

数層グラフェン試料の作製と 極低温電気伝導

Fabrication of Few-Layered Graphene Devices
and
Low Temperature Transport Measurements

物理学専攻 石毛 秀和
Hidekazu Ishige

1 はじめに

近年、グラファイトの単層であるグラフェンをグラファイトから機械的に剥離することで作製する方法 [1] が発見されて以来、特異な物理現象を示すグラフェンに注目が集まっている。グラフェン二次元系では通常の二次元電子系とは異なる振る舞いをする量子ホール効果 [2] が観測されたことや、エネルギーの分散関係が線形なことから、ディラックフェルミオンとして電子が振舞うと予測されていることなど [3]、グラフェンはこれまでにない物理を提供する可能性を秘めている。グラフェンが示す特異な物理現象の一つに量子干渉効果による弱局在効果が挙げられる。グラフェンにおける、弱局在効果は欠陥もなくサイズの大きな系では、通常の実験環境で見られるグラフェンのしわによる位相消失効果によって抑制されることが報告されている [4]。また、グラフェンのバンド構造に由来するフェルミ線のゆがみによっても弱局在の抑制が起こることが予測されている。

本研究では、第一にグラフェン試料の作製技術を確立し、第二にグラフェンにおける極低温電気伝導特性を調べることを目的とした。最終的に、擬似コルビノ型電極を単層グラフェン試料を作製し、その負磁気抵抗効果を測定して弱局在特性を調べた。

2 実験

本研究では、マイクロメカニカルへき開、AFM による厚さ測定、電子線リソグラフィー、真空蒸着、リフトオフを用いて数層グラフェン試料を作製した。

グラファイトは、炭素原子が六方格子状に配列した一枚のシート状物質であるグラフェンが積み重なった層状構造をしている。層と層の間はファンデルワールス力による弱い力で結合されており、容易に剥離することができる。この性質を利用して、バルクのグラファイトを直接基盤となるものにこすりつけることで剥離するのがマイクロメカニカルへき開である。通常、グラファイトは薄膜化するにつれて色が薄くなり、基盤上に存在したとしても肉眼で識別することはできないとされているが、熱酸化シリコン基盤上では光学顕微鏡を使用して肉眼での識別が可能となることが報告されている [6]。熱酸化シリコン表面は干渉色により色づいている。この干渉色により、熱酸化シリコン基盤上のグラフェンはわずかな基盤とのコントラストを呈し、識別が可能になる。

試料作製にはバルクのグラファイトに高配向熱分解黒鉛 (HOPG: Highly Oriented Pyrolytic Graphite) を、基盤には濃く N 型にドーピングされた Si 上に SiO_2 を 300nm 熱酸化させたものを用いた。N 型 Si, SiO_2 , グラフェンとで、コンデンサー構造となっている (図 3)。N 型 Si をゲート電極として用いて、ゲート電圧をかけることで、電界効果によりフェルミ準位をコントロールした実験が可能になる。

51 個の数層グラフェン試料の作製を行ったが、電極の不良により測定が行えない試料、 SiO_2 層の絶縁破壊によりゲート電圧をかけての測定が行えない試料等が大半を占め、満足に測定できた試料は非常に少ない。唯一、高ゲート電圧をかけての極低温測定が行えた試料についての測定結果を報告する。試料

が単層グラフェンであることを，光学顕微鏡観察における基盤とのコントラスト，AFM による厚さ測定，量子ホール効果の観測により確かめた．AFM 観察像，電極作製後の光学顕微鏡写真，試料断面模式図を図 1～3 にそれぞれ示す．電極として，電極間距離が試料幅より短い，擬似コルビノ型電極を作製した．

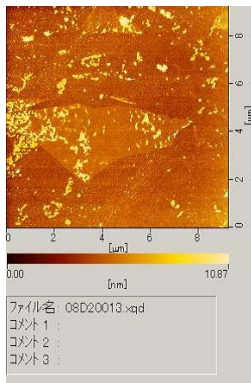


図 1: AFM 観察像．
白い塊はテープの粘着剤の残留物である．

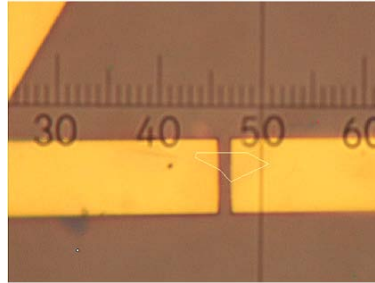


図 2: 電極作製後．
電極間距離 L は $1.2\mu\text{m}$ ，
試料幅 W は $2.2\mu\text{m}$ である．

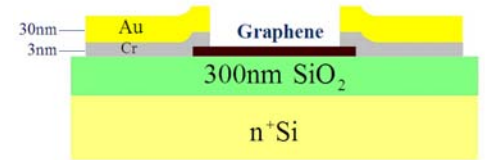


図 3: 試料断面模式図．

3 結果と考察

0T におけるゲート電圧依存性の測定結果を図 4 に示す．また，ゲート電圧を固定して磁場依存性を測定した結果を図 5 に示す．図 4 に見られる，+21V 付近の抵抗の極大は，電荷中性点を観測したことを示している．通常，電荷中性点は 0V 付近に観測されるはずだが，+側にシフトした状態で観測された．これは，試料作製過程において不純物による予期せぬホールドーピングが起きたためと考えられる．電荷中性点において抵抗値が有限であることは，フェルミ準位により電子 - ホールパドルが形成されていることを示唆する．ゲート電圧依存性を基に，電荷中性点付近，ホール側，電子側の合計 9 点の磁場依存性を測定した．磁場依存性には，パラボリックな磁気抵抗の振る舞いとゼロ磁場近傍で負磁気抵抗が観測された．

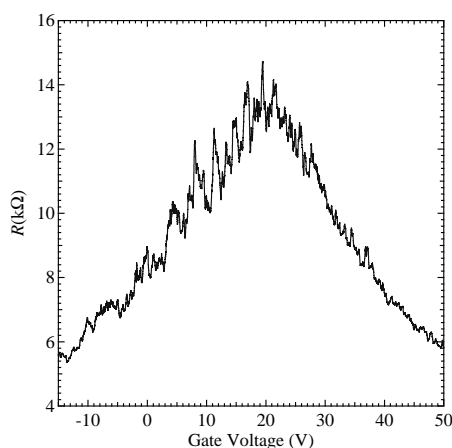


図 4: ゲート電圧依存性．

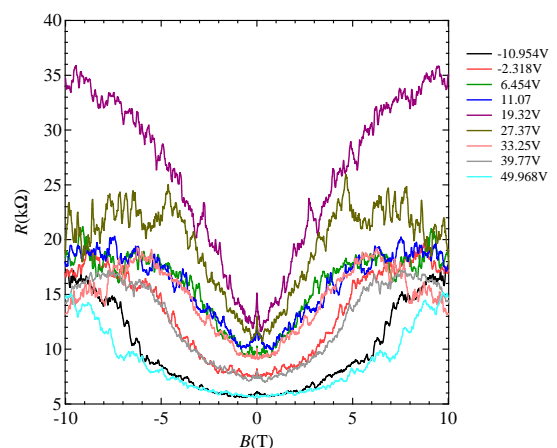


図 5: 磁場依存性．

パラボリックな磁気抵抗は試料が擬似コルビノ型であるためである．コルビノ磁気抵抗の式 $\rho(B)/\rho_0 = 1 + \mu^2 B^2$ を用いてフィッティングを行い，実験結果から計算結果を差し引くことで弱磁場領域でのコルビノ磁気抵抗成分を排除し，負磁気抵抗成分を求めた．また，理論との比較を行うために，磁場の+-で平均をとり， $\Delta\sigma$ に換算した．図7に $\Delta\sigma$ の磁場依存性を示す．

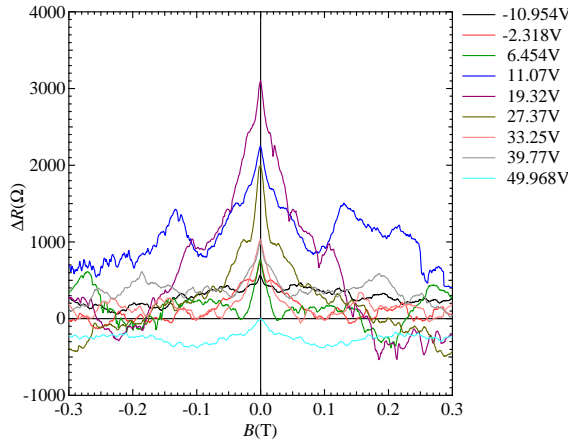


図 6: ΔR の磁場依存性．

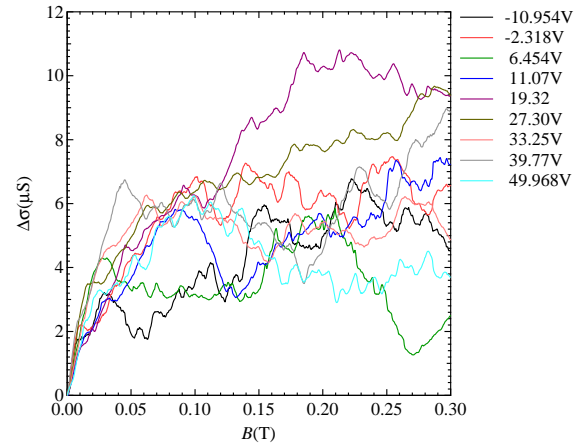


図 7: $\Delta\sigma$ の磁場依存性．

単層グラフェンにおける弱局在効果は式 (1) で表せられる [7] ．

$$\Delta\sigma(B) = \frac{e^2}{\pi h} \left\{ F\left(\frac{\tau_B^{-1}}{\tau_\phi^{-1}}\right) - F\left(\frac{\tau_B^{-1}}{\tau_\phi^{-1} + 2\tau_i^{-1}}\right) + \delta\sigma(B) \right\} \quad (1)$$

ここで， $F(z) = \ln z + \psi(0.5 + z^{-1})$ で ψ はディガンマ関数， $\tau_B^{-1} = 4DB/\hbar$ ， D は拡散係数である． τ_ϕ は非弾性散乱時間， τ_i は谷間散乱時間である．式 (1) 第一項は干渉による弱局在を表す項，第二項は谷間散乱による反弱局在を表す項，第三項はその他の散乱による反弱局在を表す項である．式 (1) の第一項，第二項を用いてフィッティングを行い，実験結果から計算結果を差し引くことで $\delta\sigma(B)$ を求めて定性的な解析を行う．Tikhonenko ら [8] は電極間距離 L と試料幅 W の比が 1 : 1 の二端子電極試料において， $\tau_i^{-1} = 2.5\tau_\phi^{-1}$ と報告している．今回の測定に使用した試料の形状は横長で， L と W の比は 1.2 : 2.2 であった．谷間散乱は主に試料の端で生じると考えられている．横長試料では端の寄与が減少する．そこで，今回の試料では $\tau_i^{-1} = 2.5 \times L/W \times \tau_\phi^{-1} = 1.36\tau_\phi^{-1}$ と見積もった． τ_ϕ のみをパラメーターとして，磁気伝導率の立ち上がり部分に合わせてフィッティングを行った．図8にフィッティング結果の一例を示す．低磁場領域の二点，50mT，100mTにおいて，実験データと計算結果の差をとり， $\Delta\sigma$ を求めた．また，コンデンサーの式 $n = \epsilon_0 \epsilon Vg^*/te$ からキャリア濃度 n を見積もった．ここで， ϵ_0 は真空の誘電率， ϵ は SiO_2 の誘電率， Vg^* は V_{CNP} をゼロとした場合のゲート電圧の変化量， t は SiO_2 の厚さ 300nm， e は電気素量である． $\delta\sigma$ のキャリア濃度依存性を図9に示す． $\delta\sigma$ は電荷中性点付近が一番大きく，キャリア濃度が増加するにつれて減少する傾向が見られる．これは，高キャリア濃度側では弱局在が抑制されていることを示している．通常，弱局在を抑制するのは，非弾性散乱や磁場等であるが，グラフェンにおける弱局在の抑制は別の要因でも起きる．それは，フェルミ線のゆがみである．キャリア濃度が増加すると，フェルミ線のゆがみは大きくなり，弱局在が抑制されると考えられている．この結果も，キャリア濃度が増加し，フェルミ線のゆがみが大きくなったことで，弱局在が抑制されたことを表していると考えられる．

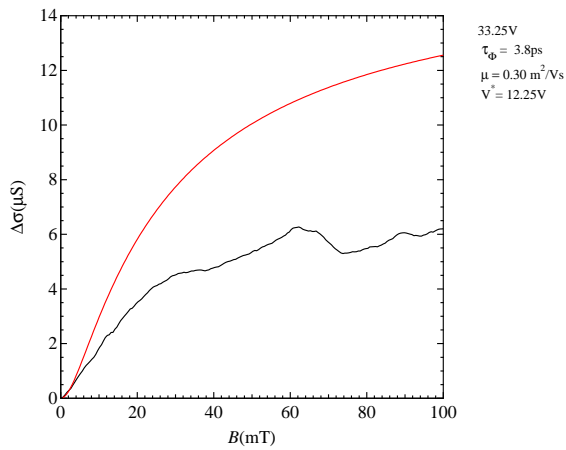


図 8: $V_g = 33.25 V$.

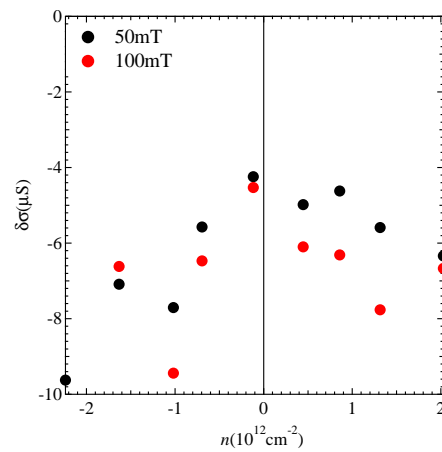


図 9: $\Delta\sigma$ のキャリア濃度依存性 .

4 まとめ

単層グラフェン試料の作製に成功し、極低温電気伝導を測定することができた。弱局在効果の解析から、キャリア濃度が増加するにつれて弱局在が抑制されるという結果を得た。この結果は、グラフェンにおいてフェルミ線のゆがみがキャリア濃度が増加するにつれて大きくなるという性質から、定性的に説明することができる。

参考文献

- [1] K. S. Novoselov, A. K. Geim, S. V. Morozov, D. Jiang, Y. Zhang, S. V. Dubons, I. V. Grigorieva, A. A. Firsov, *Science* **306** (2004) 666.
- [2] K. S. Novoselov, A. K. Geim, S. V. Morozov, D. Jiang, M. I. Katsnelson, I.V.Grigorieva, S. V. Dubons, A. A. Firsov, *Nature* **438** (2005) 197.
- [3] A. H. Castro Neto, F.Guinea, N. M. R. Peres, K. S. Novoselov, A. K. Geim , *Rev. Mod. Phys.*, **81** (2009) 109.
- [4] S. V. Morozov, K. S. Novoselov, M. I. Katsnelson, F. Schedin, L. A. Ponomarenko, D. Jiang, A. K. Geim, *Phys.Rev.Lett.*, **97** (2006) 016801.
- [5] J. Martin, N. Akerman, G. Ulbricht, T. Lohmann, J. H. Smet, K. von Klitzing, A. Yacoby, *Nat.Phys.*, **4** (2008) 144
- [6] P. Blake, K. S. Novoselov, A. H. Castro Neto, D. Jiang, R. Yang, T. J. Booth, A. K. Geim, E. W. Hill, *Appl.Phys.Lett.*, **91** (2007) 063124.
- [7] Vladimir I. 'Falko, K. Kechedzhi, E. McCann, B.L. Altshuler, H. Suzuura, T. Ando, *Solid State Commun.*, **143** (2007) 33.
- [8] F. V. Tikhonenko, D. W. Horsell, R. V. Gorbachev, and A. K. Savchenko, *Phys.Rev.Lett.*, **100** (2008) 056802.