

3度ツイストグラフェンの電子状態 Electronic Structure of 3°-twisted Bilayer Graphene

小森文夫^{1,*}, 飯盛拓嗣¹, 宮町俊生¹, 中辻寛², 今村均³, ビシコフスキー アントン³, 田中悟³

¹ 東京大学物性研究所

〒277-8581 柏市柏の葉5-1-5

² 東京工業大学物質理工学院

〒226-8502 横浜市緑区長津田町4259

³ 九州大学工学研究院

〒891-0358 福岡市西区元岡744

Fumio KOMORI^{1,*}, Takushi IIMORI¹, Kan NAKATSUJI², Hitoshi IMAMURA³,
Anton VISIKOVSKIY³, and Satoru TANAKA³

¹ Institute for Solid State Physics, The University of Tokyo
5-1-5 Kashiwanoha, Kashiwa, Chiba 277-8581, Japan

² Department of Materials Science and Engineering, Tokyo Institute of Technology
4259 Nagatsuta-cho, Midori-ku, Yokohama, Kanagawa 226-8502, Japan

³ Department of Applied Quantum Physics and Nuclear Engineering, Kyushu University
744 Motooka, Nishi-ku, Fukuoka 891-0358, Japan

1 はじめに

二次元単原子層を積み重ねて作られたモアレ超格子は、新しい電子構造を持つシステムとして注目を集めています。特に、グラフェンを2枚重ねたツイスト二層グラフェン(TBG)は、格子の相対的な回転角度であるツイスト角 θ に応じて電子状態が大きく変化するため、長年多くの研究が行われてきました。TBG のバンド変調は、角度分解光電子分光(ARPES)を使用して広い範囲の θ で直接測定されています。 θ が減少するにつれて、ディラック点での速度が低下し、観測されている $\theta \sim 1^\circ$ の試料での広いフラットバンドになると考えられています。これまでの研究により、このようなバンド変調は、層間結合が強い試料にのみ現れることが指摘されています。

そこで、我々は汎用の半球電子分析器とシンクロトロン光を使用して、 3.2° ツイストした TBG の ARPES 測定を行い、詳細なバンド構造を明らかにしました。[1] ここでは、グラフェン層間の界面不純物を最小限に抑えるために、真空中で直接張り合わせて作製した試料[2]を使用しました。その結果は、計算した電子構造によってよく再現されています。

2 実験

ツイストグラフェンの作製には、4H-SiC(0001)基板上に作製した剥離が容易な単層グラフェンを使用しました。そして、真空中で二つのグラフェン表面を清浄化した後で、圧着分離してTBGを作製しました。ツイスト角度は低エネルギー電子回折を用いて、ARPES測定の前に評価しました。

ARPES 測定では、52 eV (BL13B) および42 eV (BL2A)の直線偏光シンクロトロン光を用いました。

試料を各ビームラインの真空装置に導入後加熱して表面を清浄化し、その後室温 (BL13B) および30 K (BL2A)で測定しました。

3 結果および考察

図 1(a)に上層 K_u と下層 K_l の周りのフェルミエネルギー E_F での定エネルギーバンド像と、 K_u および K_l を通るバンド分散像を示します (図 1(c,d)参照)。バンド分散像では、 E_F より高いエネルギーのバンド構造を明確にするために、観測された ARPES 強度をフェルミディラック分布曲線で割っています。この像では、上層グラフェンのない領域からの ARPES 強度が、TBG の下層からの ARPES 強度と重なっています。図 1(b)には、 3.14° TBG の計算されたバンド構造を示しました。この計算では、上下層グラフェンのディラックエネルギーを、図 1(a)に示されている観測差を考慮して、 E_F およびそこから 0.05 eV 高く設定し、実験結果を再現するために層間距離を 3.44 \AA としました。

計算結果に現れた 10 本のバンド a-j のうち、6 本が実験で観察されています。特に、上層グラフェンに由来するバンド a、b、g、および h は、単層の線形ディラックバンドとは大きな違いを示しています。バンド a と b (i と j) は、隣接するレプリカのディラックバンドと交差するため、上下層のグラフェンバンドから分かれています。図 1(a)のバンド c および j では、測定領域に共存する単層グラフェンからの ARPES 強度に隠されていて、バンド変調がみえていません。詳しい計算によると、このバンド変調は層間距離に大きく依存しています。

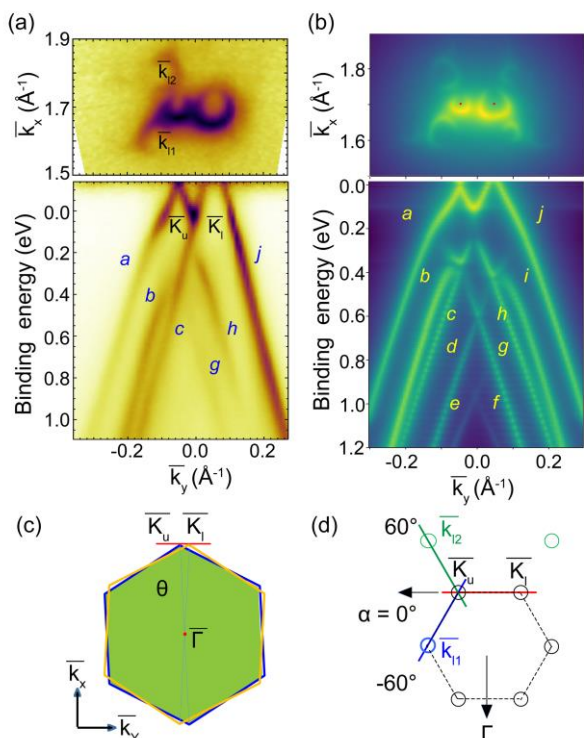


図 1 : (a) E_F の ARPES 定エネルギーバンド像 (上) と 2 つの K 点、 K_u (上層) と K_l (下層) を通る面での ARPES バンド分散像 (下)。ARPES 強度は上が対数表示、下は線形表示です。ここで、 k_{l1} および k_{l2} は K_l のレプリカ K 点です。(b) 上図は E_F より 0.08eV 低い位置での $\theta=3.14^\circ$ の TBG の計算された定エネルギーバンド像、下図は同じ TBG の計算された K_u と K_l を通る面でのバンド分散像です。二つのグラフェン層の間のエネルギー差は 0.05eV としています。強度はスペクトル重みを示し、対数表示しています。(c,d) TBG のグラフェンブリュアンゾーン BZ (c) およびモアレ BZ (d)。 k_{l1} と k_{l2} は、上層グラフェンのディラックバンドに隣接するレプリカ下層グラフェンの K 点です。 K_u の周りの角度 α の定義は(d)に与えられています。

K_u 周りの角度 $\alpha = -60^\circ, -30^\circ, 30^\circ$, および 60° の 4 方向のバンド分散を、計算されたバンド分散とともに図 2 に示しました。観測された TBG バンド分散の定性的特徴は、 $\alpha = \pm 60^\circ$ のディラックエネルギー付近のエネルギーギャップや $\alpha = \pm 30^\circ$ の E_F 付近の部分的フラットバンドなど、計算によってよく再現されています。 $\alpha = 0^\circ$ の測定結果では、試料に共存する単層グラフェンのために、エネルギーギャップがよくみえていませんが、レプリカバンドのとの間 $\alpha = \pm 60^\circ$ でははっきり観測されます。そして、部分的なフラットバンドは、2 つの交差するディラック点の周りに現れます。フラットバンドは、ツイスト角を小さくするとさらに発達し、最終的にはマジック角 $\theta \sim 1^\circ$ で広いフラットバンドになります。

4 まとめ

ARPES による 2 次元バンド観測を用いて、真空中での貼り付けによって作製した 3.2° 回転 TBG の電子状態を研究しました。その結果、ディラックエネルギーの付近の異方性バンド分散などの 2 次元波数空間でのバンド構造の変調を実証しました。実験結果は、バンド計算の結果と定性的によく一致しています。そして、両者のわずかな差は、グラフェン格子のツイスト 2 層化による変形が原因と考えられます。

謝辞

本共同研究を行った間瀬一彦氏、北村未歩氏、堀場弘司氏、組頭広志氏に感謝します。

参考文献

- [1] T. Iimori *et al.*, Phys. Rev. Material **5**, L051001 (2021).
- [2] H. Imamura *et al.*, Appl. Phys. Express **13**, 075004 (2020).

*komori@issp.u-tokyo.ac.jp

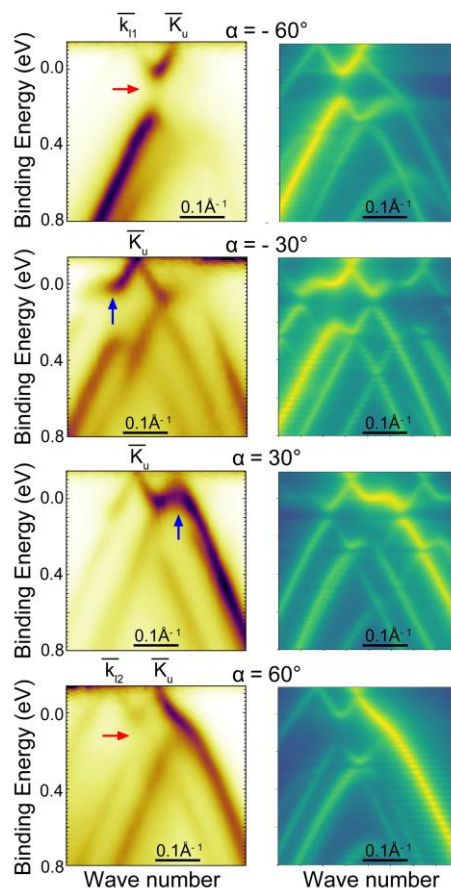


図 2 : K_u を中心に回転した 4 つの平面で観測 (右) および計算 (左) されたバンド分散像。回転角 α の定義は、図 1(d) に与えられています。赤い矢印は K_u と k_{l1} の間および K_u と k_{l2} の間のエネルギーギャップの位置を示し、青い矢印は部分的なフラットバンドを示しています。