

ツイスト h -BN 構造におけるモアレフォノンの検出に向けた研究

朴士彬¹, Lukas P. A. Krisna²

¹ 東京大学工学系研究科マテリアル工学専攻

² 大阪大学理学研究科物理専攻

本研究では、二次元材料におけるフォノンシステムに対するモアレ超格子の影響を調べている。特にツイスト六方晶窒化ホウ素 (h -BN) におけるフォノンに関する光学特性を調べるため、グラフェン/ツイスト h -BN 構造を作製、光学測定を行っている。

著者紹介

朴 士彬: 専門はグラフェンと二次元物質の赤外光領域における電磁的物性の研究。本研究ではデバイスの作製と光特性の測定を担当した。

Lukas P. A. Krisna: 専門は二次元物質のモアレシステムにおける電子およびフォノンのバンド構造計算に関する研究。本研究では計算による理論的な物性の予測を担当した。

研究背景

モアレ超格子は、グラフェンや遷移金属ダイカルコゲニド(TMD)などの二次元物質における電子およびフォノンの独特な特性により注目されている。モアレ超格子の電子特性についてはよく研究されている一方で[1-3]、フォノンに関する研究は比較的注目されていない傾向がある[4]。理論的にはフォノンシステムに関するモアレ効果が新しい研究の道を開く可能性が期待されている。我々は最近、図 1(a)に示されている h -BN のモアレ構造における、モアレフォノンからの光学特性の観測に注目している。また、我々の研究室は高いクオリティのツイストデバイスの製作ができ、測定も可能である。しかし、新しい分野の研究を行うためには実験結果を裏付ける理論的基盤が必要であり、モアレシステムにおけるフォノンの研究の先駆者である越野グループの Lukas と協力することにした[5]。Lukas は理論計算の研究を専攻している。グラフェン/ h -BN モアレシステムの格子緩和したフォノンバンド計算に関する Lukas の研究結果を 図 1(b)に示す[6]。私は Lukas との共同研究を通じて、ツイスト h -BN を用いたヘテロ構造におけるモアレフォノン効果を調査し、その測定で観測される現象を理解することを目指して研究を行った。

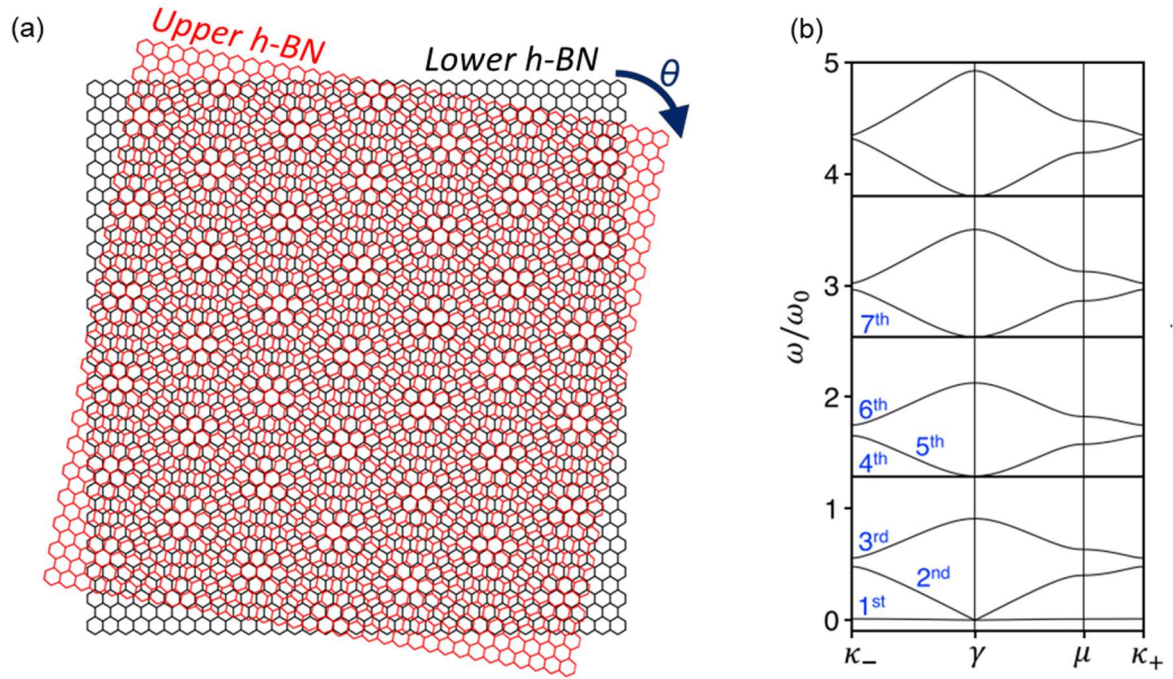


Fig 1: (a) Schematic illustration for *h*-BN/*h*-BN system with the twist angle. (b) Phonon dispersion of limiting case in graphene/*h*-BN moiré structure with atomic reconstruction.

実験方法 & 研究結果

我々はグラフェン/ツイスト h -BN ヘテロ構造における光熱電効果の測定を通じてフォノンの影響を観測するため実験を計画した。 h -BN は光学フォノンモードの影響により $7.3\ \mu\text{m}$ 付近の波長では入射光を反射することが報告されている[7-9]。そこで Lukas は、これまで研究されていないモアレフォノンの光-物質相互作用が存在し、その特性が h -BN のツイスト角度により変化する可能性を示唆した。我々は報告されている現象を実験的に証明する研究から始めた。すでに作製していた h -BN/グラフェン/ h -BN/グラファイトデバイスを用いて光熱電効果を測定し、波長 $7.3\ \mu\text{m}$ でのフォノンによる光の反射を光起電力(V_{ph})の減少からその効果を確認めた。デバイス構造の概略図を図 2(a)に示す。図 2(b)に h -BN の面内複素屈折率の実部 n と虚部 k を光子波長に対して示す。波長 $7.3\ \mu\text{m}$ で TO フォノンに起因するピークが観測されており、光学フォノンの Reststrahlen 帯の存在を示している。図 2(c)は、照射波長に対しての光起電力 $|V_{\text{ph}}|$ の振幅を示している。 $|V_{\text{ph}}|$ は $7.3\ \mu\text{m}$ で約 $0.56\ \mu\text{V}$ と大きく減少している。光学測定系の詳細は図 3(a-c)に示す。

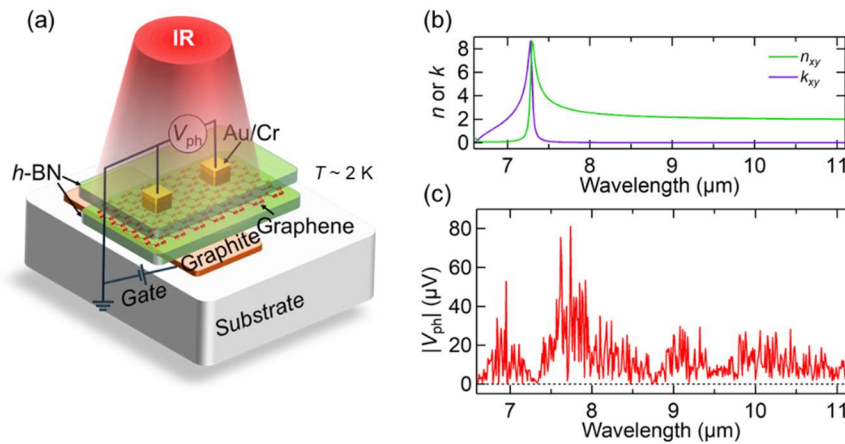
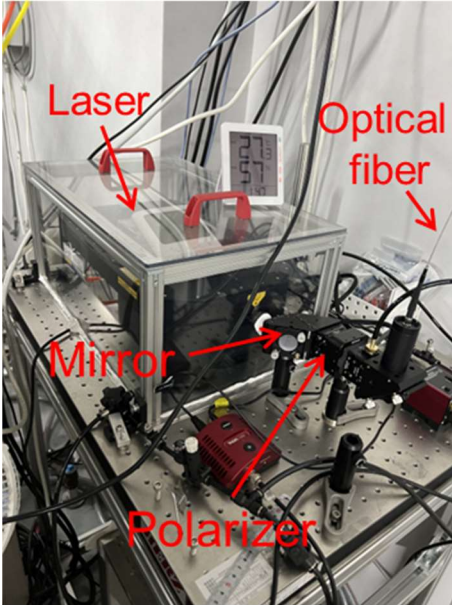
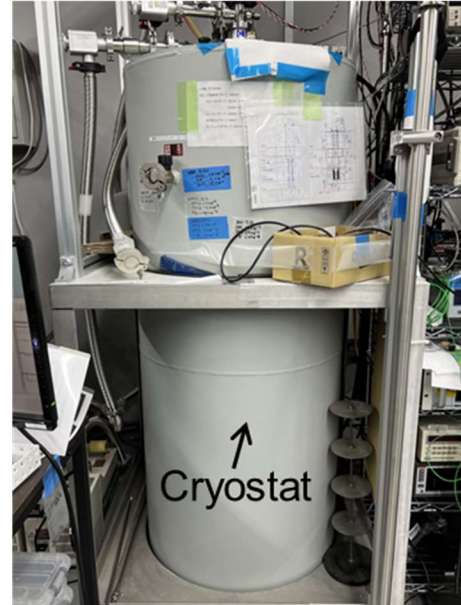


図 2: (a) Schematic of the device structure with IR radiation. (b) In-plane n and k of h -BN with respect to the wavelength of photon. (c) Experimental data of $|V_{\text{ph}}|$ versus wavelength. Dip at $7.3\ \mu\text{m}$ indicates Reststrahlen band of h -BN.

(a)



(b)



(c)

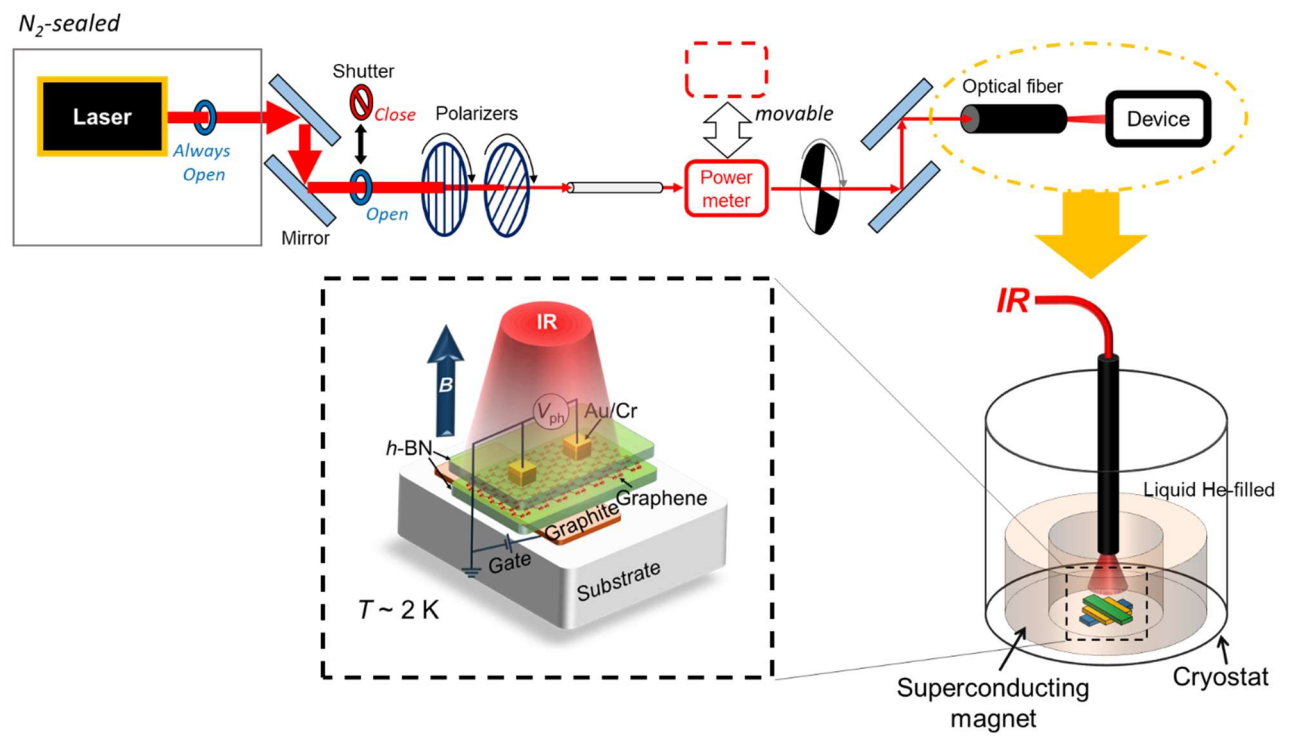


Fig. 3: Optical measurement system: (a) A laser, mirrors, polarizers, an optical fiber; (b) A cryostat. (c) Schematic illustration of the system.

次に、ツイスト h -BNの製作スキルを確認するため、ツイスト角度(θ) 0° 積層の二層 h -BNを用いたグラフェン/ h -BN構造を製作した。角度を調整するため厚い h -BNを用いて単層 h -BNをちぎってから平行移動して積層する「tear-and-stack法」で作製した。デバイスを構成する各層の顕微鏡像を図4(a-d)に示す。SiO₂/Si基板上に積層した後、電子線リソグラフィー(EB lithography)、反応性イオンエッチング(RIE)、および電子線蒸着(EB evaporation)を用いてAu/Cr電極を作製した。図4(e)は金属電極蒸着後のデバイスの光学顕微鏡写真を示している。図4(f)はデバイス構造の概略図を示す。電極パターンはEBリソグラフィーで描画した。選択的エッチング(selective etching)法を用いて、上部の h -BNはパターンに沿って選択的にエッチングしその下のグラフェンはエッチングされずに残っている。選択的にエッチングされた上部 h -BNにAuとCrをEB蒸着した。デバイスは今後メサ(mesa)エッチングを行い、完成後測定を開始する予定である。

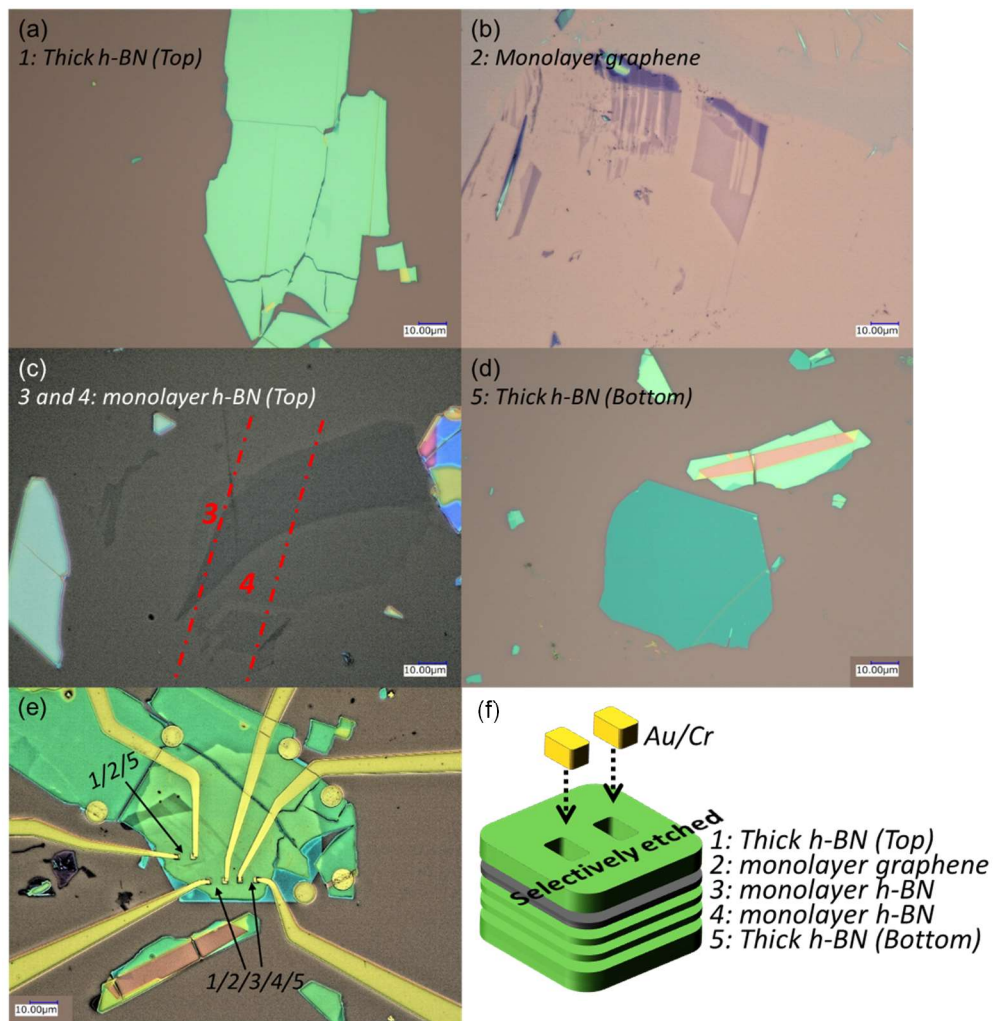


図 4: (a-d) Optical micrographs of each layer. (e) Optical micrograph of the stacked structure with electrodes. (f) Schematic of the device

結論 & 今後の課題

0°積層二層 h -BNデバイスの測定後、ツイスト h -BNにおけるモアレ光学フォノンに関わる光-物質相互作用を確認する。具体的にはグラフェン/ツイスト h -BNデバイスを作製して光特性を測定する予定である。実験結果と理論計算からツイスト角度によるモアレフォノンの特性変化について知見が得られることが期待される。本研究は、グラフェン/ツイスト h -BN構造を用いて二次元物質における新奇物性を創発する挑戦的な研究である。

謝辞

本研究を遂行するにあたり、指導教員であるマテリアル工学専攻の町田友樹先生と大阪大学の越野幹人先生には多大なご指導とご支援をいただき、心より感謝申し上げます。また、副指導教員の福谷克之先生にも多くのご助言を頂き、深く感謝いたします。また、MERIT-WINGSプログラムに感謝し、貴重な機会を与えてくださったことに深く御礼申し上げます。

参考文献

- [1] E.Y. Andrei, D.K. Efetov, P. Jarillo-Herrero, A.H. MacDonald, K.F. Mak, T. Senthil, E. Tutuc, A. Yazdani, A.F. Young, The marvels of moiré materials, *Nature Reviews Materials* **6**, 201-206 (2021).
- [2] Y. Cao, V. Fatemi, A. Demir, S. Fang, S.L. Tomarken, J.Y. Luo, J.D. Sanchez-Yamagishi, K. Watanabe, T. Taniguchi, E. Kaxiras, R.C. Ashoori, P. Jarillo-Herrero, Correlated insulator behaviour at half-filling in magic-angle graphene superlattices, *Nature* **556**, 80-84 (2018).
- [3] Y. Cao, V. Fatemi, S. Fang, K. Watanabe, T. Taniguchi, E. Kaxiras, P. Jarillo-Herrero, Unconventional superconductivity in magic-angle graphene superlattices, *Nature* **556**, 43-50 (2018).
- [4] E. Cappelluti, J.A. Silva-Guillén, H. Rostami, F. Guinea, Flat-band optical phonons in twisted bilayer graphene, *Physical Review B* **108**, 125401 (2023).
- [5] M. Koshino, N.N.T. Nam, Effective continuum model for relaxed twisted bilayer graphene and moiré electron-phonon interaction, *Physical Review B* **101**, 195425 (2020).
- [6] L.P.A. Krisna, M. Koshino, Moiré phonons in graphene/hexagonal boron nitride moiré superlattice, *Physical Review B* **107**, 115301 (2023).
- [7] J.D. Caldwell, I. Aharonovich, G. Cassabo, J.H. Edgar, B. Gil, D.N. Basov, Photonics with hexagonal boron nitride, *Nature Reviews Materials* **4**, 552-567 (2019).
- [8] E.Y. Ma, J. Hu, L. Waldecker, K. Watanabe, T. Taniguchi, F. Liu, T.F. Heinz, The Reststrahlen Effect in the Optically Thin Limit: A Framework for Resonant Response in Thin Media, *Nano Letters* **22**, 8389-8393 (2022).
- [9] Z. Jacob, Hyperbolic phonon-polaritons, *Nature Materials* **13**, 1081-1083 (2014).