

科学研究費助成事業 研究成果報告書

平成 28 年 5 月 25 日現在

機関番号：82108

研究種目：若手研究(A)

研究期間：2013～2015

課題番号：25706030

研究課題名(和文) 相対論的単一粒子制御素子における電子軌道の観測と電磁波応答に関する研究

研究課題名(英文) Observation of electron orbitals and electromagnetic wave response in single relativistic-particle devices

研究代表者

森山 悟士 (Moriyama, Satoshi)

国立研究開発法人物質・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) 19,600,000円

研究成果の概要(和文)：本研究では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の相対論的粒子の性質を保持した電子を微小構造に閉じ込める素子の作製と、閉じ込められた電子の軌道の解析を行った。また、グラフェンの量子物性を最大限に活用するための高移動度グラフェン素子を開発した。具体的には、六方晶窒化ホウ素(hexagonal Boron Nitride: hBN)を基板およびグラフェンの表面を保護する膜としてカバーするデバイス構造を作製した。電子輸送測定の結果から高移動度グラフェン素子の実現、さらにグラフェンとhBNの結晶方位が揃っていることに起因する量子輸送現象の観測に成功した。

研究成果の概要(英文)：We demonstrated the quantum confinement of a single relativistic-particle in graphene nanostructures under a uniform magnetic field, and analyzed the carrier trajectories in the graphene nanodevices. In addition, we attempted to develop the high quality graphene samples to use the quantum properties in graphene. We fabricated the device structure that an encapsulated hexagonal boron nitride (hBN)/graphene/hBN heterostructures with one-dimensional edge contacts. The results of quantum transport measurement exhibited that the high carrier-mobility with quasi-ballistic transport regime in our device and the good alignment of graphene and hBN crystal orientation are realized.

研究分野：工学

キーワード：グラフェン hBN 量子ホール効果 単電子輸送 ナノ微細加工

1. 研究開始当初の背景

グラフェンは sp^2 結合した炭素原子が八ニカム状に並んだ、単原子層からなる 2 次元構造である。この特異な八ニカム構造によって、電気伝導で重要なフェルミエネルギー近傍でのバンド構造は線形なバンド分散を持つ。2005 年、絶縁基板上にある単層グラフェンに対して金属電極を取り付け、その電子輸送特性を測る実験結果が発表され、グラフェンのバンド構造に起因する両極性伝導と、室温で従来の半導体デバイスに匹敵する移動度、そして有効質量 0 のディラックフェルミオンにおける特異な量子ホール効果の発現等が示された (K.S. Novoselov *et al.*, Nature 438, 197 (2005)等)。現在、グラフェン電子デバイスの作製とその量子輸送特性が詳細に調べられ、特に新規量子デバイスの観点からこの材料は注目され、超伝導電流の観測 (H.B. Heersche *et al.*, Nature 446, 56 (2007)) や、スピン注入 (N. Tombros *et al.*, Nature 448, 571 (2007)) 等、ヨーロッパ・アメリカを中心にデバイスの基礎研究が活発に進められてきている。我々は、単一電子デバイスとしてのグラフェンの応用に着目して研究を進め、量子ドットを 2 個連結した 2 重結合量子ドット構造をグラフェン上に作製し、単一電荷状態制御とドット間結合の制御に成功した (S. Moriyama *et al.*, Nano Lett. 9, 2891 (2009)). しかし、このような量子ドット素子では基本的な単一電子輸送は実現されているが、微細加工におけるバンド構造の変調によって、有効質量 0 のディラック電子ではなく、一定の有効質量を持った電子としての量子輸送しか実現されていないことが近年明らかになってきた。また、グラフェンの理想的な電子物性に対して、実際に作製したグラフェン素子では、グラフェンを固定している基板との界面状態が電子輸送に大きく影響することがわかってきた。グラフェンを宙吊りにした架橋構造の電子輸送では、移動度 $200,000 \text{ cm}^2/\text{Vs}$ を超えるこの材料も、一般によく使われるシリコン酸化膜基板の素子では $1,000 - 10,000 \text{ cm}^2/\text{Vs}$ 程度に限られてしまう。これは基板の電荷不純物に依存し、グラフェンはその影響を大きく受けて性能が律速されてしまうと考えられる。したがって、原子層材料を用いたグラフェン量子デバイスの実現には、グラフェン特有の電子物性を保持した、高移動度グラフェンデバイスの開発が重要な課題となる。

2. 研究の目的

本研究では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の作製と、閉じ込められたディラック電子の軌道の解析、そして量子状態の制御を目指す。また、グラフェンの量子物性を最大限に活用

するため、高移動度グラフェン素子の作製を行う。具体的には、六方晶窒化ホウ素 (hexagonal Boron Nitride: hBN) を基板およびグラフェンの表面を保護する膜としてカバーするデバイス構造を作製、電子輸送を評価し、高移動度グラフェン微細素子の可能性を探索する。

3. 研究の方法

酸化膜シリコン/シリコン基板上に数十 μm サイズの単層グラフェン試料を貼り付け、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。このグラフェンナノ構造素子を低温 ($0.3 \text{ K} - 2 \text{ K}$)、強磁場下 (7.5 T) において量子輸送現象を調べた。また、hBN を用いた高移動度グラフェン素子の作製では、劈開法で得られるグラフェンや hBN 結晶が一般に数十 μm 程度のサイズであり、重ね合わせることは容易ではない。我々は、高精度で結晶位置と方位を合わせて異なる原子膜同士を重ね合わせる原子膜材料任意基板転写装置を構築し、hBN 結晶でグラフェンを挟みこむことで、安定な構造を作製した。本装置を用いて、C. R. Dean *et al.*, Nature Nanotechnology 5, 722 (2010). と同様の手法でグラフェンと hBN の積層構造を作製した。まずシリコン基板上に水溶性ポリマーとポリメチルメタクリレート (PMMA) の二層構造を作製し、その上に hBN を機械的剥離法により貼り付ける。基板を水の上に置いて、水溶性ポリマーを溶かすことにより hBN/PMMA を取り出し、これを穴の開いたガラス板に張りあわせる。さらに別の基板に貼り付けたグラフェンと hBN/PMMA を取付けたガラス基板をマニピュレーターと顕微鏡により薄膜同士の位置合わせを行い、グラフェンを hBN でピックアップする。最後に別の酸化膜シリコン/シリコン基板上に hBN を貼り付け、同様に hBN とグラフェン/hBN 薄膜の位置合わせを行い、今度はグラフェン/hBN 薄膜を hBN 基板側に転写する。こうして、グラフェンを hBN で挟み込んだ hBN/グラフェン/hBN 積層構造が完成する。グラフェンとそれを挟む hBN の表面は水に濡れないため、hBN とグラフェンの間は清浄に保つことができる。積層構造に対して、微細加工によるグラフェンのホールパー形状のパターンニング、および電極を取付け、デバイスを作製した。このとき電極はグラフェンに対して一次的にコンタクトをとることになる。作成した素子は温度 $5 \text{ K} - 300 \text{ K}$ 、磁場 6 T の範囲で量子ホール効果の測定を行った。

4. 研究成果

まず、酸化膜シリコン/シリコン基板上に作製したグラフェンナノ構造素子の量子輸送について報告する。作製した素子は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ゲートに依存する磁場 B_c 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、束縛状態が形成されていると考えられる。これは、素子構造によって形成されるポテンシャルを放物線的な形を仮定して理論計算した結果、磁場によって、電子の軌道が閉じ込められることを確認した。この結果は、静電的な閉じ込めポテンシャルだけでは、Klein トンネリングなどによって閉じ込められないディラック電子が、磁場を組み合わせることによって、電子の軌道を制御し、閉じ込めができることを意味する。実験結果と理論的な計算より、実際に作製した素子中でどのような軌道を取るかを解明した(S. Moriyama et al., Appl. Phys. Lett. 104, 053108 (2014).)。

次に高移動度グラフェン素子の量子輸送について報告する。図 1 に hBN/グラフェン/hBN 積層構造とグラフェンに対して一次元的な電極を取付けた素子の模式図を示す。作製した試料を無冷媒式冷凍機およびマグネット装置にマウントし、温度 5 K で輸送評価を行った。抵抗率のゲート依存性を図 2 に示す。ゲート電圧ゼロ付近では、通常のグラフェンに特徴的なディラック点を反映する抵抗のピークが見られる。また、ゲート電圧 -21V 付近に見られるピークは、グラフェンと hBN の結晶方位が揃っていることに起因した、第二のディラック点が観測されている。低磁場でのホール抵抗測定を組み合わせることにより、グラフェン素子の移動度を見積もったところ、ディラックポイント近傍において約 $150,000 \text{ cm}^2/\text{Vs}$ であることがわかった。また、平均自由行程はおおよそ $2 \mu\text{m}$ となり、ホールバー素子の寸法(幅 $1 \mu\text{m}$ 、長さ $2.5 \mu\text{m}$)とほぼ同等であることから、バリスティック伝導領域の電子輸送になっていると考えられ、高移動度グラフェン素子が実現されているといえる。実際、低磁場領域において測定電極端子を組み替えることによってバリスティック伝導の電子輸送である磁気フォークシング効果の観測にも成功した。次に、磁場を 6T まで印可した量子ホール効果の結果を図 3 に示す。図 3(a)は抵抗率 ρ_{xx} のゲート電圧および磁場依存性をマッピングしたもので、図 3(b)はホールコンダクタンス σ_{xy} のゲート電圧および磁場依存性のマッピングである。単層グラフェン特有のランダウ準位の形成と hBN の重ね合わせによるモアレパターンの 2 次元周期構造に起因する磁気振動、いわゆるホフスタッター・バタフライの観測

に成功した。ホフスタッター・バタフライのパターンの解析から、グラフェンと hBN の格子は角度 $0.7 \sim 0.8$ 度ずれた形で重ね合わさっており、その結果、周期 11 nm 程で 2 次元周期系が形成されていると考えられる。温度を 5 K から室温まで変化させることによる熱履歴に対して、試料の移動度は $150,000 \sim 250,000 \text{ cm}^2/\text{Vs}$ 程の変化が見られたが、何度かの熱履歴においても高移動度を保持し、また磁場依存性におけるホフスタッター・バタフライのパターンはほとんど変化しなかったことから結晶構造の変化もかなり小さいと考えられる。2 次元周期構造に起因する磁気振動は 160 K まで観測され、また、室温においても移動度は $50,000 \text{ cm}^2/\text{Vs}$ と高い値を示した。これらの結果は、グラフェンを hBN で挟み、さらに一次元的に電極を作製した本素子構造を用いることによって、非常に高い移動度を実現し、さらに外部環境に対しても非常に強いということを示している。研究期間最終盤ではこの構造を用いたナノ構造素子の作製プロセスを開発し、量子ドット素子の試作まで実現した。

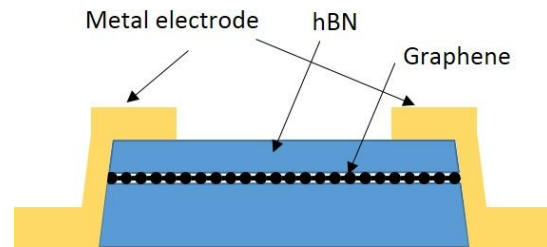


図 1: hBN/グラフェン/hBN 積層構造とグラフェンに対して一次元的な電極を取付けた素子の模式図。ゲートは基板(酸化膜シリコン/シリコン)背面からバックゲートとして印可する。

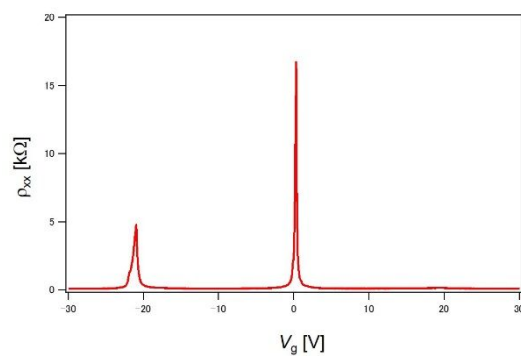


図 2: 温度 5 K, 磁場 0 T におけるグラフェンホールバー素子(幅 $1 \mu\text{m}$ 、長さ $2.5 \mu\text{m}$)の抵抗率のゲート電圧依存性。 $V_g = 0 \text{ V}$ 付近にディラック点を反映する抵抗のピークが観測され、さらに $V_g = -21 \text{ V}$ 付近に現れるピークは、グラフェンと hBN の結晶方位がある程度揃っていることを反映している。

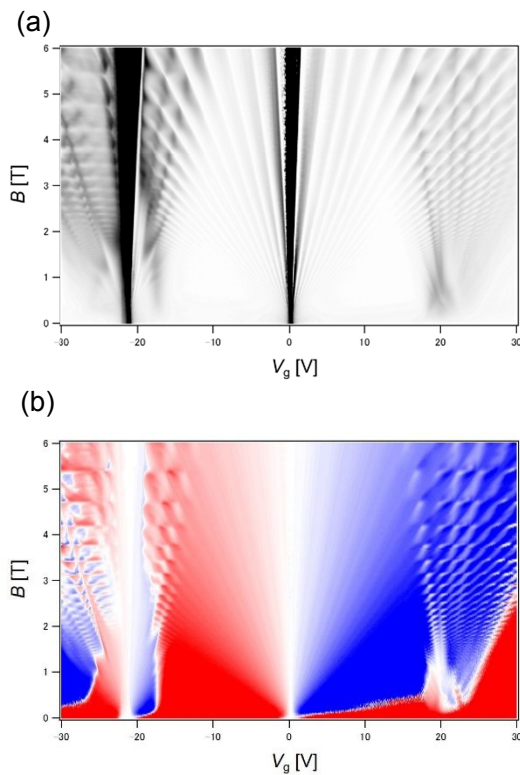


図 3: (a) 温度 5 K における抵抗率 ρ_{xx} のゲート電圧および磁場依存性のグレースケールプロット。白色が 0 k Ω , 黒色が 3 k Ω に対応する。(b) ホールコンダクタンス σ_{xy} のゲート電圧依存性のカラースケールプロット。白色が 0 (単位: e^2/h) で青色が正(50), 赤色が負(-50)のコンダクタンスを示している。 $V_g = 0$ V のディラック点近傍では単層グラフェン特有の量子化コンダクタンス $\sigma_{xy} = \pm 2, \pm 6, \pm 10, \dots [e^2/h]$ が観測されている。ディラック点から離れていくと, グラフェン/hBN によって形成される 2 次元周期構造に起因する磁気振動のパターンが観測される。

一方で, 測定環境として, 微細な量子ドットの量子状態制御を行うための電磁波応答測定系の開発をこれらの研究と並行して推進し, 基本的なシステムを確立した。シリコンを用いた量子ドット素子で動作テストを行った結果, 70 GHz までの周波数領域において電子輸送のマイクロ波応答を観測することができた。本研究期間では, グラフェン素子に対する高周波応答の観測まで実現することができなかったが, 本測定システムは様々な電子材料素子に対して適用できる汎用的なものに組み上げており, 今後グラフェンナノ構造素子などの新機能性材料素子の量子状態制御に関する研究を進めていきたいと考えている。

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 1 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)

〔学会発表〕(計 10 件)

1. 小松克伊, 渡辺英一郎, 津谷大樹, 渡邊賢司, 谷口尚, 森山悟土: “六方晶窒化ホウ素(hBN)/グラフェン/hBN 構造におけるゼロ磁場中非局所抵抗”, 2016 年第 63 回応用物理学会春季学術講演会, 東京, 3/19-3/22, 2016.

2. 大野圭司, 森 貴洋, 森山悟土: “TFET におけるチャージポンピングとスピン効果”, 2016 年第 63 回応用物理学会春季学術講演会, 東京, 3/19-3/22, 2016.

3. 森山悟土, 森 貴洋, 大野圭司: “短チャネルトンネルトランジスタにおける結合量子ドットの電子輸送とマイクロ波応答”, 2016 年第 63 回応用物理学会春季学術講演会, 東京, 3/19-3/22, 2016.

4. S. Moriyama, T. Mori, K. Ono: “Quantum-dot transport in silicon-based tunnel field-effect transistors”, MANA International Symposium 2016, Tsukuba, Japan, 9-11, March, 2016.

5. K. Komatsu, E. Watanabe, D. Tsuya, K. Watanabe, T. Taniguchi, and S. Moriyama: “Fabrication and transport characteristics of hexagonal boron nitride(hBN)/ graphene /hBN heterostructures”, MANA International Symposium 2016, Tsukuba, Japan, 9-11, March, 2016.

6. K. Komatsu, E. Watanabe, D. Tsuya, K. Watanabe, T. Taniguchi, and S. Moriyama: “Quantum transport in hBN/graphene/hBN heterostructures with one-dimensional edge contacts”, ISANN2015, International Symposium on Advanced Nanodevices and Nanotechnology, Hawaii, USA, November 29-December 4, 2015.

7. S. Moriyama, Y. Morita, E. Watanabe, D. Tsuya: “Field-induced confinement and quantum transport in graphene”, PacSurf2014, Pacific Rim Symposium on Surfaces, Coatings and Interfaces, Hawaii, USA, 7-11, December, 2014.

8. S. Moriyama, M. Yoshihira, Y. Morita, H.

Güerin, Y. Ochi, H. Kura, T. Ogawa, T. Sato, and H. Maki: “Electron transport in ultra-thin gold nanowires as quantum dots”, ISANN2013, International Symposium on Advanced Nanodevices and Nanotechnology, Kauai, USA, 8-13, December, 2013.

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

10. 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.

6 . 研究組織

(1)研究代表者

森山 悟士 (MORIYAMA, Satoshi)

国立研究開発法人物質・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