

科学研究費助成事業（科学研究費補助金）研究成果報告書

平成 25 年 5 月 27 日現在

機関番号：14602

研究種目：基盤研究（C）

研究期間：2010～2012

課題番号：22540329

研究課題名（和文） 新奇炭素系擬一次元物質グラフェンナノリボンにおける電子相関と輸送現象

研究課題名（英文） Electronic correlation and transport phenomena in carbon based quasi-one-dimensional material graphene nanoribbon

研究代表者

吉岡 英生（YOSHIOKA HIDEO）

奈良女子大学・自然科学系・教授

研究者番号：40252225

研究成果の概要（和文）：本研究プロジェクトではジグザグ端を有するグラフェンナノリボンにおける磁気秩序状態における種々の物理量の相互作用依存性を詳細に調べるとともに、グラフェンと金属（正常状態ならびに超伝導状態）からなる接合系の輸送特性を理論的に研究した。さらに、これらの理論模型に対応する接合系やグラフェンに歪を導入した接合系を作成し、電気伝導特性に関して知見を得た。

研究成果の概要（英文）：In the project, we theoretically investigated several quantities in the magnetic ordered states of graphene nanoribbon with zigzag shaped edges and the transport properties of the junctions composed of graphene and metal which is in the normal and superconducting state, respectively. In addition, we fabricated the junctions corresponding to above theoretical studies and that with distorted graphene and investigated the transport properties.

交付決定額

（金額単位：円）

	直接経費	間接経費	合計
2010年度	1,300,000	390,000	1,690,000
2011年度	1,000,000	300,000	1,300,000
2012年度	1,000,000	300,000	1,300,000
年度			
年度			
総計	3,300,000	990,000	4,290,000

研究分野：数物系科学

科研費の分科・細目：物理学・物性 I

キーワード：グラフェン、グラフェンナノリボン、メゾスコピック系、ナノ材料、超伝導近接効果、ジョセフソン電流、輸送特性、一次元電子系

1. 研究開始当初の背景

ナノテクノロジーは新たな産業革命を引き起こす科学技術として期待されている。その根幹をなすのが「ナノ物質」であり、それらに対する基礎研究である「ナノサイエンス」である。グラフェンは炭素原子が蜂の巣格子状に2次元的なネットワーク構成している物質で、その中の電子の運動は相対性理論にしたがう質量のない粒子と同じであること

から世界中で注目を浴びている。さらに、グラフェンをベースにしたナノ1次元物質であるカーボンナノチューブやグラフェンナノリボンは2次元グラフェンシートの特異性と系のトポロジー・端の形状に起因した特異な性質を併せ持つ注目すべき物質群であると考えられる。

2. 研究の目的

グラフェンナノリボン（以下、GNR と省略）は、2次元グラフェンシートの性質とナノ系固有の系のトポロジーの効果（特に端の形状）に起因する性質を併せ持つ注目すべき擬一次元物質である。本研究では、それらによって生じる特異なバンド構造と低次元電子系に共通な特徴である強い電子相関が協調的に生み出す新奇な電子状態の探索を目的として、

①単層系または多層系 GNR における電子状態の理論的説明

②電子相関が顕著に現れる舞台として、接合系の輸送特性の説明

を行う。この研究は、低次元電子系の「特異な電子状態の探索・新概念の創出」という基礎物理学的に重要な意味を持つと同時に、「ナノグラフェン系の新電子デバイスへの可能性の探索」という応用科学的な重要性も有する。

3. 研究の方法

①電子間相互作用として炭素原子内のクーロン斥力のみを取り入れたハバード模型に基づいて、ジグザグ端を有する GNR における磁性について議論する。ジグザグ端近傍に現れるフェリ磁性の磁気モーメントの相互作用依存性や温度依存性、臨界温度の相互作用依存性に関して議論を行う。

②グラフェンと金属からなる接合系の輸送特性を理論的に考察する。金属が正常状態の場合と超伝導状態の場合を調べる。前者に対してはグリーン関数法を用いてコンダクタンスを計算する。また、後者に対しては超伝導体とグラフェン間の電荷移動を摂動として取扱い、その最低次でこの接合を流れるジョセフソン電流を計算する。実験的にはこれらの理論に対応する接合系や歪を導入したグラフェンからなる接合系を作成し、その電気伝導特性の測定を行う。

4. 研究成果

①ジグザグ端を有する GNR (ジグザグ GNR) が示す磁性に関しては、炭素原子内斥力 U のみを取り入れたハバード模型を用いて議論されており、ジグザグ端近傍に大きな磁気モーメントが現れそれらがフェリ磁性的に整列するが、その方向が二つの端で反対方向となる反強磁性磁気秩序が出現することが示されている。この磁気モーメントや転移温度の U 依存性を詳細に調べ、これらの量は通常の金属に見られる指数関数依存性ではなく冪依存性を示し、その冪の値はリボンの幅のみによって決定されることがわかった。この特異な依存性はジグザグ GNR の特徴であるエッジ状態に起因する。

②ジグザグ GNR が二つの正常金属で挟まれ

た接合系では、ジグザグ GNR の足の数 N の偶奇によってその輸送特性が定性的に異なるなど、多くの異常な輸送特性を示すことが知られている。そのような性質に対するジグザグ端の効果調べるために、ジグザグ端における電荷移動が他のボンドとは異なる値をとる場合について考察を行った。ジグザグ端のみからなる $N=2$ の場合を除き、得られた結果は電荷移動が一樣な場合と同じであった。この結果はジグザグ端が異常な電気伝導特性に寄与していないことを示唆していると考えられる。

③超伝導—グラフェン—超伝導接合系を流れるジョセフソン電流に関する理論的考察を行った。二つの超伝導体の間隔 d 、温度 T 、そして化学ポテンシャル μ （これを変化させることはキャリアの注入に対応する）の依存性を詳細に調べた。単層グラフェンの場合には、 d の関数として指数関数依存性を示し、コヒーレンス長は T^{-2} となることを見出した。この結果はディラック電子の特異な分散関係に起因していると考えられる。一方、二層グラフェンの場合には副格子 A から A へ流れる超伝導電流並びに A から B へ流れる電流は d の関数として振動する。なおこれらの和では振動は消滅する。化学ポテンシャル依存性は以下のとおりとなった。 $\mu=0$ の場合には、ジョセフソン電流は温度を下げると減少するが、 μ の値を 0 からずらした場合には温度を下げると徐々に増加する通常の振る舞いにもどっていくことわかった。その間の領域ではリエントラント的な振る舞いをする。

④グラフェンジョセフソン接合においてグラフェン特有の超伝導近接効果を実現するためには、グラフェン中で電子がバリスティックに伝導すること、グラフェンのフェルミ準位がディラック点近傍にあることが必要である。前者を実現するためには接合を短くすることが有効であるが、短接合では後者の条件が満たされないことがこれまでの我々の研究で明らかとなっている。これはグラフェンと電極金属の仕事関数差によるグラフェンのフェルミレベルピンギングが原因であると考え、同一グラフェン上に接合長の異なる接合を作製し、接合が短くなるほど電界効果が弱まることを確認した。フェルミレベルピンギングを軽減・除去するためには、界面に障壁を作るのが有効であるが、これは同時に超伝導近接効果を弱める。そこで、グラフェンと仕事関数が近い多層グラフェンを界面に挿入することを考えた。グラフェン成長に用いる金属触媒 CVD 法を応用し、SiO₂/Si 基板に置かれたグラフェン上に多層グラフェンを成長する方法を開発した。成長条件を工夫することで、均一な多層グラフェンを得ることに成功した。また、多層グラフェンを挿入した接合、しない接合を比較し、電界効

果の増大を確認した。これは短接合でもフェルミ準位をディラック点近傍に調整できることを示している。

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 27 件)

1. H. Yoshioka, Y. Otsuka, H. Seo
Enhancement of charge ordering by Zeeman effect in one-dimensional molecular conductors
Journal of the Korean Physical Society、査読有、2013、出版予定
2. H. Yoshioka, Y. Mochizuki
Effects of Hopping Modulation at the Edges on Transport Properties of Zigzag Graphene Nanoribbon Attached to Two Normal Metals、
J. Phys.: Conf. Ser.、査読有、400、2012、042077、
doi:10.1088/1742-6596/400/4/042077
3. J. Onoe, T. Ito, H. Shima, H. Yoshioka, S. Kimura
Observation of Riemannian geometric effects on electronic states
Europhys. Lett.、査読有、98、2012、27001、
doi:10.1209/0295-5075/98/27001
4. H. Yoshioka, Y. Otsuka, H. Seo
Theoretical Studies on Phase Transitions in Quasi-One-Dimensional Molecular Conductors Crystals、査読有、2、2012、996–1006
doi:10.3390/cryst2030996
5. M. Hayashi, H. Ebisawa, H. T. Huy, T. Ishida
Complete tailor-made inverse filter for image processing of scanning SQUID microscope
Appl. Phys. Lett.、査読有、100、2012、182601
doi: 10.1063/1.4709492
6. J. Onoe, T. Ito, S. Kimura, H. Shima, Y. Toda, H. Yoshioka
One-Dimensional Uneven Peanut-Shaped C60 Polymer: A Quantum Electronic System in Riemannian Space
Fullerenes, Nanotubes and Carbon Nanostructures、査読有、20、2012、1-16
doi: 10.1080/1536383X.2011.586618
7. H. Yoshioka
Collapse of Charge Ordering due to Disorder in Quasi One-Dimensional Electron Systems
J. Phys.: Conf. Ser.、査読有、400、2012、032125
doi:10.1088/1742-6596/400/3/032125
8. M. Hayashi, H. Yoshioka, A. Kanda
Supercurrent through Graphene: Effects of Vanishing Density of States
J. Phys.: Conf. Ser.、査読有、400、2012、022024
doi:10.1088/1742-6596/400/2/022024
9. M. Hayashi, Y. Takane, H. Ebisawa
Numerical Study of Collective Transport in Charge Density Wave Conductors
J. Phys.: Conf. Ser.、査読有、400、2012、012015
doi:10.1088/1742-6596/400/1/012015
10. 吉岡英生
固体中のディラック電子系—グラフェンを中心に—
奈良女子大学大学院人間文化研究科複合現象科学専 2011 年度数学・物理学・情報科学の研究交流シンポジウム報告書、査読無、2012、42–52
11. 神田晶申
グラフェンの電気伝導の実験とデバイス応用の可能性
奈良女子大学大学院人間文化研究科複合現象科学専 2011 年度数学・物理学・情報科学の研究交流シンポジウム報告書、査読無、2012、53–63
12. H. Yoshioka, H. Shima
Density of states anomalies in multichannel quantum wires
Phys. Rev. B、査読有、84、2011、075443
doi: 10.1103/PhysRevB.84.075443
13. H. Yoshioka, H. Seo, Y. Otsuka
Incommensurate Antiferromagnetic Insulating State in (MDT-TS)(AuI₂)_x
J. Phys. Soc. Jpn.、査読有、80、2011、123702
doi: 10.1143/JPSJ.80.123702
14. H. Shima, H. Yoshioka
Electronic spectral shift of oxygen-filled (6,6) carbon nanotubes
Chem. Phys. Lett.、査読有、513、2011、224-228
doi: 10.1016/j.cplett.2011.07.084
15. H. Tomori, A. Kanda, H. Goto, Y. Ootuka, K. Tsukagoshi, S. Moriyama, E. Watanabe, D. Tsuya
Introducing Nonuniform Strain to Graphene Using Dielectric Nanopillars
Appl. Phys. Express、査読有、4、2011、075102
doi: 10.1143/APEX.4.075102

16. H. Miyazaki, M. V. Lee, S.-L. Lee, H. Hiura, A. Kanda, K. Tsukagoshi
Observation of Tunneling Current in Semiconducting Graphene p - n Junctions
J. Phys. Soc. Jpn., 査読有、81、2011、014708
doi: 10.1143/JPSJ.81.014708
17. 神田晶申
グラフェンの磁性とスピントロニクス応用
第 49 回応用物理学学会スクールテキスト「グラフェンの基礎から応用まで」、査読無、2011、16-25
18. M. Hayashi, H. Yoshioka, A. Kanda
Superconducting proximity effect in graphene nanostructures
J. Phys.: Conf. Ser., 査読有、248、2010、012002
doi:10.1088/1742-6596/248/1/012002
19. H. Shima, S. Ono, H. Yoshioka
Manipulating the Tomonaga-Luttinger exponent by electric field modulation
Eur. Phys. J. B, 査読有、78、2010、481-488
doi:10.1140/epjb/e2010-10698-2
20. K. Furukawa, H. Yoshioka, Y. Mochizuki
Anomalous Interaction Dependence in Magnetism of Graphene Nanoribbons with Zigzag Edges
J. Phys. Soc. Jpn., 査読有、79、2010、084708
doi:10.1143/JPSJ.79.084708
21. H. Yoshioka, M. Tsuchiizu, Y. Otsuka, H. Seo
Finite-Temperature Properties across the Charge Ordering Transition -- Combined Bosonization, Renormalization Group, and Numerical Methods --
J. Phys. Soc. Jpn., 査読有、79、2010、094714
doi:10.1143/JPSJ.79.094714
22. M. Hayashi, H. Ebisawa
Topological defect and quasi-particle dynamics in charge density waves
Physica C、査読有、470、2010、S962-S963
doi:10.1016/j.physc.2009.12.054
23. M. Hayashi, H. Yoshioka, A. Kanda
Theoretical study of superconducting proximity effect in single and multi-layered graphene
Physica C、査読有、470、2010、S846-S847
doi:10.1016/j.physc.2009.10.068
24. A. Kanda, T. Sato, H. Goto, H. Tomori, S. Takana, Y. Ootuka, K. Tsukagoshi
Dependence of proximity-induced supercurrent on junction length in multilayer-graphene Josephson junctions
Physica C、査読有、470、2010、1477-1480
doi:10.1016/j.physc.2010.05.142
25. H. Tomori, A. Kanda, H. Goto, S. Tanaka, Y. Ootuka, K. Tsukagoshi
Fabrication of ultrashort graphene Josephson junctions
Physica C、査読有、470、2010、1492-1495
doi:10.1016/j.physc.2010.05.146
26. H. Goto, H. Tomori, S. Tanaka, Y. Ootuka, K. Tsukagoshi, A. Kanda
Inverse spin valve effect in multilayer graphene device
J. Phys.: Conf. Ser., 査読有、232、2010、012002
doi:10.1088/1742-6596/232/1/012002
27. S Tanaka, H Goto, H Tomori, Y Ootuka, K Tsukagoshi, A Kanda
Effect of current annealing on electronic properties of multilayer graphene
J. Phys.: Conf. Ser., 査読有、232、2010、012015
doi:10.1088/1742-6596/232/1/012015
- [学会発表] (計 93 件)
1. 友利ひかり、軽部大雅、大塚洋一、神田晶申
グラフェンへのダメージを軽減した歪み導入法の開発
第 60 回応用物理学学会春季学術講演会
2013 年 3 月 27 日～2013 年 3 月 30 日
神奈川大学
2. 田沼慶忠、林正彦、田仲由喜夫
グラフェン異方的超伝導における準粒子状態
日本物理学会第 68 回年次大会
2013 年 3 月 26 日～2013 年 3 月 29 日
広島大学
3. A. Kanda, Y. Nukui, H. Tomori, H. Goto, Y. Ootuka
Comparison of mobility at the top and bottom surfaces of multilayer graphene placed on SiO₂ substrate
APS March Meeting 2013
March 18-22, 2013, Baltimore, USA
4. H. Tomori, A. Kanda, Y. Ootuka, H. Karube
Electron transport measurement in locally strained graphene

- APS March Meeting 2013
March 18–22, 2013, Baltimore, USA
5. 友利ひかり、軽部大雅、貫井洋祐、大塚洋一、神田晶申
1次元局所歪みのあるグラフェンの電気伝導測定
日本物理学会 2012 年秋季大会
2012 年 9 月 18 日～2012 年 9 月 21 日
横浜国立大学
 6. A. Kanda, H. Tomori, H. Karube, Y. Ootuka, M. Hayashi, H. Yoshioka
Electron transport in graphene with one-dimensional local strain
Graphene Week 2012
June 4-8, 2012, Delft University of Technology, Netherland
 7. M. Hayashi, H. Ebisawa, H. T. Huy, T. Ishida
Refinement of scanning SQUID microscope image by a numerical process
International workshop on Pathbreaking Phase Sciences in Superconductivity 2012 (PPSS2012) (invited)
Jan. 13-15 2012, Osaka, Japan
 8. 吉岡英生
固体中のディラック電子系—グラフェンを中心に—
奈良女子大学大学院人間文化研究科複合現象科学専攻 2011 年度数学・物理学・情報科学の研究交流シンポジウム
2011 年 12 月 3 日、奈良女子大学理学部
 9. 林正彦
グラフェン・ナノ構造における輸送特性
北東北国立 3 大学連携推進研究プロジェクト・シンポジウム
2011 年 11 月 26～27 日、岩手大学
 10. 神田晶申
グラフェンの磁性とスピントロニクス応用
第 49 回応用物理学会スクール「グラフェンの基礎から応用まで」(招待講演)
2011 年 8 月 30 日、山形大学
 11. H. Yoshioka, Y. Mochizuki
Properties of Graphene Nanoribbon with Zigzag Edges Attached to Two Normal Metals
26th International Conference on Low Temperature Physics (LT26)
Aug. 10-17, 2011, Beijing, China
 12. A. Kanda, H. Tomori, H. Goto, Y. Toyota, Y. Ootuka, K. Tsukagoshi, M. Hayashi, H. Yoshioka
Introducing strain in graphene
Graphene Week 2011
Apr. 24 – 29, 2011, Obergurgl, Austria
 13. 神田晶申
Toward graphene SFS Josephson junctions
「対称性の破れた凝縮系におけるトポロジカル量子現象」第 1 回領域研究
2010 年 12 月 19 日、京都大学
 14. 林正彦、神田晶申、吉岡英生
グラフェンにおける超伝導近接効果の理論 II
日本物理学会 2010 年秋季大会
2010 年 9 月 23 日～26 日、大阪府立大学
 15. A. Kanda, H. Goto, H. Tomori, S. Tanaka, Y. Ootuka, K. Tsukagoshi, H. Yoshioka, M. Hayashi
Superconducting proximity effect in single and multilayer graphene
Superconductivity and Magnetism: Hybrid proximity nanostructures and intrinsic phenomena (SM-2010)
Paestum, Italy, Sep. 5-11, 2010
 16. 吉岡英生
ジグザグ型グラフェンナノリボンの磁性における異常な相互作用依存性
グラフェンと超伝導体のナノ構造に関する研究会
2010 年 8 月 11 日、秋田大学
 17. H. Yoshioka
Effects of Disorder on Charge Ordering Transition in Quasi-One-Dimensional Molecular Conductors
International Conference on Science and Technology of Synthetic Metals 2010 (ICSM2010)
2010 年 7 月 6 日～9 日、京都国際会館
 18. M. Hayashi, H. Yoshioka, A. Kanda
Superconducting proximity effect in graphene nanostructures
The International Conference on Theoretical Physics, “Dubna-Nano2010”
July 5-10, 2010, Bogoliubov Laboratory of Theoretical Physics, Dubna, Russia
- [図書] (計 4 件)
1. A. Kanda, Pan Stanford Publishing
Physics and Chemistry of Graphene: Nanographene to Graphene (edited by T. Enoki) 2013 年 89-205 (87 ページ)
 2. K. Tsukagoshi, H. Miyazaki, S.-L. Li, A. Kumatani, H. Hiura, A. Kanda, World Scientific Publishing
Graphene and its Fascinating Attributes (edited by S. K. Pati, T. Enoki, and C. N. R. Rao) 2012 年

179-188 (10 ページ)

3. 神田晶申 コロナ社
カーボンナノチューブ・グラフェンハンドブック (フラーレン・ナノチューブ・グラフェン学会編) 2011 年
315-317 (3 ページ)
4. 神田晶申 塚越一仁、化学同人
炭素学 (田中一義、東原秀和、篠原久典編) 2011 年 376-380 (5 ページ)

[産業財産権]

○出願状況 (計 1 件)

名称: 走査型 SQUID 顕微鏡画像の高解像度化
発明者: 林正彦、石田武和
権利者: 秋田大学、大阪府立大学
種類: 特開
番号: 特開 2013-57647
出願年月日: 平成 23 年 9 月 9 日
国内外の別: 国内

○取得状況 (計 0 件)

名称:
発明者:
権利者:
種類:
番号:
取得年月日:
国内外の別:

[その他]

ホームページ等

6. 研究組織

(1) 研究代表者

吉岡 英生 (YOSHIOKA HIDEO)
奈良女子大学・自然科学系・教授
研究者番号: 40252225

(2) 研究分担者

林 正彦 (HAYASHI MASAHIKO)
秋田大学・教育文化学部・准教授
研究者番号: 60301040

神田 晶申 (KANDA AKINOBU)
筑波大学・数理物質科学研究科・准教授
研究者番号: 30281637