

令和 5 年 5 月 31 日現在

機関番号：12601

研究種目：研究活動スタート支援

研究期間：2021～2022

課題番号：21K20345

研究課題名（和文）ツイスト積層二層グラフェンにおけるサイクロトロン共鳴吸収の観測

研究課題名（英文）Observation of cyclotron resonance in twisted bilayer graphene

研究代表者

小野寺 桃子（Onodera, Momoko）

東京大学・生産技術研究所・特任助教

研究者番号：10907819

交付決定額（研究期間全体）：（直接経費） 2,400,000円

研究成果の概要（和文）：ツイスト積層二層グラフェンデバイスを複数個作製し、極低温・磁場下で中赤外光を照射し光起電力測定を行った。ツイスト角度は1.3-2.0度を狙って積層した。複数のデバイスのうち実際に測定できたのは3つであった。特に2.0度のデバイスにおいて非常に興味深い光起電力シグナルを観測した。観測されたシグナルはツイスト積層二層グラフェンのランダウ準位間隔を反映したものと考えられる。今後さらに解析と追加測定を行う予定である。

研究成果の学術的意義や社会的意義

本成果はツイスト二層グラフェンにおけるサイクロトロン共鳴吸収実験として世界初のものであり、学術的に非常に大きな意味を持つ。今だ未解明であるツイスト二層グラフェンのランダウ準位解明に向けて大きな一歩となる。

研究成果の概要（英文）：We fabricated twisted graphene (tBLG) devices and measured photo response of the devices at low temperatures and under high magnetic field. Mid-infrared light was irradiated to the device through optical fiber from the CO2 laser source. We observed unique photo voltage signals due to cyclotron resonance absorption in the tBLG device with a twist angle of 2.0 deg. We will further investigate the angle dependence of the signals in the future.

研究分野：二次元材料

キーワード：グラフェン 二次元層状物質 中赤外光応答

1. 研究開始当初の背景

様々な二次元層状物質を積層した複合原子層構造：ファンデルワールスヘテロ接合において物質間の格子整合が不要である。層間の積層ツイスト角度 という新たな自由度が生まれ、モアレ周期ポテンシャルが導入されることで系全体のバンド構造と物性が に依存して大きく変容する。最も顕著な例は単層グラフェン同士を $\theta = 1.1^\circ$ (魔法角) で積層したツイスト積層二層グラフェンにおける超伝導の発現 (2018 年) である。超伝導発現を皮切りに強磁性、強誘電効果など、ツイスト積層二層グラフェンに関する研究が世界中で急速に進められている。しかしながら、ツイスト積層二層グラフェンのバンド構造、特に強磁場中での量子ホール効果とランダウ準位についての理解が進んでいない現状である。量子輸送特性評価を用いたこれまでの実験はフェルミ面付近の電子状態のみをプローブすることになるため、実験的に得られる情報が限られるという課題があった。

そこで本研究では、ランダウ準位をより広範にかつ直接的にプローブ可能であるサイクロトロン共鳴吸収を用いてツイスト積層二層グラフェンのバンド構造に光学遷移の観点から迫る。ツイスト積層二層グラフェンは世界的に注目を浴びている系であり、その電子状態と物性を紐解くことは二次元材料分野にとって必要不可欠な課題である。

2. 研究の目的

ツイスト積層二層グラフェンにおけるサイクロトロン共鳴吸収シグナルの積層角度 依存性を明らかにする。ツイスト積層二層グラフェンにおける過去の光応答実験はゼロ磁場下の実験に限定されており、強磁場下におけるサイクロトロン共鳴吸収観測はこれまでにない世界初の実験となる。サイクロトロン共鳴吸収は光照射下で光のエネルギーとランダウ準位間隔が一致した場合に共鳴的に光学遷移する現象であり、グラフェンのランダウ準位間隔を直接的に反映したシグナルが得られる。フェルミ面から離れた準位の情報も得られることが特徴である。サイクロトロン共鳴吸収によって、電子正孔非対称性、バンドギャップの大きさ、多体効果によるスピンギャップの増大といったランダウ準位に関する各種の物理量を定量評価する。

グラフェンにおけるサイクロトロン共鳴吸収測定の実験には、素子構造の工夫が鍵となる。過去に申請者が作製した三層グラフェンデバイス [Nano Lett. (2019)] は PPC 法を用いて作製したものであるが、ハーフトップゲートや埋め込み電極構造といった独自のデバイス構造を工夫することで光起電力を最大化し、サイクロトロン共鳴吸収シグナルを解像度よく観察することに成功した。本研究においてもこの独自のデバイス作製技術を駆使しサイクロトロン共鳴観測に最適化したデバイスを作製する。

3. 研究の方法

本研究では、ツイスト積層二層グラフェンにおけるサイクロトロン共鳴吸収シグナルの積層角度 依存性を明らかにし、ランダウ準位が によってどのように動的に変化していくかを調べる。具体的には、スタンプ法を用いて積層角度 $\theta = 1.1^\circ$ (魔法角) 付近で の値を細かく変化させたツイスト積層二層グラフェン素子を作製し、複数の異なる をもつ素子に対して中赤外光 (波長 9.2 - 10.6 μm) を照射し温度 3 K 程度の極低温下でサイクロトロン共鳴吸収測定を行う。魔法角付近では の微小な変化によって急速にバンド構造が変化することが予想されるため、0.1 度程度の刻み幅で を変化させる。

これまでのツイスト積層二層グラフェン素子作製は、同一の単層グラフェンを 2 つに引きちぎって積層する Tear&stack 法が用いられてきたが、引きちぎる際にグラフェンにかかる力によってグラフェンの位置ずれが生じ、狙った積層角度から大幅にずれてしまうという問題点があった (最大で 0.5 度程度)。そこで本研究では、グラフェンをあらかじめ 2 つに切断しておき、積層の際に余計な力がかからないように積層する。切断には高出力パルスレーザーによるレーザー加工を利用する。従来よりも格段に良い精度で狙った角度に合わせることを可能にする。をより高い精度で制御した素子が作製できれば、 によるバンド変化を如実に捉えることが可能となる。

4. 研究成果

ツイスト積層二層グラフェン (twisted bilayer graphene, tBLG) デバイスを複数作製し、極低温 ($T = 4 \text{ K}$) にて測定を行った。まず電気伝導特性評価を行い、狙った角度に積層できているかの確認及び実際の積層角度の導出を行った。3 つのデバイスを測定し、積層角度はそれぞれ $\theta = 1.1^\circ$ 、 1.3° 、及び 2.0° と求められた。続いてこれらのデバイスに中赤外光 (波長 9.2 - 10.5 μm 程度) を照射し光吸収によって生じる光起電力を測定した。ゼロ磁場においてはすべてのデ

デバイスにおいてディラック点よりもサブディラック点において非常に強い光起電力が観測された。続いて面直磁場を印加して磁場中での光起電力を測定した。サイクロトロン共鳴に由来する光起電力ピークが観測されることを期待したが、 $\theta = 1.1$ 度と 1.3 度のデバイスにおいてはサイクロトロン共鳴由来のシグナルは観測されなかった。これ $\theta = 1.1$ 度付近においてはバンド構造が非常に大きく変化しランダウ準位間隔が狭まるため、ランダウ準位間隔のエネルギーが中赤外光の領域から外れてしまったことが原因であると考えられる。一方、 $\theta = 2.0$ 度のデバイスにおいてはサイクロトロン共鳴由来とみられる共鳴がはっきりと観測された。この $\theta = 2.0$ 度の tBLG 試料において観測されたサイクロトロン共鳴吸収シグナルの磁場位置（共鳴磁場）は、これまで我々が測定してきたグラフェン系のどれとも異なる特有の値になっている。単層グラフェンや AB 積層二層グラフェンの共鳴磁場とはずれているため、tBLG 特有のランダウ準位構造を反映しているものと考えられる。tBLG のランダウ準位は、大まかにいうと低磁場では単層グラフェン的な順位になっており強磁場では AB 積層二層グラフェン的な順位に変化するという形状になっている。ただし積層角度によって順位がどのように変化するのは具体的な数値計算によらなければ理解することは難しい。今後は数値計算を得意とする外部の研究グループと協力してこれらの共鳴磁場がどの遷移に対応しているのかを明らかにしていきたい。また、サブディラック点においても共鳴が見えていることも非常に興味深い。これまで我々はモアレポテンシャルが導入されたグラフェン系として今回の tBLG のほかに h-BN と積層角度が一致した単層グラフェン及び h-BN と積層角度が一致した二層グラフェンのサイクロトロン共鳴吸収測定実験も行っている。それらと比較して明らかに今回の試料が異なる点が、サブディラック点においても共鳴が見えているという点である。共鳴磁場はメインのディラック点における共鳴磁場とほぼ同一であり、シグナル強度も同程度であった。サブディラック点において共鳴が見える可能性はあると考えられるが、なぜ共鳴磁場がメインのディラック点とサブディラック点において同一であるのかは不明である。今回の角度においてたまたま共鳴磁場の一致が起こったのかどうかは他の角度の試料を作製してみないとわからない。ただサブディラック点におけるサイクロトロン共鳴はこれまで世界でも全く報告はなく、この実験が初の観測となる。今後数値計算と合わせてこの現象を解明していきたい。さらには、最も強く表れている共鳴シグナルの低磁場側に、非常に強い逆符号のシグナルが観測された。このシグナルはディラック点の左右にスプリットしていて、2つの大きな起電力ピークを形成している。このシグナルは照射光の波長依存性があるため、サイクロトロン共鳴吸収に由来する何かのシグナルであると予想されるが、何であるかは未知である。以上のように、 $\theta = 2.0$ 度の tBLG 試料では非常に興味深いサイクロトロン共鳴吸収シグナルの観測に成功した。今後は数値計算と合わせて解析を進めていきたい。

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計0件

〔学会発表〕 計0件

〔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
---------	---------