

氏名(本籍)	田 <sup>た</sup> 邊 <sup>なべ</sup> 真 <sup>しん</sup> 一 <sup>いち</sup> (鳥取県)			
学位の種類	博士(理学)			
学位記番号	博甲第6384号			
学位授与年月日	平成25年3月25日			
学位授与の要件	学位規則第4条第1項該当			
審査研究科	数理物質科学研究科			
学位論文題目	<b>Electronic transport properties of monolayer and bilayer graphene on SiC (0001)</b> (SiC(0001)上1層及び2層グラフェンの電気伝導特性)			
主査	筑波大学教授	理学博士	大塚 洋 一	
副査	筑波大学教授	理学博士	舩本 泰 章	
副査	筑波大学教授	博士(理学)	守友 浩	
副査	筑波大学教授	工学博士	初貝 安 弘	
副査	筑波大学准教授	博士(理学)	神田 晶 申	

### 論文の内容の要旨

グラフェンは層状物質であるグラファイトの単位層を取り出したものであり、純粋な2次元物質である。グラフェンは長い間理論上のみの研究対象であったが、2004年に Novoselov らがグラファイトのへき開・剥離を繰り返すという方法を考案して以来実験研究が急速に広まり、近年の物性物理学における大きな研究分野となっている。グラフェンが注目を集める理由はこの物質がもつ特異な物性とエレクトロニクス等への応用可能性にある。グラフェンは、価電子帯と伝導帯が点で接する2次元のギャップレス半導体であると共に、その点(Dirac点という)近傍では線形なエネルギー分散関係を持つ。このような線形分散関係は質量ゼロのディラック方程式と同型であり、いわゆる相対論的現象のいくつかをグラフェンで検証することが可能であるとされている。事実これまでに線形分散関係に原因する現象が量子ホール効果などにおいて確認されている。またグラフェンの移動度は理論上室温でSiの100倍以上となると考えられており、高速デバイスのチャンネル材料としても着目されている。さらに単一層グラフェンに加えて、グラフェンが積層した2層グラフェンにおいても新たな物性が期待されている。特に、面直方向に電界を印加することによってバンドギャップを誘起できることから論理デバイスのチャンネル材料としての魅力がある。初期のグラフェン研究においては試料はグラファイトの剥離によって得られていた。このようにして得られるグラフェンは高品質であるが、その大きさは高々数百 $\mu\text{m}$ 平方である。特に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のはほぼ自明なことである。

田邊真一氏は、本論文においてSiC基板を熱処理することで得られる大面積グラファイトに関してその電気伝導特性を研究した。SiC基板を加熱すると、Si原子が昇華し基板表面に過剰に存在する炭素原子によってグラファイト薄膜が成長する。その焼成条件や焼成後の水素処理によって異なる構造を有する4種類のグラフェンを得ることができるが、これら全てについてその伝導特性を調べ、剥離法やCVD法によるグラフェンと比較・検討した。

論文は導入部及び7章からなっており、導入では研究の背景が、第1章ではグラフェンの電気伝導現象に

関するこれまでの研究が理論及び実験がまとめられている。第2章ではグラフェンの成長方法、評価方法、トップゲート構造を有するホール素子型試料の作製方法などが簡潔に記されている。

第3章以下が研究の本体である。3章では、バッファ層を有する一層グラフェン (EMLG) が扱われており、電界効果による電気抵抗の変化やホール効果が調べられている。特に  $T=2\text{K}$  での  $B=6\text{T}$  までのホール効果測定においてホール抵抗の量子化を観測し、その抵抗値が単層グラフェンにおいて期待される値と一致することを観測した。また移動度の温度依存性とキャリア濃度依存性が詳しく調べられている。

第4章では、バッファ層をもたない一層グラフェン (QFMLG) について、同様に量子ホール効果の確認と移動度の温度及びキャリア濃度依存性が調べられている。

第5章ではバッファ層をもつ二層グラフェン (EBLG) についての結果がまとめられ、抵抗率のゲート電圧および温度依存性が提示されている。特に電荷中性点の抵抗率は著しい温度依存性を示し、EBLG がエネルギーギャップをもつと結論している。さらに熱活性型及び variable-range hopping 型の温度特性を仮定した解析によってバンドギャップの大きさは約  $100\text{ meV}$  であると評価した。

第6章ではバッファ層をもたない二層グラフェン (QFBLG) について  $2\text{ K}$  における抵抗率のゲート電圧依存性が示されている。この系は強くホールドープされており、ゲート電圧を加えても電荷中性点を得るには至っていない。移動度はバッファ層のある場合よりもやや高く、シュブニコフ・ド・ハース振動も観測している。

第7章では第3～第6章の結果の総合的な考察が行われている。特にキャリア濃度と移動度の結果は剥離法グラフェンやCVDグラフェンの結果と共に一覧表にまとめられている。ゲート電圧を与えないときのキャリアは、バッファ層をもつグラフェンでは一層、二層とも電子であり、一方バッファ層をもたないグラフェンでは正孔である。またゲート材料として  $\text{SiO}_2/\text{HSQ}$  や  $\text{Al}_2\text{O}_3$  /酸化Alを用いると電子ドープの補償が生じるが、補償の度合いは  $\text{SiO}_2/\text{HSQ}$  の方が強い。移動度については、キャリア密度依存性と温度変化の両面での考察がなされている。低温での移動度のキャリア密度依存性から、移動度の低いQFMLGにおいてはクーロン散乱が支配的であること、一方EMLGではクーロン散乱と共に短距離ポテンシャルによる散乱も重要であることが結論されている。EMLGの移動度に見られる強い温度変化については現象論的な解析を行い、温度変化を特徴付けるエネルギーを得、この原因がバッファ層にあると考察している。2種類の二層グラフェンについては、低エネルギー電子顕微鏡を用いた構造評価との関連づけて移動度の大小が考察されている。

最終第8章では、以上の研究内容が要約され、今後の研究課題が示されている。

## 審査の結果の要旨

本論文において著者は、 $\text{SiC}(0001)$  上に4種類のグラフェン (バッファ層が存在する一層及び二層グラフェン、バッファ層が無い一層及び二層グラフェン) を作製し、それらの電気伝導特性を総合的に調べた。特筆すべき結果を挙げるとすれば、・ゲート構造をもつ一層グラフェンにおいて量子ホール効果を観測し一層グラフェンとしての基本特性を確認したこと、・二層グラフェンにおいてバンドギャップの存在を確認しその評価を行ったこと、・キャリアのドーピングや散乱におけるバッファ層の役割を明らかにしたことなどであり、主要な結果は既に5編の原著論文として公表済みである。 $\text{SiC}(0001)$  上小敷層グラフェンは大面積グラフェンの作製方法の一つとして、特に応用の観点から注目されている物質である。本論文で得られた結果はその伝導特性の基礎を明らかにした研究成果として、当該研究分野に対して大きく寄与するものと判断される。

平成25年2月14日、数理物質科学研究科学学位論文審査委員会において審査委員の全員出席のもと、著者

に論文について説明を求め、関連事項につき質疑応答を行った。その結果、審査委員全員によって、合格と判定された。

上記の論文審査ならびに最終試験の結果に基づき、著者は博士（理学）の学位を受けるに十分な資格を有するものと認める。