

## 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	森下將史
研究員	友利ひかり（科学技術振興機構さきがけ専任研究者）
大学院生	青木 仁、伊藤 優、片倉健太（数理物質科学研究科物理学専攻修士課程 2 年） 田中宏和、平出璃音可（同修士課程 1 年）
卒業研究	柴田倭宏（物理学類 4 年）

低温物性実験グループでは、グラフェンや単分子架橋系などのナノあるいはメソ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。博士課程修了後科研費研究員として在籍していた友利ひかりが、2014 年 10 月に科学技術振興機構さきがけ研究員（研究領域：素材・デバイス・システム融合による革新的ナノエレクトロニクス創成）に採用された。神田准教授が受け入れ教員となり、「ひずみ誘起ゲージ場を用いた単原子層膜の伝導制御とエレクトロニクス応用」を研究テーマとし、引き続き当グループで研究を行うことになった。

### 【1】グラフェンの電気伝導

炭素の 2 次元原子層膜であるグラフェンの基礎物性の解明と、電子デバイス応用のための基盤技術の構築を目的として、以下の研究を行った。

#### (1) グラフェンへの局所ひずみ導入による電気伝導の制御

グラフェンには、格子ひずみによって伝導電子に対する実効的なゲージ場（ベクトルポテンシャル・スカラーポテンシャル）を生じるという特殊な性質がある。これをうまく利用するとグラフェンの電子状態を変調し、伝導ギャップを誘起して電子デバイスに応用することも可能となる。我々はこれまでに、グラフェンと基板の間にレジスト LOR 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制御性よく導入する方法を開発してきた。しかしながら、レジスト LOR のナノ構造形成時の過剰な電子線照射によってグラフェンがダメージを受けていることがラマン分光と電気伝導測定から明らかとなった。そこで今年度は、低電子線量でナノ構造を形成するためのプロセス開発を行い、最終的に、レジスト HSQ (Hydrogen Silsesquioxane) の使用によって従来の 100 分の 1 の電子線量でレジストナノ構造を形成することに成功した。レジストナノ構造形成後には、欠陥の生成に由来するラマン D バンドが見られないことを確認した。今後はこの構造を用いてひずみを導入したグラフェンの電気伝導測定を行い、伝導ギャップの観測を目指す。

## (2) グラフェンへの電極接続の影響の評価とその軽減

グラフェンに電極金属を接続すると、両者の仕事関数の差によって、電極金属からグラフェンにキャリア(電子またはホール)が注入される。その結果、電極直下のグラフェン部分と電極から離れたグラフェン部分のキャリア密度に差が生じる。この電極金属からグラフェンへのキャリアの浸み出しは、見かけの電界効果移動度の大幅な減少をもたらすだけでなく、相対論的超伝導近接効果をはじめとするグラフェン特有の新奇物理現象の実験的検証を困難にしている。

そこで我々は、電極接続による局所キャリアドーピングを軽減することを目的として、グラフェンと電極との界面に多層グラフェン(MLG)を挟み込む手法を開発した。MLGは、他の金属に比べて単層グラフェンとの仕事関数の差が小さく、状態密度も小さいので、キャリア注入を少なくできることが期待される。

実験では、 $\text{SiO}_2/\text{Si}$  基板上に劈開法によって形成した MLG を酸素プラズマエッチングにより整形し、単層グラフェン上に転写することで、グラフェン/MLG/金属(Cr/Au)接合からなる FET 構造を得た。また比較のために、MLG 界面層のない FET、サイドアーム構造を持つ FET も同一グラフェン上に作製した(図 1)。室温真空中の電気伝導率のバックゲート依存(4端子測定、図 2)では、サイドアーム構造を持つ FET においては Si 基板上で通常見られる V 字型の特性が見られるのに対し、MLG 界面層の無い FET においては V 字型は大きく崩れる。これは主に、電極からの局所電子ドーピングに起因する。一方 MLG 界面層を持つ FET では、V 字特性が回復し、電界効果移動度はサイドアーム構造を持つ FET と同等になった。このことから、MLG 界面層はグラフェン FET の特性向上に有効であることが示された。

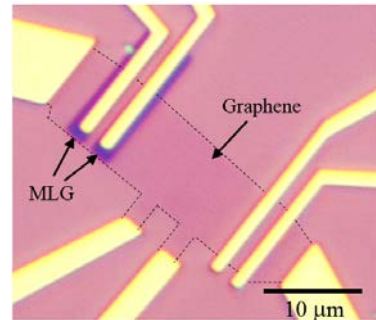


図 1 : 試料の光学顕微鏡写真

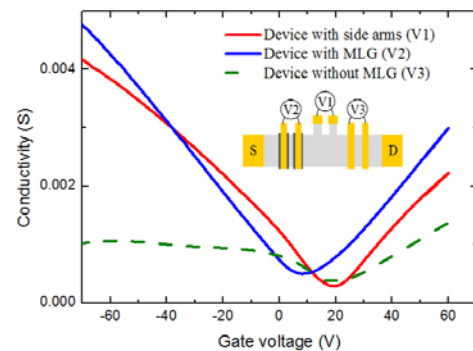


図 2 : 3 種のデバイス構造における電気伝導率のゲート電圧依存性。

## (3) 電子線照射によって生じるラマン D バンドの特徴とその起源の探求

グラフェンを用いた電子デバイスを作製する際には、電子線リソグラフィや電子顕微鏡観察などによるグラフェンへの電子線照射は不可避である。 $\text{SiO}_2/\text{Si}$  基板上のグラフェンに電子線を照射すると、ラマン D バンドが出現することが知られているが、その詳細はわかっていない。特に、構造欠陥生成(炭素原子の弾き飛ばし(ノックオン))に必要なエネルギー(100keV 程度)よりも小さな加速電圧の電子線でも D バンドが生じており、その起源に興味もたれる。本研究では D バンドの起源を明らかにすることを最終目的としてさまざまな環境下のグラフェンのラマン分光測定を行った。

実験では、 $\text{SiO}_2/\text{Si}$  基板上にグラフェンを形成し、50keV、30keV、10keV の電子線を照射し

た。また、対照実験として、構造欠陥を生成することが知られている酸素プラズマを照射した場合についても調べた。電子線を照射した場合には、すべての加速電圧で D バンドの形成が確認され、長時間レーザーを照射すると D バンド強度が減少する様子が観測された。一方、酸素プラズマの場合には、レーザー照射による D バンドの減少は確認されなかった。このことから、SiO<sub>2</sub>/Si 基板上にあるグラフェンに電子線を照射した場合、格子欠陥以外の原因で D バンドが形成されていると推察される。

## 【 2 】金属ナノコンタクトにおける熱現象

単原子ポイントコンタクトや単分子架橋系では nm オーダーの接合両端に  $10^{-2} \sim 10^{-1} \text{eV}$  の電位差が集中する中で伝導が生じており、強い非平衡状態が起きていると考えられる。このような系でのエネルギー散逸についてはこれまでにいくつかの報告があり、局所過熱 (overheating) による接合部構造の不安定化によるコンダクタンスの揺らぎや破断寿命の低下が議論され、局所温度の増大やエネルギー散逸の非対称性が評価されている。しかし、これまでの実験で測定された局所温度はすべて格子温度である。強い非平衡状態においては、電子系と格子系は必ずしも同じ温度を持つとは限らず、区別して考える必要がある。我々は以前超伝導 MCBJ の電流電圧特性に特徴的な構造を見だし、電子系が超伝導状態から常伝導状態へ遷移したことによる構造、つまり、電子温度の過熱によるものであることを示した。今年度は Pb 及び Pb-Sn 合金による超伝導原子ポイントコンタクトの IV 特性を広い電圧範囲で調べ、以前に調べた Nb, Al, Sn と同様な過熱による超伝導・常伝導転移を確認した。また転移を起こす臨界電力の温度変化を調べるとともに、MBJ の熱伝導を簡単なモデルでシミュレートし、実験結果と矛盾しない結果を得た。さらに超伝導状態での過剰電流の評価から原子ポイントコンタクトの平均透過率を評価したところ、Pb-Sn と Pb で有意な差があり、合金による不純物散乱の影響であると考えられる。

さらに、この過熱による電子系相転移を利用し、コンタクト近傍で独立の微小温度計を超伝導 MCBJ 試料に取り付け電子系および格子系の局所温度計測を企図し準備を進めた。まず温度計として AuGe 抵抗温度計を検討し、組成を調整することで、室温～液体ヘリウム温度の領域で良好な感度を持つ  $200 \text{nm} \times 250 \text{nm} \times 60 \text{nm}$  の寸法をもつ極微温度センサーを得た。ついで電子線リソグラフィーで加工した Al-MCBJ 試料の上にこのセンサーを配置することを目指し、作製条件の検討を行った。

## 【 3 】グラファイト上ヘリウム単原子層薄膜における domain wall の流動性と Dirac 粒子系 (森下)

原子レベルで平坦なグラファイト表面に吸着した単原子層ヘリウム薄膜は、理想的な2次元系を与える。この系ではヘリウムの高い量子性のために、他の吸着系には見られない特異な吸着構造や、それを反映した物性が期待できる。実際、ヘリウム3 (<sup>3</sup>He) 薄膜では、特異な吸着構造がリング交換相互作用の競合に強く影響し、多彩な磁性の出現に関与していることが明らかになっている。一方、Bose 粒子系であるヘリウム4 (<sup>4</sup>He) 薄膜では、超固体など、新奇な

物理現象の出現が期待されるが、測定手段に乏しく、情報が著しく不足しているのが現状である。

本研究では、 $^4\text{He}$  薄膜の状態や吸着構造の調査を行う新たな測定手段として、グラファイト上に吸着した単原子層の  $^4\text{He}$  薄膜に少量の  $^3\text{He}$  を混入して熱容量測定を行っている。 $^4\text{He}$  は低温ではフォノンに由来する小さな熱容量しかもたないが、混入した  $^3\text{He}$  は Fermi 粒子であるために、その運動の自由度を反映して比較的大きな熱容量をもち、間接的に  $^4\text{He}$  薄膜に関する情報が期待できる。

薄膜の面密度を増していくと、整合固相である  $\sqrt{3} \times \sqrt{3}$  相の面密度近傍で、熱容量はほぼゼロとなり、 $^3\text{He}$  が局在したことを示す。しかし、さらに面密度を増大させると再び熱容量が増大し、 $^3\text{He}$  が局在してはいないことを示唆する。従来、この面密度領域で  $^4\text{He}$  薄膜は固相であると考えられており、 $^3\text{He}$  の非局在は予測に反する結果である。また、より高面密度の領域で熱容量が温度の自乗に比例するなど、 $^3\text{He}$  が2次元 Fermi 流体としては異常な振る舞いを示す。これは、 $^4\text{He}$  薄膜が一様に融解して  $^3\text{He}$  が自由に運動しているわけではないことを示している。この面密度領域では、( $\sqrt{3} \times \sqrt{3}$  相の吸着サイトに関する) domain wall (DW) 構造が安定な構造のひとつと考えられている。観測事実を説明するひとつの可能性は、DW の内部でのみ、ヘリウム原子が流動性を示すことである。DW 構造には、DW が平行に配列した striped DW 構造と、蜂の巣状に配列した honeycomb DW 構造が存在する。DW が流動性を有する場合、溶解した  $^3\text{He}$  原子は零点エネルギーを小さくするために DW 内に集り、striped DW 構造では  $^3\text{He}$  は1次元 Fermi 流体、或いは朝永-Luttinger 液体として振る舞うことが期待される。一方、honeycomb DW 構造の場合、 $^3\text{He}$  の運動の自由度は graphene 中の電子と良く似ており、 $^3\text{He}$  が Dirac 粒子として振る舞う可能性が期待できる。このとき、線形分散を反映して熱容量は温度の自乗に比例することとなり、観測された異常を説明できる。DW の構造、 $^3\text{He}$  の振る舞い、熱容量についてまとめると表1のようになる。

表1. domain wall の構造による  $^3\text{He}$  の振る舞いと熱容量の分類

構造	面密度	$^3\text{He}$ の振る舞い	低温	高温
striped	低	Tomonaga-Luttinger 液体	$C \propto T$	$C \approx N_3 k_B / 2$
honeycomb	高	Dirac fermion	$C \propto T^2$	$C \approx N_3 k_B$

昨年度に引き続き測定を行うことにより、表1のとおり熱容量が観測されることが確認された。これは、DW 中でのみヘリウム原子が流動性を示すことを強く示唆する結果である。また、高面密度領域 ( $9 \text{ nm}^{-2}$  以上) で、再び熱容量がほぼゼロとなり、 $^3\text{He}$  が局在すること、即ち  $^4\text{He}$  薄膜が固化することも確認された。

Dirac 粒子として振る舞っていると  $^3\text{He}$  原子は全て同じ速さで動き回っていることになるが、その速さを熱容量から見積もることができる。この値は、 $^3\text{He}$  の混入量が少ない方が大きくなっている。また、薄膜の面密度が  $7.3 \text{ nm}^{-2}$  でこの値は極大となり、 $8.4 \text{ nm}^{-2}$  近傍で最大となる。 $7.3 \text{ nm}^{-2}$ 、 $8.4 \text{ nm}^{-2}$  という面密度は honeycomb DW 構造の  $7 \times 7$ 、 $4 \times 4$  の周期性に対応し、蜂の巣格子の乱れが少ないほど速さが大きくなるとの期待に一致する。また、測定に用いているグラ

ファイト基盤が 10 nm 程度の大きさの結晶の集まりであるため、周期構造の小さい方が蜂の巣構造を良く定義でき、より速さが大きくなっていると考えられることができる。以上の結果も、DW のみが流動性を有しているとの仮説を支持する。

< 学位論文 >

( 修士論文 )

片倉健太: グラフェン電界効果トランジスタにおける電極接続の軽減 ( 数理物質科学研究科, 2015 年 3 月 )

( 卒業論文 )

柴田倭宏: Pb 系原子ポイントコンタクトにおける過熱効果、物理学類、2015 年 3 月

< 論文 >

1. S. Mamyouda, H. Ito, Y. Shibata, S. Kashiwaya, M. Yamaguchi, T. Akazaki, H. Tamura, Y. Ootuka, S. Nomura, Circularly Polarized Near-Field Optical Mapping of Spin-Resolved Quantum Hall Chiral Edge States, Nano Letters 15, 2417-2421 (2015).

< 講演 >

国際会議

1. Akinobu Kanda, Hikari Tomori, Youiti Ootuka,  
“Electron transport in graphene with one-dimensional local strain induced by dielectric nanostructures”,  
CECAM Workshop on graphene's strain engineering: Establishing connections between Condensed Matter Physics, Relativistic Quantum Field Theory, and Computational Mechanics, ETH, Zurich, Switzerland, July 14-16, 2014.
2. Hikari Tomori, Youiti Ootuka, Akinobu Kanda,  
“Introduction of designed local strain to graphene using dielectric nanostructures”,  
CECAM Workshop on graphene's strain engineering: Establishing connections between Condensed Matter Physics, Relativistic Quantum Field Theory, and Computational Mechanics, ETH, Zurich, Switzerland, July 14-16, 2014
3. M. Morishita,  
“Fluidity of Domain Walls in Dilute  $^3\text{He}$ - $^4\text{He}$  Mixture Films”,  
27th International Conference on Low Temperature Physics (LT27) (Buenos Aires, August 7, 2014).
4. K. Katakura, Y. Ito, H. Tomori, Y. Ootuka and A. Kanda,  
“Characterization of Graphene/Metal Interface and Its Modification by Insertion of

- Thin Nano-Carbon Layer”,  
27th International Microprocesses and Nanotechnology Conference (MNC2014), ヒルトン福岡シーホーク、福岡市, Nov. 5-7,2014
5. H. Tomori, R. Hiraide, H. Tanaka, K. Katakura, Y. Itou, Y. Ootuka and A. Kanda,  
“Electron Transport in Graphene FETs with Small Spatial Variation of One-Dimensional Local Strain”,  
27th International Microprocesses and Nanotechnology Conference (MNC2014), ヒルトン福岡シーホーク、福岡市, Nov. 5-7,2014
  6. A. Kanda, K. Katakura, Y. Ito, Y. Ootuka,  
“Characterization of graphene/metal interface and its modification by insertion of thin nano-carbon layer”,  
APS March Meeting 2015, Henry B. Gonzalez Convention Center (San Antonio, USA), March 2-6, 2015
  7. H. Tomori, R. Hiraide, H. Tanaka, Y. Ito, K. Katakura, Y. Ootuka and A. Kanda,  
“Electron transport in graphene with uniaxial local strain”,  
APS March Meeting 2015, Henry B. Gonzalez Convention Center (San Antonio, USA), March 2-6, 2015
  8. Akinobu Kanda,  
“Strain-Engineered Electron Transport in Graphene”,  
2015 CENIDE-CNMM-TIMS Joint Symposium on Nanoscience and -technology, University of Duisburg-Essen (Germany), Mar. 16-17, 2015
  9. R. Hiraide, H. Tomori, Y. Ootuka, A. Kanda,  
“Improved method of inducing local strain in graphene for FET application”,  
2015 CENIDE-CNMM-TIMS Joint Symposium on Nanoscience and -technology, University of Duisburg-Essen (Germany), Mar. 16-17, 2015

#### 国内会議

1. 森下将史、「グラファイト上ヘリウム薄膜における Dirac 粒子系」, 物性研短期研究会「スーパーマターが拓く新量子現象」(東京大学物性研究所, 2014年4月18日).
2. 神田晶申, 「グラフェンにおける局所格子ひずみによる物性制御」, 第82回表面科学研究会原子膜研究の最前線, 東京工業大学、東京, 2014年7月23日
3. 廣瀬桃子, 大賀和人, 大塚洋一, Nbを用いたトンネル接合型マイクロ SQUID の開発 II, 日本物理学会 2014年秋季大会、中部大学、2014.9.8
4. 青木仁, 柴田倭宏, 大塚洋一, 超伝導ナノコンタクトにおける局所温度計測, 日本物理学会 2014年秋季大会、中部大学、2014.9.9
5. 柴田倭宏, 青木仁, 大塚洋一, 超伝導原子ポイントコンタクトにおける過熱効果, 日本物理学

会 2014 年秋季大会、中部大学、2014.9.9

6. 深津晋, 一宮彪彦, 井通暁, 右近修治, 江尻有郷, 大嶋孝吉, 大塚洋一, 岸澤眞一, 毛塚博史, 小牧研一郎, 近藤泰洋, 下田正, 真梶克彦, 鈴木功, 瀬川勇三郎, 武士敬一, 遠山澗志, 長谷川修司, 味野道信, 物理チャレンジ 2014 報告:IV 第 2 チャレンジ実験問題, 日本物理学会 2014 年秋季大会、中部大学、2014.9.7
7. 田中宏和, 平出璃音可, 大塚洋一, 友利ひかり, 神田晶申, 「電子線照射したグラフェンのラマンスペクトル」, 第 75 回応用物理学会秋季学術講演会, 北海道大学、札幌, 2014 年 9 月 17-20 日
8. 平出璃音可, 田中宏和, 片倉健太, 大塚洋一, 友利ひかり, 神田晶申, 「周期的 1 軸ひずみを導入したグラフェン電界効果トランジスタ構造の作製と電気伝導評価」, 第 75 回応用物理学会秋季学術講演会, 北海道大学、札幌, 2014 年 9 月 17-20 日
9. 友利ひかり, 平出璃音可, 田中宏和, 大塚洋一, 神田晶申, 「緩やかに変化する 1 軸局所ひずみを導入したグラフェンの電気伝導特性」, 第 75 回応用物理学会秋季学術講演会, 北海道大学、札幌, 2014 年 9 月 17-20 日
10. 友利ひかり, 平出璃音可, 田中宏和, 大塚洋一, 神田晶申, 「ひずみ誘起ゲージ場を用いた単原子層膜の伝導制御とエレクトロニクス応用」, グラフェンの電気伝導に関する勉強会, 奈良女子大学, 2014 年 12 月 15-16 日
11. 神田晶申, 片倉健太, 伊藤優, 大塚洋一, 「グラフェンの超伝導近接効果の観測に向けた最近の実験」, グラフェンの電気伝導に関する勉強会, 奈良女子大学, 2014 年 12 月 15-16 日
12. 神田晶申, 「SiC 上グラフェンの伝導測定」, 第7回九大グラフェン研究会, 九州大学応用力学研究所, 2015 年 2 月 10 日
13. 片倉健太, 伊藤優, 田中宏和, 平出璃音可, 大塚洋一, 友利ひかり, 神田 晶申, 「グラフェン電界効果トランジスタにおける電極接続の影響の軽減」, 第 62 回応用物理学会春季学術講演会, 東海大学(神奈川), 2015 年 3 月 11-14 日
14. 林真吾, 森田康平, 梶原隆司, ビシコフスキー アントン, 飯盛拓嗣, 小森文夫, 田中宏和, 神田晶申, 田中悟, 「SiC 高指数面ファセット上に現れるグラフェン擬1次元構造」, 第 62 回応用物理学会春季学術講演会, 東海大学(神奈川), 2015 年 3 月 11-14 日
15. 友利ひかり, 平出璃音可, 田中宏和, 伊藤優, 片倉健太, 大塚洋一, 神田晶申, 「空間変化するひずみのあるグラフェンの電気伝導特性」, 日本物理学会第 70 回年次大会, 早稲田大学(東京), 2015 年 3 月 21-24 日
16. 片倉健太, 伊藤優, 友利ひかり, 大塚洋一, 神田晶申, 「グラフェンの輸送特性に対する電極接続の影響とその軽減」, 日本物理学会第 70 回年次大会, 早稲田大学(東京), 2015 年 3 月 21-24 日
17. 林正彦, 吉岡英生, 友利ひかり, 神田晶申, 「架橋構造のグラフェン・ナノリボンにおける形状による歪みのコントロール」, 日本物理学会第 70 回年次大会, 早稲田大学(東京), 2015 年 3 月 21-24 日

18. 森下将史、「グラファイト上へリウム薄膜における Dirac 粒子系」, 日本物理学会第 70 回年次大会 (早稲田大学, 2015 年 3 月 23 日).

<受賞>

1. H. Tomori, R. Hiraide, H. Tanaka, Y. Ito, K. Katakura, Y. Ootuka and A. Kanda: MNC2013 Award for Most Impressive Poster (Nov. 4, 2014)

<外部資金>

1. 神田晶申: 科学研究費補助金 基盤研究 B 「歪み誘起ゲージ場を用いたグラフェンのエネルギーギャップの生成と制御」(H25~H27)、直接経費 240 万円
2. 神田晶申: 科学研究費補助金 新学術領域研究 「単層/多層グラフェンにおける超伝導近接効果」(H26~H27)、直接経費 270 万円
3. 友利ひかり: 戦略的創造研究推進事業さきがけ(科学技術振興機構)「ひずみ誘起ゲージ場を用いた単原子層膜の伝導制御とエレクトロニクス応用」(H26~H30)、直接経費 970 万円