

バレー間散乱を引き起こす振動モード の信号を特定

単原子層バレートロンクスの実現に向けた新たな知見

本研究のポイント

- ・ゾーン端の音響振動モードによる非線形信号（倍音、3倍音、4倍音）を、超短パルスレーザーを用いたコヒーレントフォノン分光法により検出することに初めて成功
- ・第一原理計算により、非線形信号の原因がバレー間散乱に寄与するゾーン端の音響振動モードであることを示した
- ・単原子層物質のバレー自由度を利用した量子情報処理技術の開発に向けた新たな知見

【研究概要】

横浜国立大学・東京工業大学のベ・ソンミン博士、横浜国立大学の片山郁文教授、武田淳教授、Hannes Raebiger 准教授らの研究グループは、Rice 大学の河野淳一郎教授、韓国科学技術院（KAIST）の Yong-Hoon Kim 教授、物質・材料研究機構の長尾忠昭 MANA 主任研究者（兼グループリーダー）らとの共同研究により、原子層物質の一つである単層の MoSe_2 （セレン化モリブデン）において超高速応答を計測し、ゾーン端の音響振動モードに由来する非線形信号を観測することで、バレー間散乱に寄与する音響振動モードを特定しました。従来、振動数だけでは弁別できなかった振動モードを、非線形信号や第一原理計算に基づいた対称性分析で初めて特定した結果であり、バレー自由度を用いる様々な量子情報デバイスの動作原理の解明に資する重要な成果です。

本研究結果は、国際科学雑誌「Nature Communications」（7月25日付：日本時間7月25日）に掲載されました。

【研究成果】

原子層物質には、炭素が六角格子状にならぶグラフェンだけではなく、遷移金属と硫黄、セレン、テルルなどのカルコゲン原子が交互に六角格子を構成する遷移金属ダイカルコゲナイドなどが存在します。これらの物質では、反転対称性の破れによって電子のスピンと運動量が結合した「バレー自由度」を生み出すことが知られていますが、「バレー自由度」は量子情報を効果的に格納できる情報担体として次世代の量子コンピューターなどへの応用が期待されています。

今回、研究者らは、原子層物質の一つである MoSe_2 （セレン化モリブデン）において、バレー情報の損失の原因となる電子のバレー間散乱の原因を明らかにする観点から、10 fs (10

フェムト秒、 10^{-14} s) という極めて短いパルス幅を持つ超短パルスレーザーを用いた超高速分光実験を行い、バレー間散乱によって生成された特定の音響振動モードによる非線形信号が高調波信号（倍音、3倍音、4倍音）として観測できることを明らかにしました。第一原理計算によるシミュレーションにより、非線形信号と振動モードの対称性を結びつけることで、バレー間散乱に決定的に寄与する音響振動モードはゾーン端の運動量を持つということを明らかにしました。

バレー間散乱に寄与するゾーン端の振動モードは、光子と比べて数百倍～数千倍の運動量を持っているため通常の光励起においては観測されません。しかしながら今回の結果により、数ピコ秒（ 10^{-12} 秒）という極めて短い時間領域においてバレー間散乱が起こり、吸収率の変調が引き起こされることを明らかにしました。さらにゾーン端の振動による吸収率の変調は原子変位の対称性の破れから強い非線形性を持ち、特殊な高調波信号が大きく観測されることが判明しました。

バレー間散乱を引き起こす振動モードを特定するのは、バレートロニクス研究の重要課題の一つですが、本研究によりバレー間散乱に寄与する振動モードの種類と非線形信号との関係性が明らかになりました。よって、本研究は次世代量子情報のデバイス設計におけるバレー自由度の制御や観測において重要な指針を与えるものです。

【実験手法】

超短パルスレーザーを用い単層 MoSe_2 （セレン化モリブデン）を光励起し、誘起される吸収率の変化をプローブ用のパルスレーザーで検出しました。その結果、バレー間散乱に関連する振動モード（フォノン）の基本周波数の信号に加えて、その倍音・三倍音・四倍音に対応する高調波信号を観測することに成功しました。さらに第一原理計算によるシミュレーションによって、これらの高調波信号は、ゾーン端の音響振動モードが調和的に振動する場合であっても観測できることを明らかにしました。これによって、バレー間散乱に寄与する振動モードの波長とその方向を決定することができ、これまで未解決であった電子のバレー間散乱の起源について明確な知見を得ることに成功しました。

【社会的な背景】

原子層物質は、二次元性を持つために外部からの制御を行いやすく、また、良質な材料は信号処理など様々な機能で優秀な特性を示す物質として注目されています。通常のトランジスタ動作などに加えて、光機能性や、電子・スピン以外のバレー自由度を利用した新たな情報処理技術の開発なども検討されており、今後の展開が期待されている物質です。本研究はその基本的な物性の一端を解明したものであり、意義のあるものです。

【今後の展開】

原子層物質の物性の一つとして、バレー間散乱に着目し、その物理的な起源を明らかにすることができました。今回得られた結果は、今後、原子層物質を用いた新たな超高速デバイスや情報処理技術に関する研究に対して、その特性を決定づける要因の一つとして重要な情報となります。

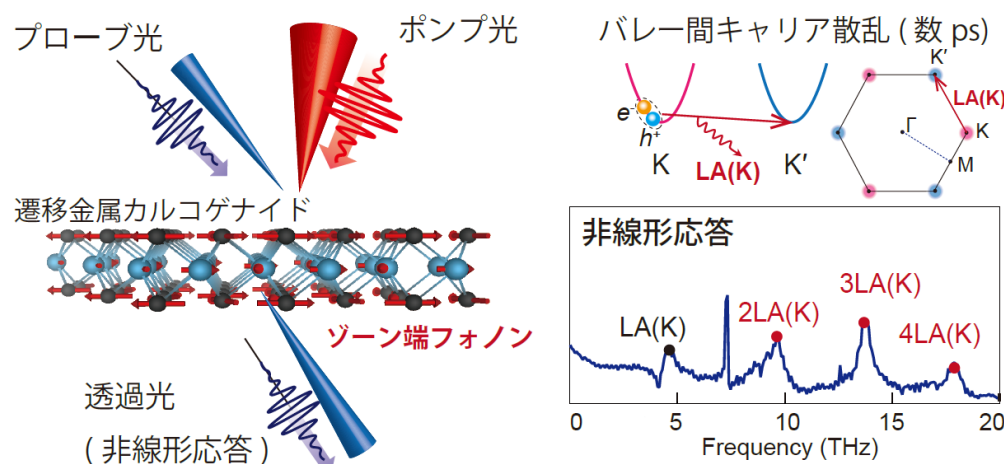
原子層物質：グラフェンや遷移金属ダイカルコゲナイドなど、原子一個から数個の厚さで層状の結晶格子を組む物質。結晶が二次元的であることから、異なる物質を積み重ねたり、電圧を印加したりすることによって大きく物性を変化させることができるため、次世代の情報処理物質として注目されている。

超高速分光法：ピコ秒（ 10^{-12} 秒）以下のきわめて短い時間幅でのみ光を発する超短パルスレーザーを用いて、物質の超高速ダイナミクスを解明する実験手法。レーザーの出力を光励起用と検出用に分け、光励起によって生じた物質の変化を検出用光の透過率変化などから検出する。パルス幅が短いほど、高速の変化を観測することができることから、本研究では10フェムト秒（ 10^{-14} 秒）を切るパルス幅のレーザーを用いた。

第一原理計算：実験的なパラメータを用いずに、物理定数と物理法則のみから物質の状態を計算する計算手法。

バレートロニクス：物質中の電子が持つ波数（波長の逆数に比例）を新たな情報担体として利用する情報処理技術のこと。光電変換技術や、量子情報技術などへの応用も期待されている。

ゾーン端：物質中の結晶周期のちょうど逆数程度の波数のこと。バレー間散乱の散乱ベクトルはちょうどゾーン端の波数を持つことから、その波数を持った振動モードを励起することができるようになる。



図：光励起状態のバレー間散乱を引き起こす K 点の振動モード

本件に関するお問い合わせ先

横浜国立大学工学研究院

片山郁文、045-339-3695、katayama-ikufumi-bm@ynu.ac.jp