

IX-5. 低温物性グループ

教授	大塚洋一
准教授	神田晶申
助教	森下将史
大学院生	友利ひかり (数理工質科学研究科博士課程2年)、 田邊真一 (同博士課程 (社会人早期修了プログラム)、NTT 物性科学基礎研) 幸坂健史、貫井洋佑、松下慎平 (同修士課程2年) 稲垣匠哉、大賀和人、軽部大雅、仁平慎太郎、廣瀬桃子 (同修士課程1年)
卒業研究	片倉健太 (物理学類4年)

低温物性実験グループでは、主に1K以下の極低温領域を舞台として、グラフェンや単分子架橋系などのナノあるいはメゾスコピックな導体系の電気伝導、微小ジョセフソン接合を利用した局所磁気計測および吸着ヘリウム薄膜の研究を行っている。

【1】グラフェンの電気伝導 (友利、貫井、仁平、片倉、神田)

(1) グラフェンへの局所歪み導入による電気伝導の変調 (友利、神田)

グラフェンは、格子歪みによってゲージ場が生成するという特殊な性質を持つ。これをうまく利用すると伝導ギャップを生成することも可能であり、グラフェンを用いたエレクトロニクス創成のためのブレークスルーになる可能性がある。我々は、グラフェンと基板の間にレジストでできたナノ構造を挿入することにより、グラフェンに任意のパターンの局所歪みを導入することに成功した。顕微鏡分光における2Dバンドのレッドシフトから歪みの空間分布を推定した。この方法を用いて、伝導ギャップが生成すると理論予測されている局所1次元歪みをグラフェンに導入し (図1)、伝導測定を行った。その結果、伝導ギャップの生成を示唆するデータが得られたが、電気伝導率はゼロにはならなかった。その原因として、平均自由行程内における歪みの変化量が小さいことが考えられる。すなわち、伝導ギャップの生成には、平均自由行程を伸ばすか歪みの空間変化量を大きくする必要がある。

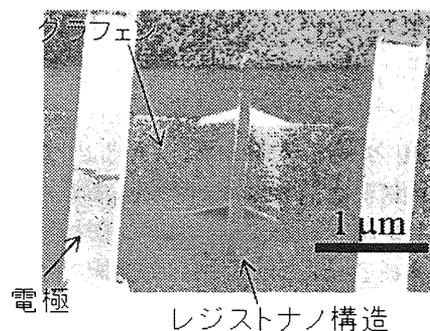


図1: レジストナノ構造を用いたグラフェンへの格子歪みの導入

(2) 非接触トップゲートを用いた多層グラフェンの上面/下面移動度の評価 (貫井、神田)

グラフェンは20万 cm^2/Vs を超える高移動度を實現できる電子材料として注目を集めているが、通常良く用いられるSi/SiO₂基板上に置かれたグラフェンでは移動度は1万 cm^2/Vs 前後まで低下する。移動度低下の原因としては、グラフェン下面での基板との接触、グラフェン上面にあるレジスト等の付着物・吸着分子の影響やフォノン散乱等が挙げられるが、いずれが主要因であるかを直接的に示した実験はいまだ存在しない。我々は、移動度に対するグラフェン上面と下面からの影響を分離して評価することを目的として、Si/SiO₂基板上に形成された多層グラフェン素子に、非接触トップゲートを形成し、室温および低温において、コンダクタンスのトップゲート電圧、バックゲート電圧依存性を測定した。これより、簡易なモデルを用いて上面/下面移動度を評価した。その結果、十分に厚い試料では、上面移動度が下面移動度よりも5倍程度大きくなることを見出した。

これは SiO₂ がグラフェンの移動度を低下させる主要因であることを示唆している。さらに低温において測定したところ、上面・下面移動度ともに温度の低下とともに増加するものの、その比は、十分に厚い多層グラフェンでは 4 K においても 4 倍程度あることが分かった。これより、現在よく作製されている SiO₂ 上のグラフェン FET（電界効果トランジスタ）では、SiO₂ 上にある荷電不純物によるクーロン散乱が移動度を低減させる主要因であることが明らかとなった。

(3) SiO₂/Si 基板上へのグラフェンの直接成長（片倉、神田）

グラフェンを合成する有力な方法の一つに、金属触媒を用いた化学気相成長法 (CVD) がある。従来の CVD 成長法では、グラフェンは触媒金属上にできるので、デバイスに使用する際には、触媒を除去し、絶縁体基板上にグラフェンを転写するという複雑なプロセスを経る必要があった。これを簡略化する方法として、絶縁体基板上にグラフェンを直接 CVD 成長する方法が近年提案され、注目を集めている。我々は、触媒金属の種類や成長条件を調整し、ラマン D バンド強度が大幅に減少し、欠陥の生成が抑制されたグラフェンの合成条件を見出すことに成功した。

(4) h-BN 上グラフェンの電気伝導の測定（仁平、神田）

グラフェンは、移動度が高くスピン軌道相互作用が小さいのでスピン緩和長が長いと考えられ、スピントロニクス分野への応用が期待されている。スピン緩和長とは、注入したスピン偏極電流にスピンの偏りがなくなるまでの距離を言い、グラフェンに対する理論計算では荷電不純物やフォノンの影響を考慮しても数 mm に達すると予測されている。しかし、実験的に求められたスピン緩和長は数 μm にとどまっている。これは理論では考慮されていないスピン緩和機構があることを示す。本研究では、SiO₂ 基板上のグラフェンに存在するリップル（凹凸）に起因するスピン軌道相互作用に着目し、実験的にリップルを除去できることが知られている h-BN を基板として用いることを考えた。そこでまず、h-BN 上にグラフェンを転写して電極を接続し、その移動度やスピン緩和長を測定した。その結果、低温で移動度はおよそ $2 \text{万 cm}^2/\text{Vs}$ となったが、この値は報告されている値の数分の 1 である。この原因を調べるために AFM でグラフェンを観察したところ、グラフェン表面に高さ数 nm から十数 nm、幅数百 nm の凹凸がみられた。今後はこの凹凸を除去する方法を探り、スピン信号測定によるスピン緩和長の評価を目指す。

本研究は、物質材料研究機構の塚越一仁 MANA 主任研究者、小松克伊ポスドク研究員（パイ電子エレクトロニクス研究グループ）の指導のもと行われた。

(5) SiC(0001) 上 1 層及び 2 層グラフェンの電気伝導特性（田邊、神田、大塚）

社会人早期修了プログラムにより NTT 物性基礎研の田邊真一氏が入学し学位論文をとりまとめた。広く用いられているグラファイトの剥離によって得られるグラフェンは高品質であるものの、その大きさは高々数百 μm 平方であり、応用において今後の研究を加速するためには、高品質かつ大面積な少数層グラフェンを得る手法の開発が不可欠である。田邊は、SiC 基板を熱処理することで得られる 4 種類の大量面積グラファイト薄膜の伝導特性を総合的に調べ、剥離法や CVD 法によるグラフェンと比較・検討した。

【 2 】 スピンホール効果の磁氣的観測（松下、大塚）

スピン・軌道相互作用によって生じるスピンホール効果はスピン関連伝導において最も基本的な現象の一つであるがまだその定量的な理解には至っていない。これまで金属におけるスピンホール効果の研究では、強磁性金属からの電流注入やスピンポンピングによる注入されたスピン流が引き起こす逆スピンホール効果による起電力測定が用いられてきた。我々是非磁性金属に電流を流した

時スピンホール効果によって細線エッジ部分に生じるスピンの蓄積を磁氣的に検出するという実験を行った。試料はスピン-軌道相互作用の強い白金細線であり、細線エッジをまたぐように配置したマイクロSQUIDによって局所磁場を測定する。SQUIDで補足された磁束から白金を流れる電流による寄与を差し引くことによって蓄積スピンによる寄与を算出した。これから概算された蓄積スピン量は逆スピン効果の実験から評価したものと大きくは変わらない。なお、本研究は齋藤政通氏（現：アルバックライオ（株））との共同研究である。また試料作製にあたり山口尚秀氏（物質・材料研究機構）の協力をいただいた。

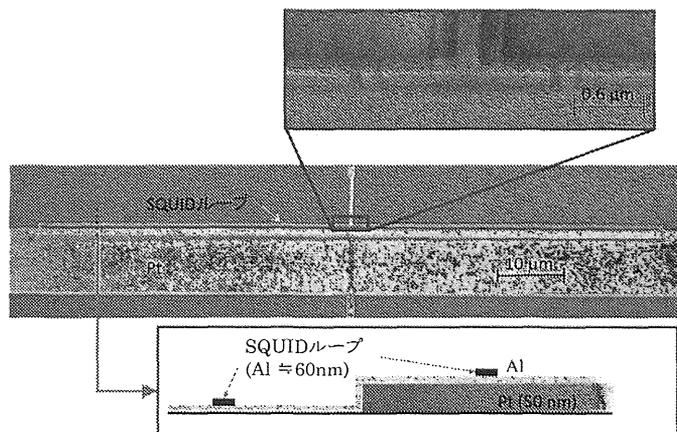


図2：エッジ蓄積磁化測定用試料の構造

【3】単分子伝導の研究：C₆₀分子架橋の電気伝導（幸坂、大塚）

機械破断接合 MBJ を用いた単分子架橋においては分子と電極金属の結合部位の詳細な構造を制御することは困難であり、多数の接合に関する電気伝導測定の結果を統計的に解析する方法がとられてきた。架橋分子の電子状態を静電的に制御する単分子トランジスタ構造が実現できれば測定の自由度が増え、より詳細な研究が可能となる。我々は2層構造の金属細線に機械破断 (MBJ) 法を適用するという方法と絶縁されたゲート電極上で金属細線に電界移動 (Electromigration) を施すという二つの方法によって単分子トランジスタの実現を目指した。架橋分子は C₆₀ 分子である。前者では Al/AlO_x/C₆₀・Al という積層構造を持つ MBJ 用細線試料をまず作製し、MBJ によって上層電極に Al-C₆₀-Al 架橋を実現しつつ、下層 Al をゲート電極に用いるというアイデアである。当初上下層間の電氣的リークに悩まされたが、プロセスを工夫することによって十分な絶縁性を実現できた。低温での MBJ 実験で、層間の絶縁を保ったまま上下層それぞれについて破断・再接合できることを確認した。ただし、破断・再接合の繰り返し可能回数は1層試料の場合より格段に少なく、容易に非可逆的な変形が生じてしまう。このため得られた接合数は少なく、明瞭なゲート依存性を示す接合を得るにはいならなかった。後者では高ドーパ Si ウェハ基板上に金細線を作製し、C₆₀ 希薄溶液を滴下・乾燥させた。金細線に大電流を流すと電解移動によって金原子が移動し、最終的には細線が破断する。細線の電気抵抗をモニターしながら電流を徐々にあげることによって量子抵抗以上の抵抗を持つ金細線を作り、Si 基板をゲート電極としてその電流・電圧 (I-V) 特性、ゲート変調特性を調べた。低温での I-V 特性は多くの場合非線形であり、解析によって単トンネル接合とクーロンブロッケードを伴う2重トンネル接合とに分類できた。しかし、いずれの場合もゲート電圧による明瞭な変調は見られなかった。ソース、ドレイン電極による遮蔽を減らし、ゲート電極と架橋 C₆₀ 分子の間の静電容量を増やす対策が必要である。

【4】鉄系超伝導体 FeSe_{1-x}Te_x のポイントコンタクトスペクトロスコピー（稲垣、大塚）

鉄系超伝導体の超伝導状態は複数のオーダーパラメータを持つとともに、電子ポケットと正孔ポケットのオーダーパラメータの符号は互いに異なるとされる。しかし、実験的な検証は未だ十分ではない。前年までに鉄系超伝導体 FeSe_{1-x}Te_x に対して Au あるいは Pt 探針を用いた S-N ポイントコンタクトスペクトロスコピーの測定を行い、少なくとも3つの超伝導ギャップがあることを明らか

にした。今年度は対向電極も超伝導針としたS-S'ポイントコンタクトスペクトロスコピーを行った。理論によればこのようなナノコンタクトでは超伝導電流が流れると共に多重アンドレーエフ反射による非線形なI-V特性が期待される。NbおよびPbを探針として、液体ヘリウム温度で様々なコンタクトのI-V測定を行ったがこれまでの所多重アンドレーエフ反射を反映したと思われる構造は得られていない。また1kΩ以下の低抵抗接合でも電圧ゼロの超伝導電流は見られていない。Nb-PbのS-S'ポイントコンタクトでは理論から期待される構造が見られていることから、鉄系試料表面の汚れやダメージなどが原因であると考えられる。なお、本研究で用いたFeSe_{1-x}Te_xは小野田研究室で作製された結晶試料であり、小野田雅重准教授に感謝する。

【5】トンネル接合型マイクロSQUID (大賀、廣瀬、大塚)

過去5年ほど微小トンネル接合型マイクロSQUIDの研究を行っており、作製したSQUIDは上記【2】の研究などに利用している。さらに応用範囲を広げることを目的として、今年度は以下の開発を進めた。

(1) SQUIDをセンサーとしたプローブ顕微鏡の開発 (大賀)

走査型SQUID顕微鏡は既に複数の開発報告があるが、マイクロSQUIDを用いることによって1T程度までの高磁場中でのイメージングが可能な装置の開発を目指す。まずSQUIDに対してサンプルを動かす低温XY可動ステージを作製した。このようなステージにはピエゾ素子を用いることが一般的であるが、我々は加・減圧によるベローズの伸縮を駆動力としたステージを試みることで、設計を行った。

(2) Nbを用いたトンネル接合型マイクロSQUIDの開発 (廣瀬)

高温・高磁場環境での計測を行うために、これまで用いてきたAlより超伝導転移温度の高いNbを使ったトンネル接合型マイクロSQUIDの作製を目指した。Nb薄膜細線の超伝導性の劣化を防ぐために、PESを用いた3層レジスト法を採用した。これまでに約5Kで超伝導転移する細線を得ている。トンネル障壁はスパッタアルミナ薄膜を利用する予定であり、Nb蒸着とAl₂O₃のArスパッタを連続真空中で行う装置を作製した。

【6】グラファイト上吸着ヘリウム4薄膜の固化 (森下)

原子レベルで平坦なグラファイト表面に、低温で物理吸着したヘリウム薄膜は均一性が良く、層構造が良く定義されており、理想的な2次元系を与える。フェルミ粒子であるヘリウム3(³He)の場合、核スピン1/2をもち、この固体は2次元量子スピン系のモデル物質を与える。一方、ボーズ粒子であるヘリウム4(⁴He)では、基底状態として存在する空孔子(零点空孔子)がバンド構造をとることに由来する固体の超流動の出現が期待されている。これらの系を、100μK以下に至る超低温度までの熱容量・熱伝導測定を中心に観測し、研究を行っている。

吸着第2原子層に着目すると、³Heも⁴Heも面密度の増大とともに流体相から第1原子層に対して4/7の面密度をもつ整合な固相、所謂「4/7相」に移行すると考えられている。⁴He薄膜においては、4/7相近傍の面密度領域で、力学応答測定により超流動的な振る舞いも観測され、固体の超流動が実現している可能性が議論されている。しかし、最近の理論計算により、⁴He薄膜における4/7相の存在に疑念が生じており、固相なのか流体相なのか状態を実験面から決定する必要がある。

純粋な⁴Heは磁化をもたず、熱容量も小さいため、観測から状態を決定することは困難であるため、昨年度、数%程度の³Heを混入し、その熱容量を測定することにより状態の決定を試みた。薄膜が流体相であれば³Heはフェルミガスとして振る舞い、その熱容量は低温では温度に比例し、高温では古典ガスの値に近づくことが期待される。一方、固相では、³Heは局在し、熱容量は消失し、流体とは明らかに異

なる振る舞いをするため、状態について決定的な情報が期待できる。実際に測定を行ってみると、4/7相の面密度で熱容量は劇的に減少するものの、完全に消失はしない。これは、 ^3He - ^4He 混合薄膜が ^3He 濃厚相と ^4He 濃厚相に相分離し、 ^3He 濃厚相のみが固化したものと理解できる。これは、 ^4He 濃厚相は固化していないことを示し、純粋は ^4He も固化しないことを示唆していた。

しかしながら、完全に消失せずに残った熱容量について、別の可能性も考えられる。即ち、相分離した混合薄膜は、昇温とともに混合比が変化する可能性である。この場合、混合が熱容量の寄与を与えるため、消失せずに残った熱容量が混合に由来している可能性が残される。そこで、混合する ^3He の量を相分離が生じない程度に一桁以上減らして同様の測定を行った。この測定は、熱容量が非常に小さくなり、フォノン由来の熱容量すらも差し引く必要があり、非常に精密な測定が要求される。結果は面密度を変えても4/7相の面密度の近傍で熱容量は変化せず、 ^4He 薄膜は4/7相には固化しないことが非常に強く示唆される。超流動体的な振る舞いは固体に由来するものでないことは明らかとなったが、流体相に由来しても reentrant な振る舞いを説明することができない。また、4/7相存在の証拠とされていた数K領域での熱容量ピークの起源も原因が不明になった。

< 学位論文 >

田邊真一 : Electronic transport properties of monolayer and bilayer graphene on SiC(0001) (数
理物質科学研究科, 博士論文、2013年3月) (早期修了プログラム)

幸坂健史 : C60 単分子トランジスタの作製と単分子接合系の電気伝導の研究 (数理物質科学研究科, 修
士論文、2013年3月)

貫井洋祐 : 酸化シリコン上に置かれた多層グラフェンの移動度不均一性 (数理物質科学研究科, 修士論
文、2013年3月)

松下慎平 : 白金におけるスピンホール効果によるエッジ磁化の磁氣的計測 (数理物質科学研究科, 修士
論文、2013年3月)

片倉健太 : シリコン基板上へのグラフェンの直接成長 (物理学類、卒業論文)

< 論文 >

1. M. Hayashi, H. Yoshioka and A. Kanda, Supercurrent through Graphene: Effects of Vanishing Density of States, *J. Phys.: Conf. Ser.* 400, 022024 (2012).
2. H. Ito, Y. Shibata, S. Mamyoda, S. Kashiwaya, M. Yamaguchi, T. Akazaki, H. Tamura, Y. Ootuka and S. Nomura, Imaging of quantum Hall edge states under quasiresonant excitation by a near-field scanning optical microscope, to appear in *J. Appl. Phys.*
3. M. Morishita, Heat Capacity of Dilute ^3He - ^4He Films on Graphite, *J. Low Temp. Phys.* (in press).

< 解説 >

1. A. Kanda, Experimental approaches to graphene electron transport for device applications, in “Physics and Chemistry of Graphene: Nanographene to Graphene” (edited by T. Enoki), Chapter 3, pp. 89-205, Pan Stanford Publishing (2013) (ISBN-13 978-981-4241-48-9) . (117 pages).
2. K. Tsukagoshi, H. Miyazaki, S.-L. Li, A. Kumatani, H. Hiura, A. Kanda, Gate-Voltage Modulation in Graphene, in “Graphene and its Fascinating Attributes” (edited by S. K. Pati, T. Enoki, & C. N. R. Rao), Chapter 11, pp. 179-188, World Scientific Publishing (2012). (ISBN 978-981-4329-35-4). (10 pages)

<講演>

国際会議

1. H. Tomori, H. Karube, Y. Ootuka, M. Hayashi, H. Yoshioka, A. Kanda, Introducing Designed Local Strain to Graphene, Graphene Week 2012, Delft University of Technology, Jun. 4-8, 2012.
2. A. Kanda, H. Tomori, H. Karube, Y. Ootuka, M. Hayashi, and H. Yoshioka, Electron transport in graphene with one-dimensional local strain, Graphene Week 2012, Delft University of Technology, Jun. 4-8, 2012.
3. H. Tomori, H. Karube, Y. Ootuka and A. Kanda, Electron Transport in Graphene with One-dimensional Local Strain, 2012 International Conference on Solid State Devices and Materials (SSDM 2012), Kyoto, Sep. 27, 2012.
4. H. Tomori, H. Karube, Y. Ootuka, and A. Kanda, Electron Transport in Graphene under Local Strain, 2012 Workshop on Innovative Nanoscale Devices and Systems (WINDS), Hawaii, Dec. 6, 2012.
5. H. Tomori, Y. Nukui, K. Katakura, Y. Ootuka, and A. Kanda, Strain Engineering of Graphene through a Nanostructured Substrate, The 4th Tsukuba-Hsinchu Joint Symposium on Interdisciplinary Nano-Science and Technology, Tsukuba, Dec. 17-18, 2012.
6. 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, 2013 APS March Meeting, Baltimore, Mar. 18-22, 2013
7. H. Tomori, H. Karube, Y. Ootuka, A. Kanda, Electron transport measurement in locally strained graphene, 2013 APS March Meeting, Baltimore, Mar. 18-22, 2013.
8. S. Mamyoda, H. Ito, Y. Shibata, S. Kashiwaya, M. Yamaguchi, T. Akazaki, H. Tamura, Y. Ootuka and S. Nomura, High resolution spatial mapping of quantum Hall edge states by a near-field scanning optical microscope, The Eighth International Nanotechnology Conference on Communications and Cooperation (INC8), AIST (Tsukuba, Japan) 2012.5.8-12.
9. H. Ito, Y. Shibata, S. Mamyoda, S. Kashiwaya, M. Yamaguchi, T. Akazaki, H. Tamura, Y. Ootuka and S. Nomura, Imaging of Quantum Hall Edge States Under Quasiresonant Excitation by a Near-field Scanning Optical Microscope, 31st International Conference on the Physics of Semiconductors (ICPS 2012), ETH Zurich, 2012.7.30-8.3.
10. M. Morishita, Heat Capacity of Dilute ³He-⁴He Films on Graphite, International Symposium on Quantum Fluids and Solids (QFS2012) (Lancaster, August 20, 2012).

国内会議

1. 軽部大雅, 友利ひかり, 貫井洋祐, 仁平慎太郎, 片倉健太, 大塚洋一, 神田晶申, レジストドット列を用いたグラフェンの局所歪み量の評価、第73回応用物理学会学術講演会、愛媛大学、2012年9月11日～14日
2. 友利ひかり, 軽部大雅, 大塚洋一, 神田晶申、1次元局所歪みを導入したグラフェンの電気伝導、第73回応用物理学会学術講演会、愛媛大学、2012年9月11日～14日
3. 軽部大雅, 友利ひかり, 貫井洋祐, 大塚洋一, 神田晶申、グラフェンの非一様歪みの電子顕微鏡像による評価、日本物理学会2012年秋季大会、横浜国立大、2012年9月20日
4. 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、横浜国立大、2012年9月20日
5. 大賀和人, 齋藤政通, 松下慎平, 廣瀬桃子, 大塚洋一、トンネル接合型マイクロ SQUID の広帯域測定、日本物理学会2012年秋季大会、横浜国立大、2012年9月19日

6. 幸坂健史, 大塚洋一, 2層MBJ法による単分子トランジスタの作製、日本物理学会 2012 年秋季大会、横浜国立大、2012 年 9 月 20 日
7. H. Ito, Y. Shibata, S. Mamyoda, S. Kashiwaya, M. Yamaguchi, T. Akazaki, H. Tamura, Y. Ootuka and S. Nomura, Optical excitation energy dependence of high resolution mapping of quantum Hall edge states, IUMRS-ICEM2012(第 22 回日本 MRS 学術シンポジウム), 横浜 (パシフィコ横浜), 2012. 9. 23-28.
8. 伊藤宙陸, 柴田祐輔, 間明田周平, 柏谷聡, 山口真澄, 赤崎達志, 田村浩之, 大塚洋一, 野村晋太郎, 量子ホール端状態における非平衡電子の注入, 第 7 回 D Y C E シンポジウム, 東京大学, 2012. 12. 25-27.
9. 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 回応用物理学会春季学術講演会、神奈川工科大学 (厚木)、2013 年 3 月 27 日~30 日
10. 森下将史, グラファイト上ヘリウム 4 薄膜吸着第 2 原子層の状態、日本物理学会 2012 年秋季大会、横浜国立大、2012 年 9 月 20 日

<受賞>

1. Hikari Tomori: Excellent Poster Award, The 4th Tsukuba-Hsinchu Joint Symposium on Interdisciplinary Nano-Science and Technology (Dec. 16-17, 2012).