

科学研究費助成事業 研究成果報告書

平成 27 年 5 月 22 日現在

機関番号：82108

研究種目：挑戦的萌芽研究

研究期間：2014～2014

課題番号：26630139

研究課題名(和文)二次元原子膜材料の微細構造制御と電子デバイス応用に関する研究

研究課題名(英文) Nanofabrication and application of electronic devices in two-dimensional atomic layer materials

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

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 3,000,000円

研究成果の概要(和文)：本研究では、二次元原子膜材料のデバイス応用に向けて、デバイス化に適した基板の開発と、その基板を用いたナノデバイスの作製を試みた。基板材料として、酸化イットリウム/グラファイト基板を採用し、構造を作製、その上にグラフェンを転写し、デバイスを作製した。ホールバー素子の電子輸送特性の評価から、単層グラフェン特有の量子ホール効果の観測、そしてシリコン酸化膜基板上と同等の移動度と、グラファイトをゲート電極とした高いキャリア密度変調を実現した。これは酸化イットリウム/グラファイト構造が原子膜デバイスの基板として有用であることを示すものである。

研究成果の概要(英文)：In the present study, we attempted to develop suitable substrates for two-dimensional atomic layer materials toward the application of electronic devices, and fabricated the nano-devices on the novel substrate. We adopted the Yttrium oxide (Y-O)/graphite as substrate materials, and the substrate was fabricated. Single-layer graphene was transferred on this substrate, and the device structures were designed. The graphite substrate used as a back gate electrode. From the four-terminal measurement of the devices, we observed the integer quantum Hall effect of a single-layer graphene, and estimated the mobility equal with on the oxidized silicon substrate, high carrier density modulation as a function of the back gate voltage. These results indicate that the Y-O/graphite structure is useful as the substrate for two-dimensional atomic layer materials.

研究分野：工学

キーワード：グラフェン 量子ホール効果 ナノ材料 薄膜・量子構造 酸化イットリウム

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面体状に並んだ、単原子層からなる 2 次元電子材料である。特に 2 次元的に広がったシート構造の特徴から、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、電子デバイスを作製することができる。その中で、近年多くのグループの結果から、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上の素子では $1,000 - 10,000 \text{ cm}^2/\text{Vs}$ 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、グラフェンのみならず、多くの単一原子層材料はその影響を大きく受けて性能が律速されると考えられる。したがって、原子層材料を用いた電子デバイスの実現には、原子膜に影響を与えず、高移動度が得られ、ウェーハサイズの大面積基板の開発が重要な課題である。

2. 研究の目的

本研究では、単一原子層であるグラフェン、および近年注目されている層状遷移金属ダイカルコゲナイドなどの単一原子層材料に対して、微細構造制御と量子輸送測定を行い、トランジスタとしての動作実証と構造の最適化、ナノ量子デバイスとしての応用を探索する。特に、研究背景に述べた原子膜材料に適した基板材料および構造を探索する。そして、単一原子層という究極のスケールダウンした電子材料の微細な構造を、外部から制御・観測するための基盤技術開発、およびその量子輸送メカニズムを解明することを目的とする。

3. 研究の方法

原子層材料であるグラフェン、六方晶窒化ホウ素 (hBN)、二硫化モリブデン (MoS_2) 等の試料は、それぞれの 3 次元層状結晶から機械的剥離法を用いて取り出す。既に、シリコン酸化膜/シリコン基板上に数十 μm サイズの単層グラフェンや単層 MoS_2 などの試料を作製し、微細加工を用いたナノ構造素子の作製プロセスは確立している。本研究ではこの機械的剥離法を改良して、任意の基板への転写を行う装置を開発し、デバイス化に適した基板の開発とその基板への原子層材料の転写を行う。実際の装置の写真を図 1 に示す。転写したい原子膜材料をスライドガラス上に設置し、光学顕微鏡上に置かれた基板に XYZ マニピュレーターで位置合わせをして貼り付けるといったシンプルな手法である。様々な原子膜材料を任意基板の所望の位置にマイクロメーターオーダーの精度で転写することができる (貼り付ける原子膜材料は数十 μm 角以上のスケールなのでこの精度で十分となる)。原子層材料を固定する材料としては

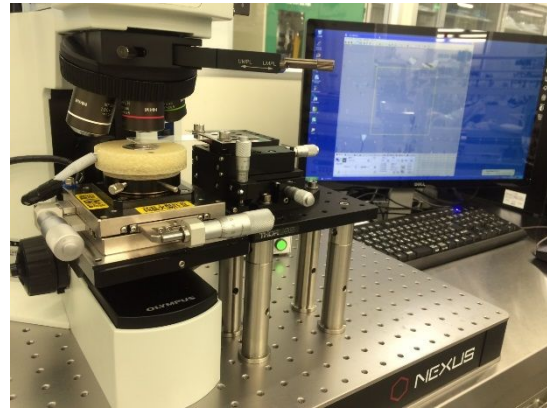


図 1: 原子膜材料任意基板転写装置。光学顕微鏡と XYZ マニピュレーターを組み合わせ、原子膜材料の貼り合わせを良くするためのヒーターを取り付けている。

マイカや hBN など、二次元原子膜を用いることによって平坦性を維持することができるが、マイカを基板に用いた例ではグラフェンの移動度が向上しないという報告がある。これはマイカが疎水性であるグラフェンとの相性が悪いことが原因と考えられ、二次元原子膜の中でも適した材料を組み合わせることが必要となる。hBN 上のグラフェンは架橋構造のグラフェンと同等の非常に高い移動度が得られている理想的な基板材料であるが、現状ではサイズが数十 μm に留まっているため、将来のデバイス応用に際して困難である。そこで本研究では、原子層材料を置くための基板材料として、層状物質であり、かつ導電性を持つグラファイトを基板として用いた。さらにその上の絶縁層として、非常に平坦な膜を形成でき、かつ高誘電率で大きなバンドギャップを持つ酸化イットリウムを採用した。グラファイトは通常のシリコン酸化膜/シリコン基板上に通常の機械的剥離法によって貼り付け、その上から真空電子線蒸着によりイットリウムを堆積、自然酸化を行い、平坦な酸化イットリウム/グラファイト基板を作製した。この基板に原子膜材料任意基板転写装置を用いてグラフェンを転写する。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、その上にグラフェンを機械的剥離法により貼り付ける。これを穴の開いたガラス板に張ったポリマーの上に載せ、顕微鏡により位置合わせを行い、グラファイトのある位置に貼り付ける。グラフェンを張り付けた後、PMMA をアセトンで除去すると、酸化イットリウム/グラファイト基板上にグラフェンが転写される。この方法では、グラフェン表面は水に濡れないため、基板とグラフェンの間は清浄に保つことができる。最後に、微細加工によるグラフェンのパターンングおよび電極を取付け、デバイスを作製した。

4. 研究成果

酸化イットリウム/グラファイト基板上の

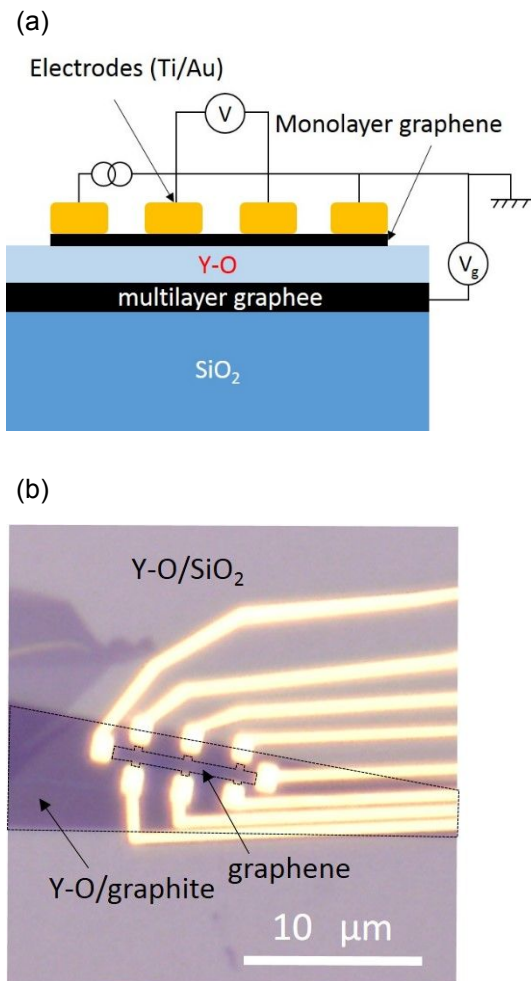


図 2: (a) デバイス構造の模式図と電子輸送特性のセットアップ。(b) 酸化イットリウム/グラファイト基板上のグラフェンデバイスの光学顕微鏡写真。

グラフェンの特性を調べるため、ホールバネ素子を作製し、電子輸送特性を調べた。図 2(a)はデバイス構造の基板断面図と電子輸送特性を測定するセットアップの模式図である。作製はクリーンルーム環境下で行い、グラフェンは電子線リソグラフィと酸素プラズマエッチングによってホールバネ形状に加工した。作製した試料は低温測定用のチップキャリアに装着し、ロックインアンプを用いて電流値 1 nA – 10 nA で四端子測定を行った。

図 2(b)は作製した素子の光学顕微鏡写真である。シリコン酸化膜/シリコン基板上に貼り付けた数層からなるグラフェンをグラファイト基板とし、測定ではバックゲート電極 (V_g)として用いる。そして基板全面に酸化イットリウムが堆積しており、グラファイト部分に重なるよう転写装置を用いて単層グラフェンを貼り付けている。酸化イットリウムの膜厚は 7 nm である。グラフェンとコンタクトには Ti/Au 電極を使用した。

温度 5 K においてホール効果測定を行った。図 3(a)は磁場 6 T における素子のホール抵抗 (R_{xy})のゲート電圧依存性、図 3(b)は同様に磁

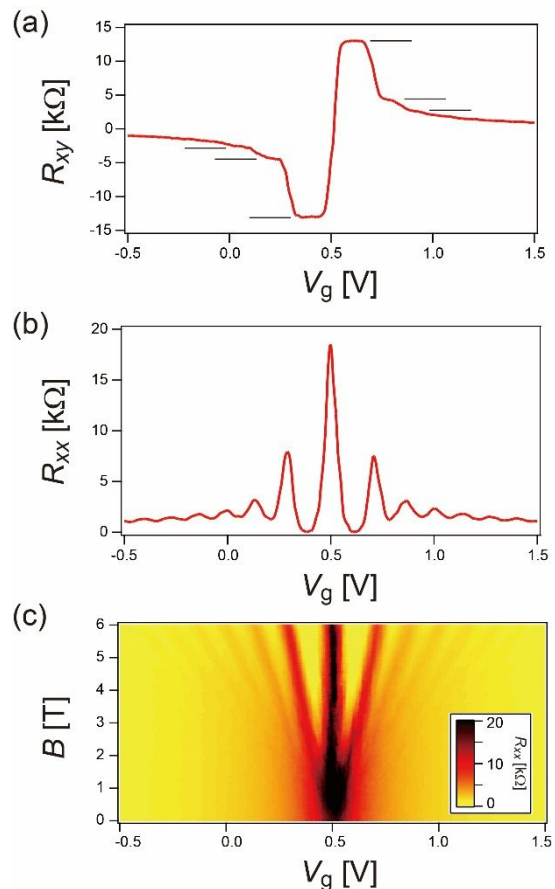


図 3: 酸化イットリウム/グラファイト基板上の単層グラフェンの電子輸送特性。測定温度 $T = 5$ K. (a) $B = 6$ T におけるホール抵抗 (R_{xy})のゲート電圧依存性。単層グラフェン特有の量子化プラトーが観測されている。(b) $B = 6$ T における縦抵抗 (R_{xx})のゲート電圧依存性。(c) 縦抵抗の磁場依存性。

場 6 T における縦抵抗 (R_{xx})のゲート電圧依存性、図 3(c)は縦抵抗の磁場依存性をゲート電圧の関数としてマッピングしたものである。単層グラフェンの量子ホール効果では、 $R_{xy}^{-1} = \pm 4(n + 1/2)e^2/h$, ($n = 0, 1, 2, \dots$: ランダウ準位の指数) においてプラトーが生じる。ここで e は素電荷、 h はプランク定数である。実験では、 $n = 0, 1, 2$ までのプラトーが明瞭に観測され、単層グラフェン特有の量子ホール効果が確認された。またゲート電圧の掃引方向を正から負、また負から正に変えた場合にもほとんどヒステリシスは観測されなかった。

ホール効果測定の結果の解析から、ゲート電圧 1 V でキャリア密度 $3.5 \times 10^{12} / \text{cm}^2$ の変調が得られ、移動度は電子、ホールともにキャリア密度 $1 \times 10^{12} / \text{cm}^2$ において約 5,000 cm^2/Vs という値が得られた。このキャリア密度の変調は通常よく使われる 90 nm 膜厚のシリコン酸化膜/シリコン基板のバックゲート電圧 1V で得られる変調 $2.4 \times 10^{11} / \text{cm}^2$ よりも一桁以上大きい値であり、酸化イットリウム絶縁膜が通常よく使われるシリコン酸化

膜よりも薄いことに起因している。これは酸化イットリウム/グラファイト基板を用いることによって、原子膜デバイスへの高効率なキャリア密度の変調が可能であることを示すものである。

さらに、本基板上の単一原子層材料を微細加工し、その上からさらに酸化イットリウムを 1 nm 程度堆積して、トンネル膜として用いる量子デバイスの作製を試みた。その結果、高精度での微細加工と電極形成、およびトンネル接合の形成に成功した。これらの結果から、酸化イットリウム/グラファイト基板が、原子膜デバイス応用に向けて有用な基板であることが示されたと考えられる。

しかし、今回作製された基板では、計算される酸化イットリウムの誘電率は 5.3 で期待される値よりも低い値となった。これは酸化イットリウムの膜質を良くすることで改善できると考えている。また、移動度は酸化イットリウムをトップゲートとして用いた報告の値と同程度であり、さらなる移動度の向上のために、酸化イットリウムでパッシベーションすることによりグラフェンを清浄に保つ素子構造を検討する必要がある。今後、酸化イットリウムの膜質の改善やデバイス構造の最適化を探索、さらに MoS₂ などの層状遷移金属ダイカルコゲナイドの原子膜といった様々な物性を持つ 2 次元原子膜材料への適用とデバイス動作実証を行っ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)

[学会発表](計 3 件)

1. 小松克伊, 渡辺英一郎, 津谷大樹, 森山悟士: “酸化イットリウム/グラファイト基板上のグラフェンの輸送特性”, 日本物理学会第 70 回年次大会, 東京, 3/21-3/24, 2015.

2. S. Moriyama, M. Yoshihira, Y. Morita, H. Guerin, Y. Ochi, H. Kura, T. Ogawa, T. Sato and H. Maki: “Quantum-dot behavior in ultra-thin gold nanowires”, MANA International Symposium 2015, Tsukuba, Japan, 11-13, March, 2015.

3. 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.

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