡散・輸送されることによって生じる特徴的バレー現象の観測に取り組んだ。

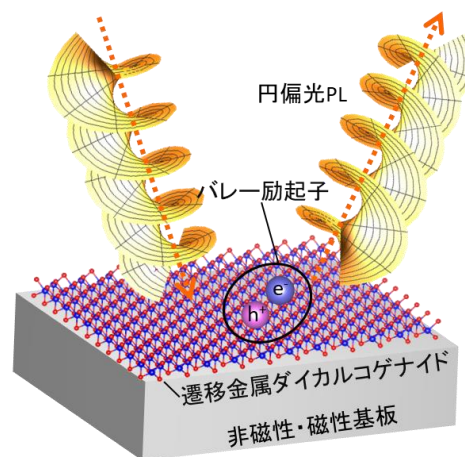


図2. 実験の模式図

4. 研究成果

(1) 単層遷移金属ダイカルコゲナイドにおける励起子ホール効果の発見とバレー励起子流制御

遷移金属ダイカルコゲナイドの一つである二硫化モリブデン単層劈開試料を作製し、そこに光を照射して生成した励起子の温度勾配および化学ポテンシャル勾配による輸送を、励起子が再結合する際に試料から生じるフォトルミネセンスの円偏光分解によって調べた。

その結果、光誘起励起子が単層遷移金属ダイカルコゲナイドMoS₂中を長距離（数マイクロメートル）にわたって輸送され、それと同程度の距離バレー情報も保存されることを明らかにし、バレー偏極励起子がバレー情報を伝達する有望な素励起であることを実証した。また、前述光誘起励起子バレー流の劈開試料中の縦方向の輸送のみならず、横方向の軌道を調べることで、バレー偏極した励起子はそのバレー自由度に依存して横方向の運動をするホール効果を示すことを発見した（図3）。

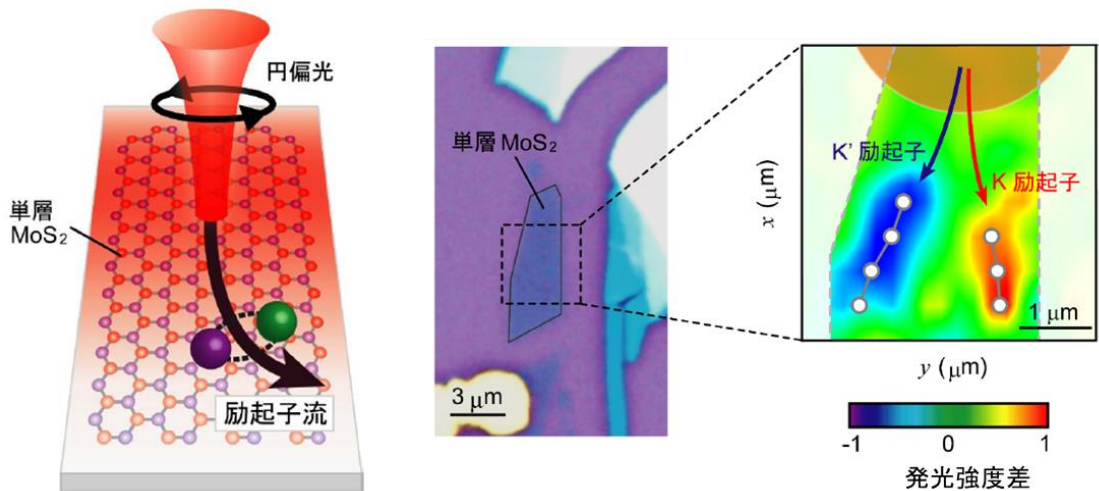


図3. 励起子ホール効果の模式図（左）と単層デバイス（中）に直線偏光を照射した場合の円偏光発光のマッピング測定結果（右）

図3右は、直線偏光を照射した場合に試料から生じる右回りおよび左回り円偏光PLの空間マッピングを示している。右回りおよび左回り円偏光PLは、それぞれKバレーおよびK'バレー励起子の発光に対応しており、どちらの励起子も数マイクロメートルにわたって空間伝送されていることが分かる。加えて、KバレーおよびK'バレー励起子発光はそれぞれ横方向に逆向きにシフトしており、ホール効果を示していることが分かる。観測された直線偏光励起による励起子ホール効果は等しく励起された異なるバレー励起子が横方向に分離されることを意味しており、本現象がバレー偏極励起子流の方向制御に有望であると同時に、バレー流生成の基本的手法になり得る可能性も示唆している。

また、円偏光励起による測定も行い、バレーを選択的に励起した場合にも、それぞれのバレー自由度に依存して右または左向きに熱流やエントロピー流を曲げることが可能であることを実証した（図4）。

本研究で観測された励起子ホール効果のホール角度は、過去に報告された電気的なバレーホール効果（バレー偏極した電子が曲がる現象）に比べて巨大であり、バレー偏極励起子が電子とホールから成る複合素励起子であり、その内部自由度がホール効果巨大化にとって重要であると同時に、バレーカロリトロニクスにおいて、バレー偏極励起子を用いることが極めて大きな可能性を持っていることが示唆された。

さらに、試料形状依存性を詳細に調べ、細長い試料の試料端に光を照射した時のみ励起子ホール効果が観測されることを確認し、ホール効果が観測されるためには試料中に温度勾配および化学ポテンシャル勾配が特定の方向に生じることが必須であることを明らかにした。

得られた光誘起バレー熱輸送と励起子ホール効果に関する知見は論文としてまとめ、出版した（雑誌論文①）。

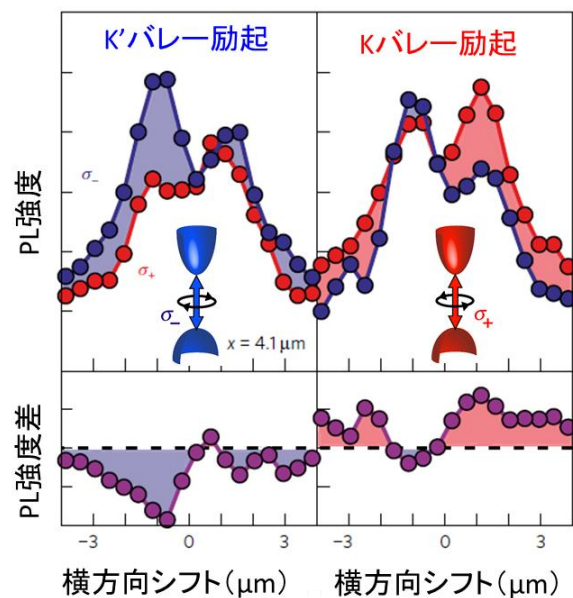


図4. 円偏光励起による励起子ホール効果

(2) 単層遷移金属ダイカルコゲナイド/フェリ磁性絶縁体および単層遷移金属ダイカルコゲナイド/反強磁性絶縁体界面における特徴的バレー・スピン緩和現象の開拓

単層遷移金属ダイカルコゲナイドにおけるバレー拡散現象の研究を進展させ、スピン自由度とバレー自由度との結合に起因したバレー拡散現象の開拓を行った。特に、単層遷移金属ダイカルコゲナイド/フェリ磁性絶縁体および単層遷移金属ダイカルコゲナイド/反強磁性絶縁体界面において、バレー自由度とスピン自由度が結合することにより生じる特徴的バレー・スピン緩和・拡散現象を発見した。

一例として、遷移金属ダイカルコゲナイド (MoS_2 や WSe_2) とフェリ磁性体であるマグネタイト (Fe_3O_4) の新規界面を作製し、円偏光フォトルミネセンスを調べることにより、この界面にお

いて、バレー励起子の発光スペクトルがフェリ磁性体のスピンの向きに依存して変化することを明らかにした。この結果は、単層遷移金属ダイカルコゲナイド/フェリ磁性体新規界面において、光照射下での温度勾配やポテンシャル勾配によって、バレー偏極励起子がマグネタイトのスピンの依存して緩和することを示している。また、このスピン依存したバレー緩和現象の温度・磁場依存性を詳細に測定し、本現象に関する微視的機構の理解を深めた。

さらに、遷移金属ダイカルコゲナイドと反強磁性ファンデルワールス結晶のヘテロ界面を作製し、励起子発光スペクトルが反強磁性秩序の有無で変調される現象を観測した。これは遷移金属ダイカルコゲナイド中の励起子と反強磁性体中の素励起であるマグノンがファンデルワールスヘテロ界面において強く結合していることを示唆する結果である。加えて、方位依存性や異なる反強磁性秩序を持つファンデルワールス磁性体においても詳細に振る舞いを測定し、励起子・マグノン結合への界面对称性の影響と微視的機構に関しても有益な知見を得た。

これら、遷移金属ダイカルコゲナイドとフェリ磁性体や反強磁性界面における特徴的バレー・スピン緩和・拡散現象は、従来研究されてきた遷移金属ダイカルコゲナイドと強磁性体界面におけるバレー・スピン緩和・拡散現象を大きく拡張し、一般に空間的に分離されたバレー自由度とスピン自由度の相互作用機構解明への指針を与えるといった基礎学術的意義に加えて、バレー自由度を用いた機能性デバイスの新原理構築に重要な知見になると考えられる。

以上の単層遷移金属ダイカルコゲナイド/フェリ磁性体および単層遷移金属ダイカルコゲナイド/ファンデルワールス反強磁性体に関する成果は、既に学会発表で報告し、現在論文執筆を行っている。

5. 主な発表論文等

[雑誌論文] (計 5 件)

① M. Onga, Y. Zhang, T. Ideue, and Y. Iwasa, Exciton Hall effect in monolayer MoS₂, Nature Materials, **16**, 1193-1197 (2017).

[学会発表] (計 17 件)

① T. Ideue, “Thermal Hall effect in magnetic insulators”, The 16th International Conference on Phonon Scattering in Condensed Matter (Phonons 2018) & The 4th International Conference on Phononics and Thermal Energy Science (PTES2016), China, 2018

② 井手上敏也, 岩佐義宏, “二次元遷移金属ダイカルコゲナイドにおけるスピン・バレー輸送”, 第 79 回 応用物理学会秋季学術講演会, 名古屋, 2018

③ T. Ideue, “Emergent optical responses in transition metal dichalcogenides nanocrystals”, EMN Meeting on Photonics 2018, Taiwan, 2018

[その他]

プレスリリース

固体中で光の情報を制御する新現象を発見 ー光デバイスの多機能化に期待ー

http://www.t.u-tokyo.ac.jp/soe/press/setnws_201710031308235295448892.html

新聞・メディア掲載

① 日本経済新聞 「東大と理研と阪大、固体中で光の情報を制御する現象を発見」

2017年10月3日 https://www.nikkei.com/article/DGXLRSP458824_Z20C17A9000000/

② マイナビニュース 「次世代光デバイスの実現に期待-物質中で光の情報を制御する現象を発見」2017年10月13日 <https://news.mynavi.jp/article/20171013-a199/>

③ アドコムメディア 「固体中で光の情報を制御する新現象を発見」

2017年10月25日 <https://www.adcom-media.co.jp/news/2017/10/25/27267/>

④ オプトロニクス 「東大ら、励起子で光の情報を制御する現象を発見」

2017年10月4日 <http://www.optronics-media.com/news/20171004/48517/>

論文ハイライト

L. A. Jauregui, and P. Kim, Curved paths of electron-hole pairs, Nature Materials, **16**, 1169-1170 (2017).

ホームページ等

http://iwasa.t.u-tokyo.ac.jp/CV_Ideue_jp.html

6. 研究組織

※科研費による研究は、研究者の自覚と責任において実施するものです。そのため、研究の実施や研究成果の公表等については、国の要請等に基づくものではなく、その研究成果に関する見解や責任は、研究者個人に帰属されます。