

科学研究費助成事業 研究成果報告書

平成 26 年 6 月 10 日現在

機関番号：82108

研究種目：挑戦的萌芽研究

研究期間：2012～2013

課題番号：24656023

研究課題名(和文)単一ディラック粒子制御素子の開発

研究課題名(英文)Development of single Dirac-particle devices

研究代表者

森山 悟士(Moriyama, Satoshi)

独立行政法人物質・材料研究機構・国際ナノアーキテクトニクス研究拠点・独立研究者

研究者番号：00415324

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 3,100,000円、(間接経費) 930,000円

研究成果の概要(和文)：有効質量0の特異な2次元電子系として注目されている炭素原子層一層で構成されるグラフェンは、現在の半導体微細加工技術を用いて直接シートの形状を加工することによって、量子ドット等のナノ構造を作製し電子を閉じ込めることができる。しかし、微細加工におけるバンド構造の変調によってディラック電子系としての特徴を失ってしまう。本研究は、新しいグラフェン量子ナノ構造を提案し、ディラック電子系を保持したまま電子を微小構造に閉じ込め、電子輸送を制御する「単一ディラック粒子制御素子」を作製し、磁場中でディラック電子の単一電子輸送を示す結果を得た。

研究成果の概要(英文)：Graphene consists of a single layer of carbon atoms and its quantum-dot (QD) devices are of significant research interest. In most previous attempts to fabricate such devices, the structures were etched from a graphene sheet by lithography, and the resulting devices consisted of QDs and small constrictions connected to the lead parts. Therefore, transport properties of graphene QD or nanoribbon devices are often dominated by edge roughness and disorder.

To address this situation, we propose a new device structure, in which graphene nanostructures are isolated and metallic contacts are directly deposited onto them without constrictions. We demonstrate that the Coulomb-blockade effect evolves under a uniform magnetic field perpendicular to the graphene sheet, which indicates the quantum confinement-deconfinement transition switched by a magnetic field. This demonstration constitutes important advances to control single Dirac fermions in graphene electronics.

研究分野：工学

科研費の分科・細目：応用物理学・工学基礎・応用物性・結晶工学

キーワード：グラフェン 量子ドット ディラック電子系

1. 研究開始当初の背景

特異な 2 次元電子系 (ディラック電子系) として注目されている炭素原子層一層の 2 次元グラファイト (グラフェン) は、現在の半導体微細加工技術を用いて直接シートの形状を加工することによって、量子ドット等のナノ構造を作製し電子を閉じ込めることができる。実際、単電子トランジスタ等、グラフェンを用いたナノ量子デバイスの動作実証を行う研究は、現在活発に進められており、既に基本的な単一電子輸送現象の測定は、極低温環境で実現されている。従来のトップダウンプロセスによる微細加工を行うことによって、量子ドットとそこに繋がるソース・ドレイン電極、さらにゲート電極も 1 枚のグラフェンシートを彫刻刀で削るように加工することができる。これは、2 次元的に広がったシート構造の特徴を大いに活かすことができるといふ反面、作製できる微小構造のサイズは最先端の加工技術をもってしてもナノメートルオーダーが限界となり、これがナノデバイスの動作を律速していることが近年わかってきた。加工されたグラフェンの境界の端は原子レベルでは平坦ではなく、数十個のカーボン原子のスケールで端の状態はゆらいでいることになる。この構造的な揺らぎがグラフェンの線形なバンド構造を変調、さらにはトンネルバリアのポテンシャルの揺らぎと散乱を生じさせるため、ディラック電子系としての特徴を失ってしまうことが実験的に明らかになってきている。特に量子ドット素子のような構造では、量子ドットとソース・ドレイン電極を繋ぎ、トンネルバリアを形成する最も微小な部分においてその影響が顕著となる。

2. 研究の目的

本研究では、新しいグラフェン量子ナノ構造と磁場の制御を駆使することによって、有効質量 0 のディラック粒子としての性質を保持した系の電子を微小構造に閉じ込め、電子輸送を制御する「単一ディラック粒子制御素子」を開発することを目指す。

3. 研究の方法

既に我々の研究で確立している、 SiO_2/Si 基板上に数十 μm サイズの単層グラフェン試料を作製し、ナノ微細加工を用いたグラフェンナノ構造素子の作製プロセスを活用する。具体的には、電子線ビームリソグラフィ技術によるパターンニングとプラズマエッチング技術による加工によって、直径数百ナノメートルサイズの孤立したグラフェンナノ構造の作製、その構造に対して再度電子線ビームリソグラフィ、そして真空蒸着技術を用いて電極を取り付けた。本研究では、このようにして作製したナノ構造素子および、この素子の基板の SiO_2 をエッチングすることにより、グラフェンナノ構造が基板から独立した架橋構造素子も作製し、これら 2 種類の素子

の量子輸送現象を調べた。

4. 研究成果

作製した素子は、 He3 冷凍機を用いて低ノイズ・極低温環境下で素子の量子輸送現象を測定した。図 1(a) に温度 0.23 K でのコンダクタンスのゲートおよび磁場依存性の結果を示す。インセットは試料の電子顕微鏡像で、ここでは基板に密着した素子を測定している。低磁場ではグラフェン特有のゲート依存性を示しているが、ホール伝導側において B_c で示される点線の磁場を境に電気伝導が連続的なものから離散的なスペクトルに変化し、 $B > B_c$ において単一電子輸送が実現された。これは素子構造によって形成される閉じ込めポテンシャルおよび素子に対して垂直に印可した磁場によって、ディラック電子の軌道が図 1(c) のような開いた軌道から、図 1(b) のように閉じた軌道と開いた軌道に変化することによって束縛状態が形成されると説明でき、実際の素子のスケールで理論的に計算することができた。この結果は、磁場によってディラック粒子が閉じ込められていると理論的に示唆され、単一ディラック粒子の制御に成功したと考えられる。

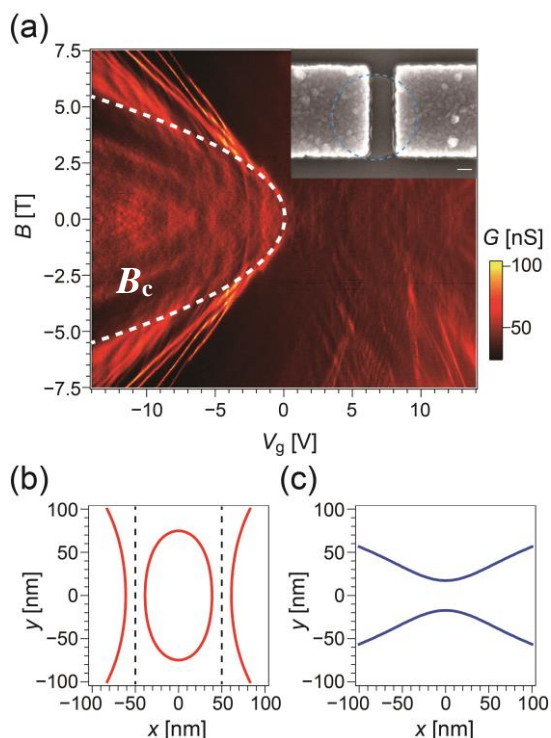


図 1: (a) グラフェンナノ構造素子の電子輸送のゲート電圧および磁場依存性。右上: 典型的な素子の電子顕微鏡写真。電極間隔は 200 nm で設計されている。(b, c) 本素子構造における磁場 $B > B_c$ (b)および $B < B_c$ (c)におけるディラック粒子の軌道の理論計算。

高磁場 ($B = 7.5$ T) 下における単一電子輸送の測定結果を図 2 に示す。図 2(a) はソー

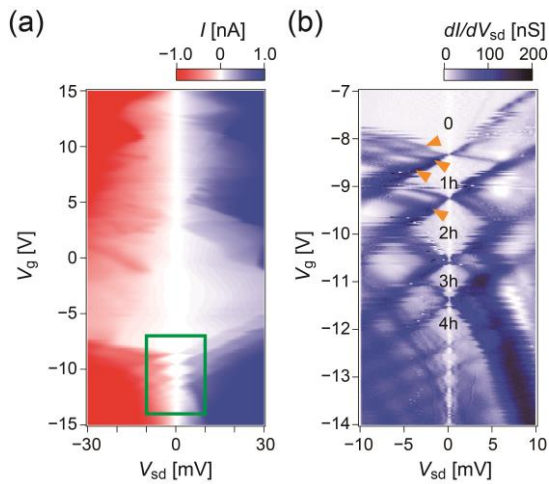


図 2: (a) $B = 7.5 \text{ T}$ におけるソース・ドレイン電流値のマッピング。(b) (a)の緑枠で囲まれた部分の微分コンダクタンスマッピング。

ス・ドレイン電流値をゲート電圧とソース・ドレイン電圧でマッピングしたもので、図 2(b)は図 2(a)の緑の枠で囲まれた部分を詳細に測定した微分コンダクタンスのマッピングである。ゲート電圧が負であるホール伝導領域においてクーロンダイヤモンドが観測され、さらにダイヤモンドの縁に沿って、量子化準位を示すスペクトルも観測された。したがって、本素子においてディラック粒子の量子的な閉じ込めが実現できていることを示唆している。

また、電子伝導領域では明瞭な離散効果が観測されず、多重量子ドットの振舞が観測された。これは素子構造によって固定された閉じ込めポテンシャルの形状とその揺らぎによるものと考えられる。

一方で、いくつかの試料では広いゲート電圧領域に渡って、荷電不純物等に起因する電子ホールパドルを介した多重量子ドットの振舞が観測された。これはグラフェンと基板との相互作用、および基板表面の平坦さに起因する幾何学的な構造の揺らぎが原因であると考えられる。実際、原子レベルでより平坦な六方晶窒化ホウ素を基板に用いることによりグラフェンの移動度は上昇し、またグラフェンを基板から浮かした架橋構造では基板からの散乱が完全に抑制され、さらに電流アニールによる加熱でグラフェンの両面に付着した不純物を除去することによって、理論的な限界値近くまで移動度が上昇することが報告されている。そこで、より高品質のグラフェンによる電子輸送を実現するため、架橋されたナノ構造素子を作製し、極低温での電子輸送測定を試みた。従来型のグラフェン量子ドット構造素子では、微小部分が多いため作製は非常に困難であるのに対して、我々の新しい素子構造では架橋構造部分が短く、また電極によってグラフェンがしっかりと押さえつけ

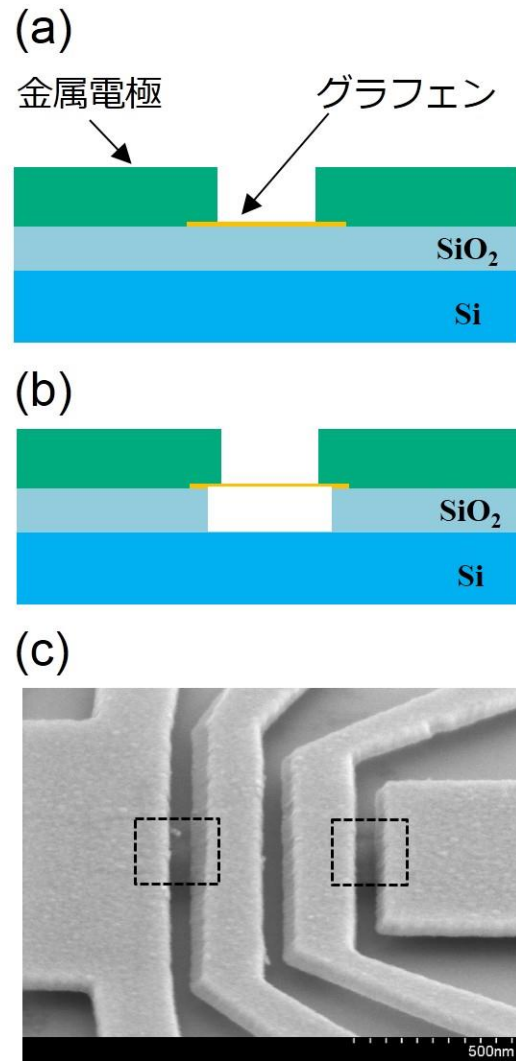


図 3: (a) グラフェンナノ構造素子の基板断面図。(b) 架橋構造型デバイスの模式図。(c) 実際に作製した架橋構造デバイスの電子顕微鏡写真。点線で囲まれた部分が基板から浮いて架橋しているグラフェン。

られているので作製が可能である。素子は図 2(a), (b)に示すように、グラフェンナノ構造を作製後、電極をマスクとして SiO_2/Si 基板の SiO_2 をエッチングして作製した。実際に作製した素子の電子顕微鏡写真を図(c)に示す。黒い点線で囲まれた部分が基板から浮いたグラフェンでサイズはおよそ左側 $0.3 \mu\text{m} \times 0.2 \mu\text{m}$ 、右側 $0.2 \mu\text{m} \times 0.2 \mu\text{m}$ である。

低温 (5 K 以下) 環境下での電流アニールを数回行うことによって、素子のゲート電圧依存性は理想的なグラフェンの特性に近づく、さらに量子揺らぎを伴う伝導現象が観測された。しかし、電流アニールの最適化を図ることは、各回の電流アニールの特性変化にばらつきがあるため難しく、今後高品質グラフェンを維持した素子実現のために、デバイス構造とプロセスを検討したいと考えている。

5. 主な発表論文等

(研究代表者、研究分担者及び連携研究者には下線)

[雑誌論文] (計 3 件)

1. S. Moriyama, Y. Morita, E. Watanabe, and D. Tsuya: “Field-induced confined states in graphene”, *Applied Physics Letters*, **104**, 053108 (4 pages) (2014), DOI: 10.1063/1.4864074. (査読有り)

2. M. Yoshihira, S. Moriyama, H. Guerin, Y. Ochi, H. Kura, T. Ogawa, T. Sato and H. Maki: “Single electron transistors with ultra-thin Au nanowires as a single Coulomb island”, *Applied Physics Letters*, **102**, 203117 (4 pages) (2013), DOI: 10.1063/1.4807806. (査読有り)

3. S. Moriyama, Y. Morita, E. Watanabe, and D. Tsuya: “Coulomb blockade behavior in nanostructured graphene with direct contacts”, *Materials Express*, **3**, 92-96 (2013), DOI: 10.1166/mex.2013.1105. (査読有り)

[学会発表] (計 11 件)

1. S. Moriyama, Y. Morita, E. Watanabe, D. Tsuya (**Keynote Lecture**): “Electron transport through field-induced quantum dots in graphene”, 14th Edition of the “Trends in NanoTechnology” International Conference (TNT2013), Seville, Spain, 9-13, September, 2013.

2. S. Moriyama, T. Hashimoto, Y. Morita, K. Masuda, N. Miki, and H. Maki: “Superconducting fluctuations and phase slips in NbN nanowires on suspended carbon nanotubes”, QFS2013, International Symposium on Quantum Fluids and Solids, Matsue, Shimane, Japan, August 1-6, 2013.

3. T. Mori, R. Kanemura, E. Watanabe, D. Tsuya, S. Moriyama, T. Maeda, N. Uchida, N. Miyata, T. Yasuda, M. Tanaka and A. Ando: “Fabrication processes of two-dimensional MoS₂ channel transistors”, NIMS Conference 2013, Tsukuba, Japan, July 1-3, 2013.

4. 兼村瑠威, 森 貴洋, 渡辺英一郎, 津谷大樹, 森山悟士, 前田辰郎, 内田紀行, 宮田典幸, 安田哲二, 田中正俊, 安藤淳: “2次元層状 MoS₂ トランジスタ形成プロセスの検討”, 2013 年第 60 回応用物理学会春季学術講演会, 神奈川, 3/27-3/30, 2013.

5. S. Moriyama, Y. Morita, E. Watanabe, D. Tsuya: “Field-induced quantum dots in graphene mesoscopic structures”, MANA International Symposium 2013, Tsukuba, Japan, February 27 - March 1, 2013.

6. S. Moriyama, Y. Morita, E. Watanabe, D. Tsuya (**Late News paper**): “Transport spectroscopy of Field-induced quantum confinement in graphene”, SSDM 2012, 2012 International conference on Solid State Devices and Materials, Kyoto, Japan, 25-27, September, 2012.

7. 森山悟士, 守田佳史, 渡辺英一郎, 津谷大樹: “グラフェンメゾスコピック構造における磁場を用いた単一ディラック電子制御”, 2012 年秋季第 73 回応用物理学会学術講演会, 愛媛, 9/11-9/14, 2012.

8. 森山悟士: “グラフェンメゾスコピック構造に形成される磁場誘起量子ドット素子”, 第 2 回半導体量子効果と量子情報の夏季研修会, 栃木, 9/5-9/7, 2012.

9. S. Moriyama, Y. Morita, K. Ishibashi, E. Watanabe, D. Tsuya (**invited**): “Graphene nanostructures for building blocks of quantum-dot based nanodevices”, CIMTEC 2012, 4th International Conference on Smart Materials, Structures and Systems, Montecatini Terme, Italy, 10-14, June, 2012.

10. 森山悟士 (**招待講演**): “グラフェンを用いた電子デバイスの開発と応用”, Electronic Journal 第 1088 回 Technical Seminar, 「グラフェンの量産技術とその応用」, 東京, 4/24, 2012.

11. 森山悟士 (**招待講演**): “グラフェンの基礎物性と応用可能性～最新動向”, 情報機構 化学・電気系セミナー, 東京, 4/17, 2012.

[図書] (計 1 件)

1. 森山悟士 (分担執筆): “グラフェンの微細加工プロセスと単電子素子の作製”, 『2013 ナノカーボン技術大全』, 第 5 編 5 章 (pp.97-101), 株式会社電子ジャーナル (2012).

6. 研究組織

(1) 研究代表者

森山 悟士 (MORIYAMA, SATOSHI)

独立行政法人物質・材料研究機構・国際ナノアーキテクトニクス研究拠点・MANA 独立研究者

研究者番号: 00415324

(2) 研究分担者 なし

(3) 連携研究者 なし