

科学研究費助成事業 研究成果報告書

平成 28 年 6 月 14 日現在

機関番号：34519
研究種目：若手研究(B)
研究期間：2013～2015
課題番号：25870966
研究課題名(和文) グラフェンにおけるスカーミオン励起の研究

研究課題名(英文) Study of Skyrmion excitation in graphene

研究代表者

寺澤 大樹 (Terasawa, Daiju)

兵庫医科大学・医学部・助教

研究者番号：90589839

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 3,100,000円

研究成果の概要(和文)：本研究の目的は、グラフェンにおけるスカーミオン励起の検証を行うことであったが、スカーミオンの観測ができるほど良質なグラフェンのデバイス化ができず、この目的の達成には至らなかった。しかしながら、作製した試料によって、量子干渉効果として知られる普遍的伝導度ゆらぎと弱局在効果の関係について詳しく調べることができた。実験の結果は、グラフェンにおいては両者が同一の現象であることを示しており、他の系で観測される伝導度ゆらぎにも本研究の知見を活用できる内容となっている。また、架橋構造の試料を作製し、試料の高移動度化を図った。

研究成果の概要(英文)：We study skyrmion excitations in graphene by means of the electronic transport measurement. However, due to the lack of sample quality, we could not observe skyrmion excitations from the quantum Hall effect. However, we measured the relationship between the universal conductance fluctuation and the weak localization effect. The experimental results indicate that the two phenomena are identical. The results can be applied to conductance fluctuations in other systems. We also developed suspended graphene devices, in which a large increase in the mobility can be expected.

研究分野：グラフェン

キーワード：グラフェン スカーミオン 普遍的電導度揺らぎ 弱局在 量子干渉効果 量子ホール効果 架橋構造
グラフェン

1. 研究開始当初の背景

グラフェンとは、炭素原子が蜂の巣状に結合した単原子層の2次元物質のことである。 π バンドの分散関係が電子と正孔で対称かつ線形となることから、グラフェンにおいては電子や正孔は質量ゼロの準相対論的 Dirac フェルミオンと見なせる。この系では、通常の量子ホール効果とはホール伝導度が半整数分ずれた特異な量子ホール効果が現れる、表面に吸着した分子の影響で伝導度が変わる、2層グラフェンではバンドギャップが生じるなど、電気輸送現象において数多くの興味深い性質が現れ、基礎・応用の両面から研究が進んでいる。

スカーミオンとは、球の表面に沿って全方向をスピンの向きのように並んだ準粒子で、2次元空間で広げると渦構造を持ったトポロジ的に不変な集団励起である(図1参照)。私はこれまで GaAs/AlGaAs のヘテロ接合による2次元電子系を用いた量子ホール効果の研究を行い、2次元電子系を2枚近接配置し、2層間の相互作用を持つ系でのスカーミオンや擬スピンスカーミオン(層の自由度をスピンとみなした系におけるスカーミオン)について研究してきた。それらは、スピンと擬スピンの絡み合ったスカーミオン励起と考えられる準粒子についての研究(*Phys. Rev. B* **88**, 205103 (2013))と、メロン対と呼ばれるスカーミオンが半分ずつになったような渦構造の対が乖離する際に起きる量子ホール状態の磁気抵抗の変化についての研究(*Phys. Rev. B* **86**, 165320 (2012))である。

理論的には、グラフェンにおいてもこのスカーミオン励起が存在すると予測されている。さらにグラフェンでは、スピンの自由度の他に Valley と呼ばれている自由度(Brillouin ゾーンの K 点と K' 点)を擬スピンと見なしたときの擬スピンスカーミオン励起が考えられている。スピンと擬スピンの自由度が絡み合った $SU(4)$ スカーミオンの励起が存在すること(*Phys. Rev. B* **74**, 074523 (2006))や、スカーミオンの持つ電荷が $2e$ になること(*Phys.*

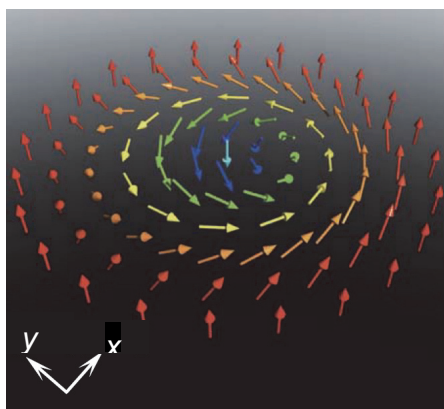


図1 スカーミオン励起におけるスピンの向きを表した概略図。

Rev. Lett. **103**, 076802 (2009))などが予想されている。

2. 研究の目的

本研究の目的は、グラフェン量子ホール効果におけるスカーミオン励起を実験的に検証することである。

そのためには良質なグラフェン試料を作製し、量子ホール効果の観測を行うこと、量子ホール効果のランダウ準位占有率を一定に保ったまま磁場を増大させるため、試料を磁場中で傾ける機構を作製すること、微小な抵抗の変化を測定できるような測定系の作製を行うことなどが課題として挙げられる。

3. 研究の方法

具体的な研究の方法は、低温・強磁場下でグラフェンの量子ホール効果を実現させた後、電気輸送現象を調べ、スカーミオン励起の際に必要な励起ギャップエネルギーの変化が理論の予測と一致するかを検証する、というものである。

量子ホール状態からの励起ギャップ(Δ)は、磁気抵抗 R_{xx} の温度依存性が $R_{xx} \sim \log(-\Delta/2T)$ という Arrhenius 型の変化を示すことを用いて求められる。理論では、励起ギャップ Δ は総磁場 B_{tot} に対して $B_{tot}^{1/3} |\log B_{tot}|^{1/3}$ に比例して変化すると予測されている。このように特徴的な励起ギャップの変化をとらえることで、グラフェンにおけるスカーミオンについて検証可能である。

これらの実験を行うに当たって、最も重要になるのは、やはり試料作製である。本研究では、グラフェンのデバイス化を大阪大学産業科学研究所・松本研究室において行った。

最初に用意した試料は、単層または2層グラフェンを300nmの SiO_2 膜付き導電性Si基板上に貼り付け、EB描画と蒸着によってPd/Au電極をつけてデバイス化したもので、バックゲート電圧 V_g によってキャリア密度を制御することができる。しかしながら、この試料では SiO_2 膜表面から受ける不純物ポテンシャルの影響で高い移動度が得られず、磁場7Tで量子ホール効果を示したものの、スカーミオンの測定を行えるほど良好な量子ホール状態ではなく、磁気抵抗がゼロまで減少しなかった。しかしながら、低温において抵抗に普遍的伝導度ゆらぎが観測されると同時に、弱局在効果も観測されることがわかり、この2つの量子干渉効果を詳しく調べることができた。その結果について、**研究成果(1)**として述べることにする。

次に、試料の高移動度化を狙って、架橋構造のグラフェン試料を作製することにした。この構造は、グラフェンを SiO_2 膜など基板に接触させないので、基板の不純物ポテンシャルによる散乱を受けずに電流を流せるため、移動度を大幅に向上させることができる方

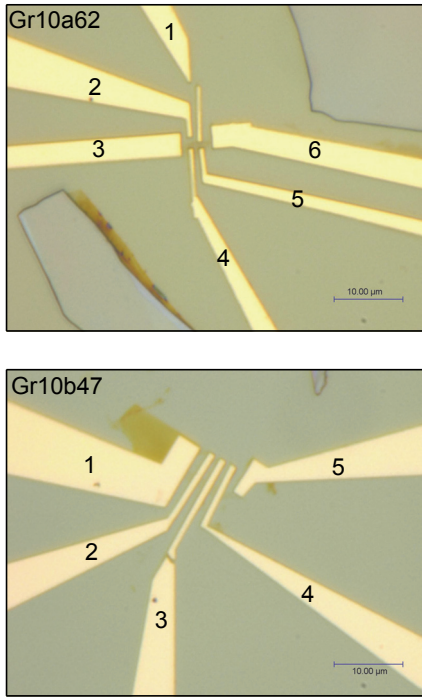


図2 2つの試料(Gr10a62とGr10b47)の酸処理後のデバイスの写真。数字は端子の番号。

法として知られている。グラファイト剥離法によってデバイス化するところまでは前述の通りであるが、後に酸によるエッチングを行うことを考慮して、通常より電極のAuを厚く(~100 nm)蒸着しておいた。電極形成後、酸によるエッチングでSiO₂を100nmほど一様に(グラフェンの下も)削り、グラフェンの下に溝を掘って宙吊りにした。図2は酸処理後のデバイスの写真である。図3はラマン分光法により測定したラマンシフトのスペクトルで、どちらもGピーク(低シフト側)と2Dピークを示し、グラフェンが存在していることを確認できた。この試料については室

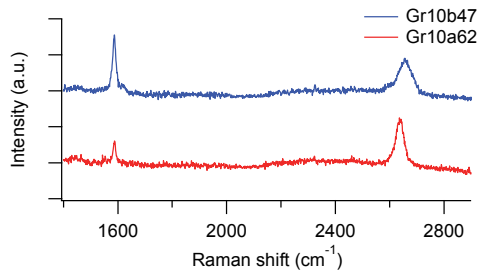


図3 酸処理後、ラマン分光法によりグラフェンの存在を確認した結果。2Dピークのスペクトルの違いは層数を反映しており、これからGr10a62は単層、Gr10b47は2層であることが分かる。

温、真空中で簡易測定を行ったので、その結果を**研究成果(2)**で述べる。

さらに、試料を磁場中で回転させる機構についての開発も行った。

4. 研究成果

(1) 量子干渉効果の研究

SiO₂上に作製したグラフェン試料を冷却して、デバイス化した単層グラフェン試料を5.9 Kまで冷却したところ、磁場のない状態で図4(下図)のような伝導度ゆらぎ $\delta g = \delta\rho_{xx}/\rho_{xx}^2$ のゲート電圧 V_g 依存性が得られた。この状態に磁場 B を掛け、抵抗率 ρ_{xx} のゼロ磁場からの変化 $\Delta\rho_{xx}(B, V_g) = \rho_{xx}(B, V_g) - \rho_{xx}(0, V_g)$ を測定したところ、図4(上図)のようになった。青色(赤色)が濃いほど ρ_{xx} が減少(増加)したことを示し、低磁場で ρ_{xx} が減少する弱局在の特性を示すことがわかった。グラフェンの弱局在には、通常の2次元系とは異なり、弾性散乱の効果が重要であることがわかっていて、特に、運動量空間の2つの非等価なDiracコーン(谷自由度)の間を移る弾性的な谷間散乱が弱局在を引き起こすことで知られ、そのような効果を含んだ次の理論式がMcCannらによって提唱されている。

$$\Delta\rho_{xx}(B) = -\frac{e^2\rho_{xx}^2}{\pi h} \left[F\left(\frac{B}{B_\phi}\right) - F\left(\frac{B}{B_\phi + 2B_i}\right) - 2F\left(\frac{B}{B_\phi + B_*}\right) \right]$$

$$F(z) = \ln(z) + \psi\left(\frac{1}{2} + \frac{1}{z}\right), \quad B_{\phi,i,*} = \frac{\hbar}{4De} \tau_{\phi,i,*}^{-1}$$

この式で、 ψ はdigamma関数、 D は拡散係数であり、 \hbar はプランク定数($\hbar = h/2\pi$)、 e は素電荷である。下付き文字の $\phi, i, *$ はそれぞれ非弾性散乱、谷間散乱、谷内散乱を表しており、 τ は散乱時間である。この式を用いて V_g ごとに実験結果をフィッティングし、

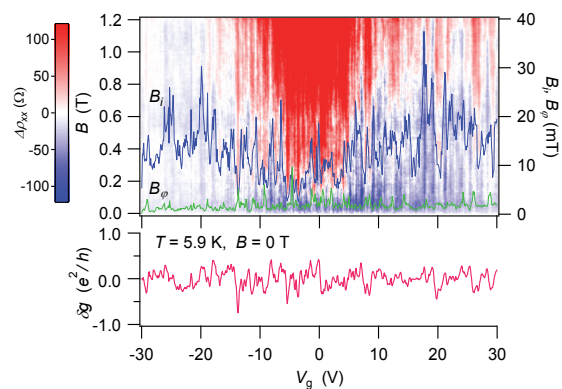


図4 (上図) $\Delta\rho_{xx}$ を V_g と B (左軸)に対してイメージプロットした図。右軸にはフィッティングによって得られた B_i と B_ϕ の値をプロットした。(下図) 5.9 K, 0 Tにおける伝導度ゆらぎ δg の V_g に対する変化。

B_{ϕ} , B_i を求め、その結果を図4上図の右軸に対してプロットした。図のように伝導度ゆらぎに対応して B_i の値が変動している結果が得られた。これによって、グラフェンの伝導度ゆらぎが、弾性的な谷間散乱に起因することがわかった。

この結果は、これまでどのような散乱機構が引き起こしているか不明だった伝導度ゆらぎについての理解を促進するもので、グラフェンについてだけではなく、他の系で観測される伝導度ゆらぎも弾性的な散乱機構が関与していることを示唆する重要な成果と言える。また、伝導度ゆらぎが起こるグラフェン試料では、谷間散乱が起きやすいということが言える。谷間散乱は、格子不整合などの欠陥に起因することが多く、伝導度ゆらぎの有無はこれらの欠陥がどの程度含まれるか調べる際の指標となることがわかった。

(2) 架橋構造グラフェンの測定結果

図5は、真空中でプローバーによって測定した2端子法による抵抗 R のバックゲート電圧 V_g 依存性である。宙吊り構造にしたグラフェンに V_g を掛けると、誘起されたキャリアによって膜が引き付けられて壊れてしまう恐れがあるので、そのようなことがないと考えられる ± 5 V まで電圧を掛けて測定した。相当キャリアがドーピングされて電荷中性点が移動しているためか、 V_g の変化に対して R の変化が非常に小さかった。電極とグラフェンの

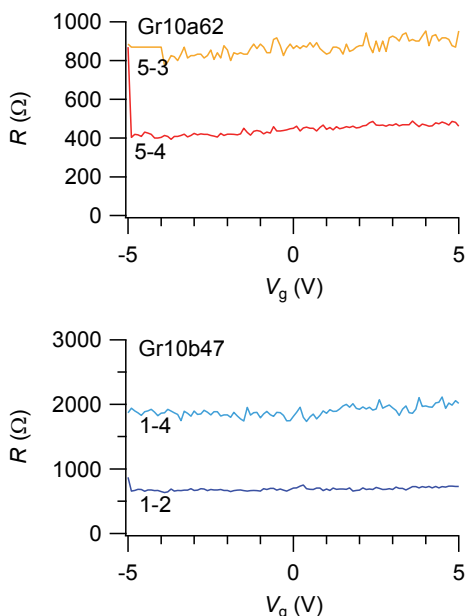


図5 プローバーによって測定した2端子抵抗 R のゲート電圧 V_g 依存性。5-3, 5-4などの数字は図1の端子番号に対応しており、5-3の場合5番と3番の2端子を用いて測定した結果であることを示している。

接触部分の抵抗が一定と仮定してグラフェンの抵抗率を求めると、1層系の試料(Gr10a62)で 1200Ω , 2層系の試料(Gr10b47)で 700Ω 程度であった。先行研究(K. I. Bolotin *et al. Solid State Communications* **146** (2008) 351)によるとこの時点では不純物などがグラフェン表面に付着しているため移動度が低下しており、ここからさらに真空中でのアニールを行うことで移動度が数十万 cm^2/Vs に増加することが報告されている。今後は真空中でのアニールを行い、低温にして伝導特性を評価したい。さらに、当初の予定であった量子ホール状態からのスカーミオン励起の測定を行いたい。

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 A. Fujimoto, C. A. Joiner, Y. Jiang, D. Terasawa, A. Fukuda, Z. Jiang and E. M. Vogel, Negative magnetoresistance in Ti-cleaned single-layer graphene, 査読有, J.Phys: Conf. Series, **603**, 012021, (2015), DOI: 10.1088/1742-6596/603/1/012021

[学会発表] (計 8 件)

① 寺澤 大樹, 福田 昭, 藤元 章, 大野 恭秀, 松本 和彦, グラフェンにおける伝導度ゆらぎの温度依存性, 日本物理学会 2015 年秋季大会, 関西大学 大阪府吹田市 2015 年 9 月 16 日

② A. Fujimoto, C. A. Joiner, Y. Jiang, D. Terasawa, A. Fukuda, Z. Jiang, E. M. Vogel, Temperature and Gate Voltage Dependence of Weak Localization Effect in Ti-Cleaned Single-Layer Graphene, EP2DS-21: 21st International Conference on Electronic Properties of Two-Dimensional Systems, Sendai International Center, Sendai Japan, 2015 年 7 月 30 日

③ D. Terasawa, A. Fukuda, A. Fujimoto, Y. Ohno, and K. Matsumoto, Universal conductance fluctuation and intervalley scattering in graphene EP2DS-21: 21st International Conference on Electronic Properties of Two-Dimensional Systems, Sendai International Center, Sendai Japan, 2015 年 7 月 28 日

④ A. Fukuda, D. Terasawa, A. Fujimoto, Y. Ohno, and K. Matsumoto, Thermal Effect on Relationship between Weak Localization and Universal Conductance Fluctuation in Monolayer Graphene, EP2DS-21: 21st International Conference on Electronic Properties of Two-Dimensional Systems, Sendai International Center, Sendai Japan, 2015 年 7 月 27 日

⑤ 寺澤大樹, 福田昭, 藤元章, 大野恭秀, 松本和彦, グラフェンにおける抵抗振動と弱局在効果との関係 日本物理学会 第 70 回

年次大会 早稲田大学東京都新宿区 2015
年3月22日

⑥ 寺澤大樹, 福田昭, 大野恭秀, 松本和彦,
2層グラフェンの磁気抵抗値の⁴He吸着による変化, 日本物理学会 第69回年次大会 東
海大学 神奈川県平塚市 2014年3月27日

⑦ 寺澤大樹, 福田昭, 大野恭秀, 松本和彦
2層グラフェンの低温における磁気抵抗の
振動と弱局在効果, 日本物理学会 2013年秋
季大会 徳島大学 徳島県徳島市 2013年
9月27日

⑧ D. Terasawa, A. Fukuda, Y. Ohno, K.
Matsumoto, Transition from weak localization to
strong localization regime in the bilayer graphene,
EP2DS-20: 20th International Conference on
Electronic Properties of Two-Dimensional
Systems, Wroclaw, Poland 2013年7月2日

〔図書〕(計 0 件)

〔産業財産権〕

○出願状況(計 0 件)

○取得状況(計 0 件)

6. 研究組織

(1) 研究代表者

寺澤 大樹 (Daiju, Terasawa)

兵庫医科大学・医学部・助教

研究者番号: 90589839