

科学研究費助成事業 研究成果報告書

平成 27 年 6 月 11 日現在

機関番号：12601

研究種目：研究活動スタート支援

研究期間：2014～2014

課題番号：26886002

研究課題名(和文)サイクロトロン共鳴を利用したグラフェン量子ドットによる単一光子検出

研究課題名(英文)THz single photon detector based on cyclotron resonance in graphene quantum dots

研究代表者

荒井 美穂 (Arai, Miho)

東京大学・生産技術研究所・特任研究員

研究者番号：20738588

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 1,500,000円

研究成果の概要(和文)：今年度行った研究は、(1)グラフェン微細構造を作製するため、AFM(Atomic Force Microscope)を使用した陽極酸化リソグラフィーの安定化、酸化領域における化学的性質の解明および微細構造の作製、(2)トッブゲート付きh-BN(六方晶窒化ホウ素)/グラフェン/h-BN接合に赤外光を照射しサイクロトロン共鳴に伴う光起電力効果のメカニズムの解明である。

研究成果の概要(英文)：I researched the two themes; (1) we improved AFM (Atomic Force Microscope) lithography conditions, studied the chemical properties of oxidized area in graphene and fabricated graphene nano-structures by AFM lithography. (2) We fabricated the h-BN/Graphene/h-BN heterostructure and demonstrated mid-infrared photo detector with cyclotron resonance.

研究分野：ナノ材料科学

キーワード：グラフェン 量子ドット テラヘルツ 単一光子検出 サイクロトロン共鳴

1. 研究開始当初の背景

(1)周波数 0.1 ~ 10 THz 帯 (THz 光) の光はエネルギーが 40 meV 以下であることから検出が困難である。一方、この周波数帯域は分子の軌道・回転、半導体微細構造の量子化準位のエネルギースペクトルと対応しているため、高いパフォーマンスを持った THz 光検出器の開発は生体検査や食品検査への活用など、我々の社会生活において必須となっている。

(2)超高感度 THz 光検出器としては、GaAs 系半導体量子ドットによる 0.5THz の単一光子検出が実現されている [O. Astafiev, et. al. Appl. Phys. Lett. 80, 4250 (2002)]。しかし半導体量子ドットを基礎とした光検出器には、100 mK という低温下のみで動作する、検出可能な光の波長領域が狭い、という弱点があり実用化には程遠いパフォーマンスとなっている。

(3)グラフェンを使用した紫外光から THz 光の検出の研究が盛んに行われている。グラフェンのバンド構造はバンドギャップが無く、線形分散を持つため、光の吸収率が波長に依存しないという特徴を持ち、ブロードバンドな光検出器の作製が可能である。このブロードバンド検出には THz 帯の波長が含まれるのも大きな特徴と言える。また室温における移動度が高く、高速検出が可能である。さらにグラフェンナノ構造 (量子ドットや狭帯構造) において室温動作が期待できるため、単一光子レベルの超高感度検出の実用化が可能である。一方で、THz 帯における光検出実験として他研究グループにおいて素晴らしい成果が得られているが [M. Mittendorff, et. al. Appl. Phys. Lett. 103, 02113 (2013)]、単一光子検出までに至った研究は未だに存在しない。

(4)グラフェンによる THz 帯単一光子検出には、グラフェンから量子ドットを作製する必要がある。グラフェン量子ドットの作製方法は、酸素プラズマエッチングによってグラフェンを量子ドット構造に切り取る方法が主である。しかし、この方法ではエッジのラフネス、表面のダメージ入などの問題から、グラフェン本来の高移動度という特性が失われてしまっている [S. Engels, et. al. Appl. Phys. Lett. 103, 073113 (2013)]。そのため、高移動度グラフェン量子ドット作製に向け新たなナノ構造作製方法を確立することが急務となっている。

(5)我々は超高移動度グラフェン/h-BN (六方晶窒化ホウ素) に強磁場を印加し、中赤外光 (波長 10.7 μm) を照射したところ、サイクロトロン吸収 ($n = -1, 0, 1$) に起因する光起電力効果を観測した [S. Masubuchi, et. al. Phys. Rev. B 88, 121402 (2012)]. 150

K 以上という実用的な温度領域において赤外光検出を実現している。また、低磁場領域において $n = -2, -1, 2$ という、ホールランダウ準位と電子のランダウ準位の間の遷移による光応答が観測されている。これらの半導体二次元電子系とは大きく異なる結果となったのは、グラフェンの特異な電子物性から起因しており、具体的には () 室温で量子ホール効果が観測可能である、() ランダウ準位間隔が $1/|n|$ に比例すること、() 光吸収に伴うキャリアのエネルギー準位間遷移の選択側が $|n| = \pm 1$ であるというグラフェン特有の性質のためである。このようにサイクロトロン共鳴を利用したグラフェン光検出器が広い波長領域に対応可能であることを示唆する結果が得られているが、光起電力が生じるメカニズムは解明されていない。

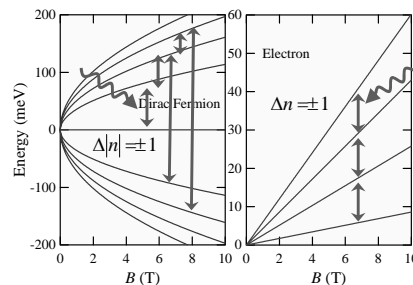


図1 (左) グラフェンのランダウ準位、(右) 二次元電子系のランダウ準位。

2. 研究の目的

本研究ではまず () 品質の高いグラフェンナノ構造作製技術を確立すること、() サイクロトロン共鳴における光起電力効果のメカニズムを解明することである。() AFM (原子間力顕微鏡: Atomic Force Microscope) による陽極酸化法使いグラフェンナノリボンを作製しその電気伝導特性の評価、チャンネル幅の狭窄化による電流の ON/OFF の観測を目指した。() トップゲート付きホールバー素子の作製しその光応答を観測する。またトップゲートに印加する電圧を変調することで、エッジチャンネルの本数また流れる電流の向きを変え、それに伴う光応答の変化から光起電力効果のメカニズムの解明を目指した。

3. 研究の方法

() AFM 陽極酸化法とは、カンチレバーと試料の間に電圧を印加し、大気中の水を電気分解、試料の表面を酸化する方法である。安定した酸化を実現するため、湿度を自作の加湿器とプログラムによって 70% 前後に制御した。また、AFM 陽極酸化を行う前にグラフェンの表面に付着した不純物を除去するためカンチレバーによるメカニカルクリーニングを行った。(a) 様々なカンチレバー印加電圧によって作製した酸化グラフェンに結合している酸素原子量を、オージェ電子分光法によって評価した。(b) 長方形型のグ

ラフェンフレークの幅方向から、AFM 陽極酸化法によって酸化してゆき、10 nm 程度の幅のみ酸化せずグラフェン狭窄構造を作製した。低温において、電流のバックゲート電圧依存性を測定した。

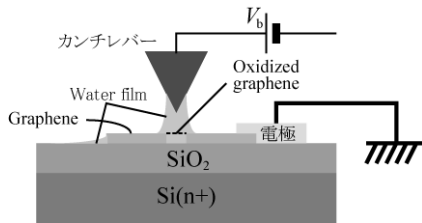


図 2 AFM 陽極酸化法の模式図。

() 原子層物質 stamping 法によって h-BN/Graphene/h-BN の積層構造を作製し高移動度グラフェンホール素子を作製した。電子線蒸着によってトップゲートを付与した。低温において CO₂ レーザ 光を照射し、グラフェンに発生する電圧の変化、光応答を観測した。また光応答のトップゲート・バックゲート電圧依存性を調べた。

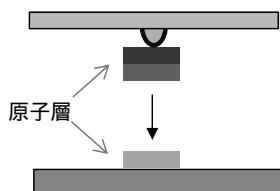


図 3 原子層 stamping 法の模式図。

4. 研究成果

(- a) 様々なカンチレバー印加電圧 (0 V ~ -12 V) によって、グラフェン表面を正方形型に酸化した。オージェ電子分光により酸化した領域の酸素原子量を測定したところ、カンチレバー印加電圧が -6 V 以上からグラフェンの酸化が始まることが分かった。また、印加電圧が上がるにつれ酸素原子量が増加することが分かった。これによってカンチレバー印加電圧を変調することによって、酸化グラフェンの酸化量を制御することが可能であることが示された。

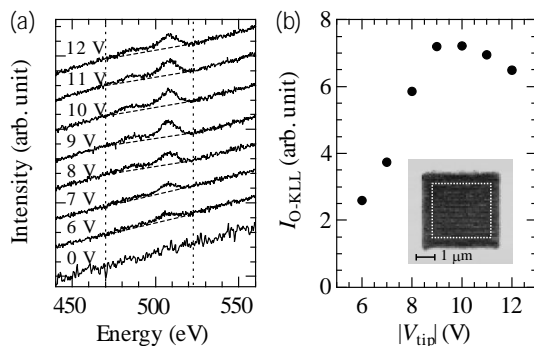


図 4 (a) AFM 陽極酸化によって作製した酸化グラフェンのオージェ電子分光スペクトル。O-KLL 遷移である 510 eV にピークが観測された。(b) (a) のスペクトルからバックグラウンドを差し引き、470-523 eV 間で積分した値のカンチレバー印加電圧依存性。挿入図は作製した酸化グラフェンの摩擦像。

(- b) 長方形型のグラフェンフレークの幅方向から、AFM 陽極酸化法によって酸化してゆき、ある一定の長さ W_{off} だけ電圧の印加を止め、また電圧を印加するというプロセスによってグラフェン狭窄構造を作製した。 W_{off} を減少させることで 10 nm という現時点で一番細い幅を持つ、グラフェン狭窄構造の作製に成功した。この結果より AFM 陽極酸化を使用した高い分解能を持つリソグラフィが可能であることが示された。また低温における電流値のバックゲート電圧依存性を測定したところ、ディラック点近傍において電流値がゼロになるトランスポートギャップを観測した。これは、グラフェン狭窄構造によって電流の ON/OFF 制御が可能であり、AFM 陽極酸化法によってグラフェン量子ドットの作製が可能であることを示している。

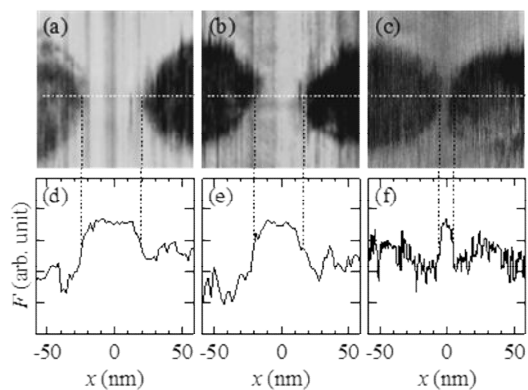


図 5 (a)-(c) AFM 陽極酸化によって作製した幅 45, 35, 10 nm のグラフェン狭窄構造の摩擦像 (左から)。 (d)-(f) 白点線における摩擦像のプロファイル。

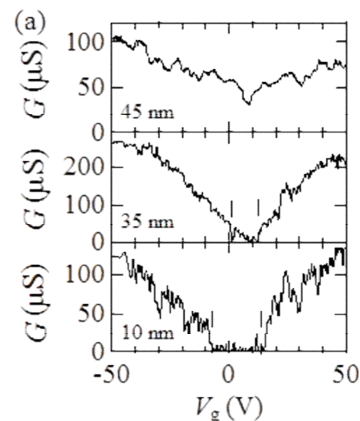


図 6 (a)-(c) 各幅のグラフェン狭窄構造のコンダクタンスバックゲート電圧依存性。10 nm の幅を持つグラフェン狭窄構造では、ディラック点において電流値がゼロになるトランスポートギャップが観測されている。

() トップゲートを付与しているためグラフェン内で空乏層の無い、npn 接合を実現することができる。強磁場を印加した際、各接合界面ではエッジチャネルの散乱や反射が生じ、磁場、バックゲートおよびトップゲート電圧によって電気抵抗値が変化する。低温

においてトップゲートとバックゲート電圧を変化させながら CO₂ レーザ 光(波長 10.7 μm) をホールバ素子に照射したところ、サイクロトロン共鳴による光起電力効果と、またサイクロトロン共鳴では説明できない抵抗値の増大が観測された。この結果より、サイクロトロン共鳴による光起電力効果はエッジチャンネルの伝導特性が関与していることが示唆された。

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)

Miho Arai, Satoru Masubuchi, Kenji Nose, Yoshitaka Mitsuda, and Tomoki Machida, "Fabrication of 10-nm-scale nanoconstrictions in graphene using atomic force microscopy-based local anodic oxidation lithography", Japanese Journal of Applied Physics, 査読有, Vol. 54, 2015, pp. 04DJ06-1-4
DOI:10.7567/JJAP.54.04DJ06

〔学会発表〕(計 1 件)

Miho Arai, Satoru Masubuchi, Kenji Nose, Yoshitaka Mitsuda, and Tomoki Machida, "Fabrication of 10-nm-scale nanoconstrictions in graphene using atomic force microscopy-based local anodic oxidation lithography", 2014 International Conference on Solid State Devices and Materials, September 8-11, 2014, Tsukuba, Japan

〔図書〕(計 0 件)

〔産業財産権〕

出願状況 (計 0 件)

名称：
発明者：
権利者：
種類：
番号：
出願年月日：
国内外の別：

取得状況 (計 0 件)

名称：
発明者：
権利者：
種類：
番号：
出願年月日：
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

荒井 美穂 (ARAI, Miho)
東京大学・生産技術研究所・特任研究員
研究者番号：20738588

(2) 研究分担者

なし (None)

研究者番号：

(3) 連携研究者

なし (None)

研究者番号：