

博士論文

グラフェン量子輸送現象の  
電子光学的制御

森川 生

# 概要

高移動度電子系を伝搬するキャリアはバリステック(直進しながら)かつコヒーレント(位相を保って)な性質を有することから、あたかも光波のように振る舞う。特にグラフェンにおいては、pn 界面における負の屈折現象や Klein tunneling などグラフェン特有の電子の「光学的」な性質を示すことが理論的に知られている。

本博士研究においては、このような「電子光学」的概念を能動的に利用して、グラフェンの量子輸送現象を実験的に制御した結果について以下の点から論ずる。

## 「電子光学」に向けた高移動度グラフェンの作製と評価 (第2章)

グラフェンとの相互作用が小さい絶縁膜 h-BN を、基板やゲート絶縁膜として利用することで、高移動度なグラフェン、特にバリステックおよびコヒーレントな伝導が実現した系の作製に成功した。また、局所ゲート変調により高品質な pn 接合の作製にも成功した。電子光学を実現するための実験系の整備が達成されたことになる。

S. Masubuchi, S. Morikawa *et al.*, Jpn. J. Appl. Phys **52**, 110105 (2013).

## グラフェンにおける「電子光学」の実証

### 楕形 npn 接合を用いた透過率制御 (第3章)

楕形の npn 接合において、電子を最初の界面においてコリメートさせ、次の界面において全反射させることで接合の透過率を抑制することに成功した。この効果の発現には、pn 界面における Klein collimation が重要な役割を果たしている。また Klein tunneling に起因して、磁気抵抗の符号がゲートの幾何学構造に依存していることも示した。グラフェン pn 界面における電子波の屈折・反射・透過を制御することで電気伝導を制御できたことを意味する。

S. Morikawa *et al.*, Semicond. Sci. and Technol., <https://doi.org/10.1088/1361-6641/aa6102>.

S. Morikawa *et al.*, Jpn. J. Appl. Phys **55**, 100305 (2016).

### 局所ポテンシャル変調を用いた電子軌道制御 (第4章)

Scanning gate microscopy (SGM)という局所プロービング技術を利用して、バリステックに伝導するキャリアの軌道を制御した。特に、電子フォーカシング効果によって観測される、サイクロトロン運動するバリステックなキャリアの軌道の制御が、100 nm オーダーの極めて局所的なポテンシャル変調領域による反射を用いることで、実現可能であることを示した。

S. Morikawa *et al.*, Appl. Phys. Lett. **107**, 243102 (2015).

## 量子ホール pn 接合におけるエッジチャネル干渉計の実現 (第 5 章)

高品質グラフェン npn 接合において、数 T 程度の量子ホール領域で特異な磁気抵抗振動現象を観測した。この振動は、pn 界面に co-propagating に伝搬しながら存在する、p 型由来と n 型由来のエッジチャネルが干渉していると考えerことで説明可能であることを見出した。グラフェン pn 接合特有のエッジチャネル配置において、天然に形成されるエッジチャネル干渉計の存在を示唆した結果である。

S. Morikawa et al., Appl. Phys. Lett. **106**, 183101 (2015).

T. Machida, S. Morikawa et al., J. Phys. Soc. Jpn. **84**, 121007 (2015).

以上の結果は、グラフェンのキャリアが示す電子光学的な性質を制御することで、新規物性や機能の発現が実現可能であることを示した結果である。理論的に様々な提案がされている"Dirac fermion optics"と呼ぶべきこの概念を、実験的に実証することでその実現可能性を示した研究成果と言える。

# 目次

概要 .....	1
目次 .....	3
第 1 章 序論 .....	7
1.1 高移動度二次元電子系における量子輸送 .....	7
1.1.1 半導体高移動度二次元電子系 .....	7
1.1.2 バリステック伝導 .....	8
1.1.3 コヒーレント伝導 .....	10
1.1.4 量子ホールエッジチャネル伝導 .....	11
1.2 グラフェンにおける量子輸送 .....	13
1.2.1 グラフェン .....	14
1.2.2 グラフェンの実験的単離の成功とその爆発的な広がり .....	14
1.2.3 グラフェンの特徴 ～輸送現象の観点から～ .....	15
1.2.4 高品質化に向けた課題 .....	18
1.3 量子輸送現象の電子光学的制御 .....	19
1.3.1 半導体二次元電子系における電子光学 “Electron optics” .....	19
1.3.2 グラフェンにおける電子光学 “Dirac fermion optics” .....	22
1.3.3 Dirac fermion optics で実現が期待されている物性・機能 .....	25
1.4 本研究の目的 ～Dirac fermion optics に向けて～ .....	28
1.5 本論文の構成 .....	29
第 2 章 グラフェン/h-BN 積層構造を用いた高移動度グラフェンの作製と評価 .....	31
2.1 グラフェン/h-BN 構造の登場 .....	31
2.1.1 h-BN 基板を用いたグラフェンの移動度向上 .....	31
2.1.2 グラフェン/h-BN 構造に期待される「原子層科学」への貢献 .....	32
2.1.3 グラフェン/h-BN 積層構造の課題 .....	33
2.2 本章のねらい .....	34
2.3 試料作製法 .....	34
2.3.1 ドライ転写法 .....	35
2.3.2 スタンピング法 .....	37
2.3.3 本研究での利用した方法 .....	39
2.4 バリステック伝導の実現と端散乱の観測 .....	40
2.4.1 素子構造と両極性電界効果 .....	40
2.4.2 移動度評価 .....	41
2.4.3 縮退分離量子ホール効果とゲートキャパシタンスの見積もり .....	42
2.4.4 端散乱由来の磁気抵抗 ～先行研究とねらい～ .....	45



2.4.5	端散乱由来の磁気抵抗 ～実験結果～	47
2.4.6	室温バリステック	50
2.4.7	バリステック伝導の実現まとめ	51
2.5	バリステックかつコヒーレントな npn 接合の実現	51
2.5.1	先行研究と課題	52
2.5.2	素子構造と局所キャリア変調	53
2.5.3	Fabry-Perot 干渉	54
2.5.4	Fabry-Perot 干渉の温度依存性	56
2.5.5	Klein tunneling と Berry 位相の影響	58
2.5.6	バリステックかつコヒーレントな npn 接合の実現まとめ	59
2.6	本章のまとめ	60
2.7	展望 ～vdW 積層構造の発展と h-BN の役割～	60
第3章	楕形 npn 接合を用いた透過率制御	61
3.1	キャリア密度の異なる界面における電子波屈折	61
3.1.1	スネルの法則	61
3.1.2	透過率の角度依存性・Klein collimation	62
3.2	本章のねらい	65
3.2.1	Klein collimation および全反射を用いた抵抗増大	65
3.2.2	Klein tunneling を用いた磁気抵抗符号の変化	67
3.2.3	意義付けと応用可能性	68
3.3	抵抗増大の観測	69
3.3.1	素子構造・基礎伝導特性	69
3.3.2	抵抗増大の観測	71
3.3.3	再現性確認と参照用試料との比較	73
3.3.4	温度依存性	74
3.3.5	傾斜角依存性と端散乱の寄与	76
3.3.6	その他の改善点	77
3.3.7	抵抗増大の観測まとめ	78
3.4	磁気抵抗符号の変化	78
3.4.1	素子構造・基礎伝導特性	78
3.4.2	磁気抵抗符号の変化	80
3.4.3	再現性の確認	83
3.4.4	Klein collimation の寄与 ～nnpn vs nn'n～	84
3.4.5	Snake state の形成	85
3.4.6	磁気抵抗符号の比較まとめ	86
3.5	本章のまとめ	86

第4章	局所ポテンシャル変調を用いた電子軌道制御.....	88
4.1	本章のねらい.....	88
4.2	測定方法とデバイス構造.....	89
4.2.1	Scanning gate microscopy .....	89
4.2.2	測定準備.....	89
4.2.3	素子構造.....	91
4.3	基礎特性評価.....	92
4.3.1	電気伝導による評価.....	92
4.3.2	SGM による評価.....	92
4.4	電子フォーカシング効果.....	94
4.4.1	電子フォーカシング効果の観測.....	94
4.4.2	試料端反射の鏡面性.....	95
4.5	電子波の反射による電子軌道のイメージング.....	96
4.5.1	電子軌道のイメージング.....	96
4.5.2	Injector/collector の有限太さと不完全な collimation の影響.....	98
4.5.3	逆チップバイアスの結果.....	99
4.5.4	Global な gating 効果の影響.....	100
4.6	電子波の反射による電子軌道の制御.....	101
4.7	課題と展望 .....	102
4.7.1	空間解像度の向上.....	103
4.7.2	コリメーションの向上.....	104
4.7.3	Cloaking.....	106
4.8	本章のまとめ.....	107
第5章	量子ホール pn 接合におけるエッジチャネル干渉計の実現.....	108
5.1	PN 接合における非平衡エッジチャネル配置.....	108
5.1.1	エッジチャネルの平衡・非平衡.....	108
5.1.2	pn 界面における co-propagating エッジチャネルの平衡分布.....	109
5.1.3	高移動度化による非平衡分布の実現.....	110
5.2	本章のねらい.....	111
5.3	磁気抵抗振動の観測.....	112
5.3.1	縮退分離量子ホール効果と npn 領域での非平衡分布の観測.....	112
5.3.2	中磁場領域での特異な磁気抵抗振動.....	114
5.3.3	キャリア密度変調法に応じた振動構造の変化.....	117
5.3.4	再現性の確認.....	119
5.4	エッジチャネル干渉モデル.....	120
5.4.1	概要 .....	120

5.4.2	実験結果との定性的な比較.....	121
5.4.3	S の見積もり .....	122
5.4.4	AB 干渉条件のもとでの実験結果と計算結果の整合 .....	124
5.4.5	変動する S を囲むエッジチャネル干渉計.....	126
5.5	考察 ～Support data と Open questions～.....	126
5.5.1	振動現象が観測される磁場領域.....	127
5.5.2	Checker-board パターンとエッジ速度.....	128
5.5.3	温度依存性.....	129
5.5.4	キャリア密度方向の抵抗振動と位相シフト.....	130
5.5.5	$v_c$ の物理的意味.....	132
5.5.6	Snake state による磁気抵抗振動との比較.....	133
5.6	本章のまとめ.....	134
第 6 章	結論 .....	136
第 7 章	補遺 .....	137
7.1	測定法 .....	137
7.1.1	測定装置.....	137
7.1.2	測定回路.....	137
7.2	試料幅の異なるサンプルにおける fan diagram.....	137
参考文献	.....	139
研究成果	.....	149
謝辞	.....	155

# 第1章 序論

本博士論文「グラフェン量子輸送現象の電子光学的制御」は、近年新規二次元電子系として注目を集めているグラフェンにおけるバリスティック伝導やコヒーレント伝導を、「光学」の概念を利用しながら制御した研究成果について、まとめたものである。

本章では序論として、グラフェン以前の高移動度二次元電子系の先行研究をまとめた後、グラフェンの物性や、「光学」の概念を用いて量子輸送を制御することの意味や意義について概観しながら、グラフェンにおいて「電子光学的」に量子輸送現象を制御するという本研究の目的を明示していく。

## 1.1 高移動度二次元電子系における量子輸送

本研究では、グラフェンという 2004 年に実験的に発見された新規の二次元電子材料を扱っているが、その半世紀程度前から、Si や GaAs 等、半導体を用いた二次元電子系の研究は精力的に行われてきた。本節ではその一端を紹介しながら、高移動度な系特有の量子輸送現象である、バリスティック伝導・コヒーレント伝導・量子ホール伝導について概説する。

### 1.1.1 半導体高移動度二次元電子系

二次元電子系として最初に注目を集めた系は、1960 年代から研究が始まった Si-MOSFET(Si Metal Oxide Field Effect Transistor)構造である[Fig. 1-1(a)]。まず、Si/SiO<sub>2</sub> 界面を作製し、面直方向に電界をかけることでバンドを曲げ、Si 反転層を界面において実現する[Fig. 1-1(b)]。すると、この層に存在する電子層の深さ方向の厚みが電子のドブロイ波長程度になることから、伝導層を事実上の二次元電子系とすることができる。ゲート電圧制御により、チャネルを形成させたり消失させたりすることで電流の ON-OFF が実現可能であることから、電界効果トランジスタ(FET)として電子デバイス応用に広く用いられてきた。また、キャリア移動度は低温において 10,000 cm<sup>2</sup>/Vs のオーダーに達し<sup>1</sup>、高移動度二次元電子系における代表的な量子輸送現象である量子ホール効果(1.1.4 において詳しく論ずる)が、この Si-MOSFET 系で初めて実現している<sup>2</sup>。

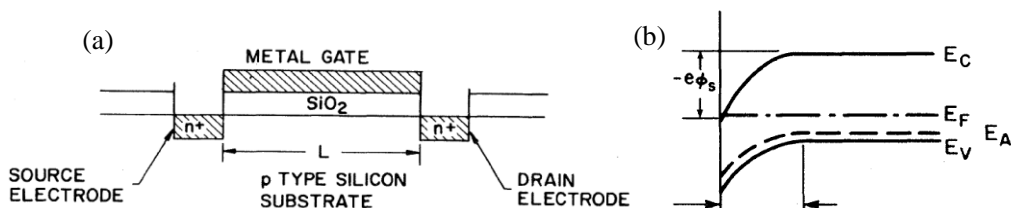


Fig. 1-1 Si-MOSFET 構造のデバイス構造(a)とバンド図(b)<sup>1</sup>

更に、GaAs/AlGaAs 系と変調ドーピング構造の登場により、移動度は更なる向上を遂げた。GaAs 系はそもそも有効質量が Si に比べて小さいことから、高移動度が期待できる系であり、更に、不純物をドーピングする部分と二次元電子系が形成される部分を空間的に分離(変調ドーピング)させることで、不純物散乱の抑制された二次元電子系が実現されている。この構造を用いたトランジスタは HEMT(High-electron-mobility Transistor)と呼ばれ[Fig. 1-2]、富士通研究所の Mimura らによって最初に実現が報告された<sup>3,4</sup>。近年では MBE(Molecular Beam Epitaxy)を用いた結晶成長技術の進展により、極低温において  $30,000,000 \text{ cm}^2/\text{Vs}$  程度という超高移動度が実現している[Fig. 1-12]<sup>5-7</sup>。

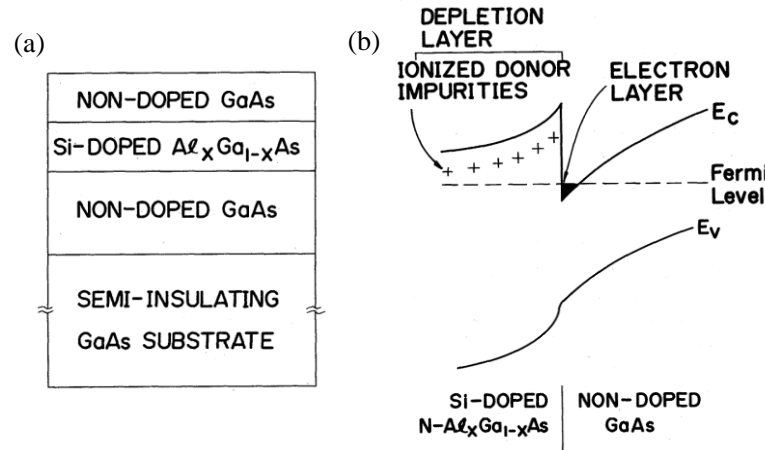


Fig. 1-2 GaAs/AlGaAs 界面を用いた HEMT 構造のデバイス構造(a)とバンド図(b)<sup>3</sup>

### 1.1.2 バリスティック伝導

デバイス構造の発展による移動度の向上は、高性能電子デバイスの実現だけでなく、低移動度サンプルの場合とは全く異なるキャリアの伝導機構の実現を意味し、そこでは新規の物理現象の観測が可能になる。まず、代表例としてバリスティック伝導を挙げる。

キャリアの平均自由行程は  $l = v_F \tau$  (1.1) で計算でき、ボルツマン輸送理論によると

$$ne\mu = \sigma = e^2 v_F^2 D(E_F) \tau / 2 \quad (1.2)$$

であること<sup>8</sup>から、移動度  $\mu$  の増加に伴って  $l$  は線形に増加していくことが分かる( $v_F$ : フェルミ速度,  $\tau$ : 散乱時間,  $n$ : キャリア密度,  $e$ : 電荷素量,  $\sigma$ : 伝導率,  $D(E_F)$ : フェルミ面での状態密度)。低移動度の半導体ではこの  $l$  が典型的な試料スケール  $\mu\text{m}$  オーダーよりも十分に小さいことから、キャリアはチャネルの中を何度も散乱されながら伝導する拡散的(Diffusive)な伝導をする[Fig. 1-3(a)]。一方で、高移動度二次元電子系の場合は、例えば後程紹介する Yacoby らの報告<sup>9</sup>によると  $l = 14 \mu\text{m}$  ( $\mu = 1,400,000 \text{ cm}^2/\text{Vs}$ ) と優にサンプルのスケールを超えるようになり、電子はチャネルのバルク中でほとんど散乱を受けずに直進するようになる。このような伝導のことをバリスティック(Ballistic)伝導と呼ぶ[Fig. 1-3(b)]。

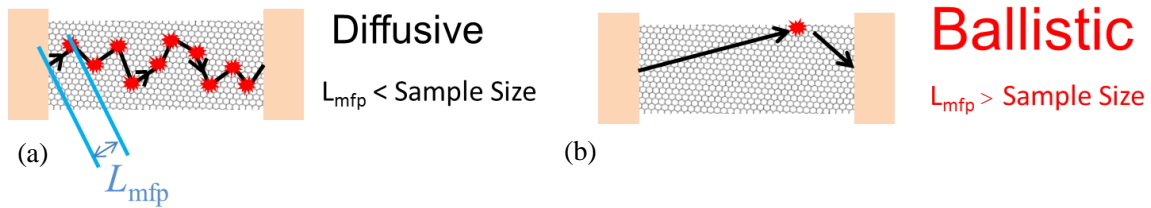


Fig. 1-3 (a) Diffusive 伝導 と (b) Ballistic 伝導

バリスティック伝導が実現すると、拡散的な伝導では実現しえない特異な輸送現象がみられる。一例として「負の曲げ抵抗」と呼ばれる効果を紹介する。Fig. 1-4(a),(b)で示したような配置で電流を流しながら電圧を測定する場合を考える。通常の拡散的な伝導が実現している場合は、電流は何度もチャンネル中で散乱を受けながらランダムに進むことで電流端子間を流れるため、電流経路から離れた電圧端子には殆どシグナルは生じない[Fig. 1-4(a)]。一方で、バリスティックな伝導が実現していると、キャリアがチャンネル中でほとんど散乱を受けないことから、電流端子から出た電子が直接向かい側の電圧端子に飛び込むことになる。これにより遠く離れた電圧端子間にもシグナルが(特に負のシグナルが)出ることが、この系の大きな特徴である[Fig. 1-4(b)]。Fig. 1-4(c)が Takagaki らによって実際に観測された実験結果である<sup>10,11</sup>。ゼロ磁場において、確かに負の曲げ抵抗が観測されていることが分かる。磁場をかけると、サイクロトロン運動によってキャリアの軌道が曲げられるため、キャリアが電圧端子に飛び込むことができなくなり、曲げ抵抗はほぼゼロに戻っている。

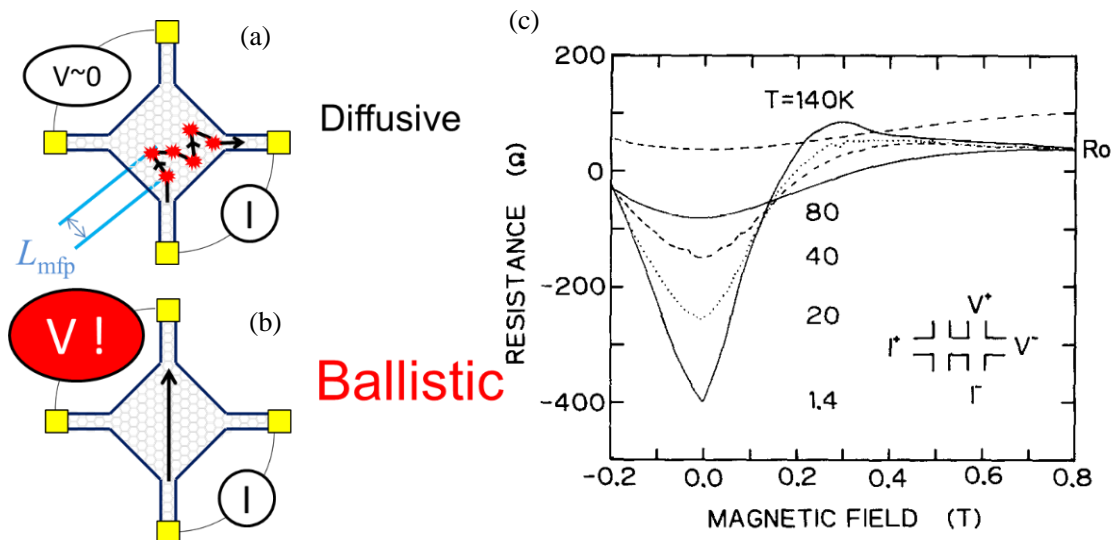


Fig. 1-4 (a),(b) Diffusive 伝導(a)と Ballistic 伝導(b)が実現している系における曲げ抵抗配置でのキャリアの軌道 (c) Takagaki らによって観測された負の曲げ抵抗<sup>11</sup>

このようにバリスティック伝導が実現している系では、散乱頻度が著しく抑制されていることから、キャリアが弾道的に直進することで、キャリアの「軌道」そのものが大きく伝導を支配していることが特徴である。この点が、複数の軌道がランダムなキャリア散乱によって平均化されて伝導が決定するような拡散的な伝導と、大きく異なる点である。

その他にも、面直に磁場を印加してこのバリスティックなキャリアがサイクロトロン運動を起こした際に見られる、試料端散乱に起因する磁気抵抗の特異なピーク構造(2.4.4にて詳述)<sup>12</sup>や、電子フォーカシング効果(4.4にて詳述)<sup>13-15</sup>などが、バリスティック伝導の例として有名である。

### 1.1.3 コヒーレント伝導

前項では、電子という「粒子」がチャネルの中を弾道的に進行するバリスティック伝導について議論してきたが、電子のもう一つの特徴、「波」としての性質も忘れることはできない。

電子の固体中での波としての性質は、干渉効果として観測することができる。このような効果は半導体二次元電子系に限らず金属等の系においても観測されており、ランダムな電子の散乱が作る干渉経路によって生じる弱局在効果<sup>16,17</sup>・普遍的伝導度ゆらぎ<sup>18-20</sup>[Fig. 1-5(a),(b)]やリング状の構造を作ることによってそこを貫く磁束が誘起する Aharonov-Bohm 位相によって生じる Aharonov-Bohm 振動<sup>21,22</sup>[Fig. 1-5(c),(d)]などが有名である。

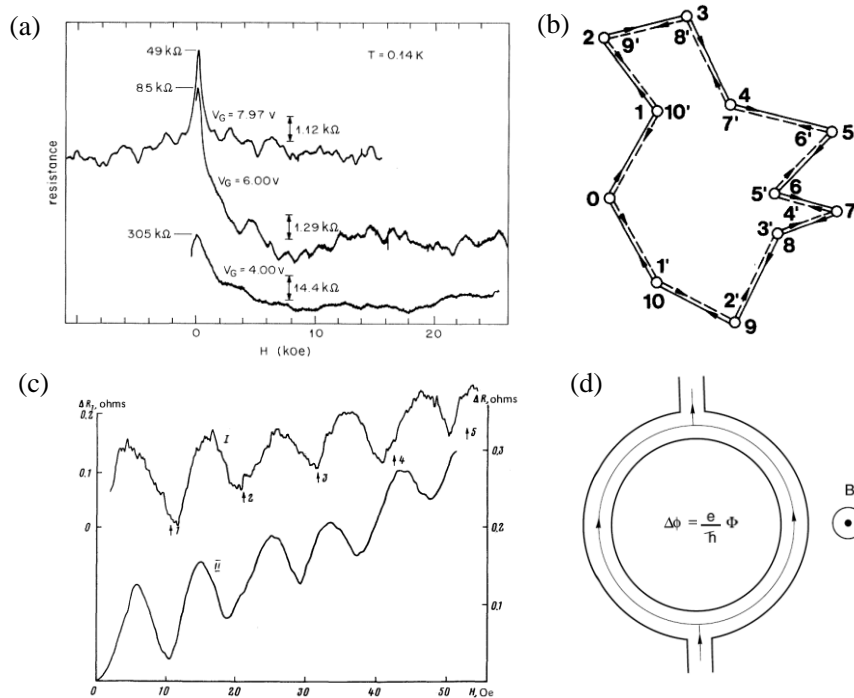


Fig. 1-5 (a) 弱局在と普遍的伝導度ゆらぎ<sup>20</sup> (b) ランダムな散乱が形成する干渉経路<sup>17</sup>  
(c) Aharonov-Bohm 振動<sup>22</sup> (d) Aharonov-Bohm 振動の干渉経路<sup>23</sup>

これらの実験は、半導体二次元電子系においても行われていたが、全て金属のようにランダムな散乱が生じる系(平均自由行程  $l$  がサンプルサイズ  $L$  やコヒーレント長  $l_\phi$  よりも小さい系)でも観測可能なものであり、半導体二次元電子系の高移動度という性質を十分に生かした実験とは言えなかった。

バリステック伝導とコヒーレント伝導が両方実現している系( $L < l, l_\phi$ )での実験は、電子の運動量が途中で散乱を受けず電子の軌道が明確であることから、より直接的に電子波のコヒーレントな性質を導くことができる実験である。これらの観測には高移動度半導体二次元電子系が不可欠であるが、1988 年の Houten, Beeneker らによるコヒーレント電子フォーカシング効果の観測[Fig. 1-6(a)]<sup>13-15</sup> や、ヤングのダブルスリットの実験をコヒーレントな電子系に適用した 1991 年の Yacoby らの報告<sup>9</sup>において実現された。特に後者の実験は、電子波に対して光学の実験を模倣する試みの先駆けと言え、1.3.1 の項においても再度紹介する。更に、2000 年代に入ると、イメージング技術の進歩も相まって、電子のコヒーレント伝導を実際に可視化する実験も実現可能となっている[Fig. 1-6(b)]<sup>24-26</sup>。

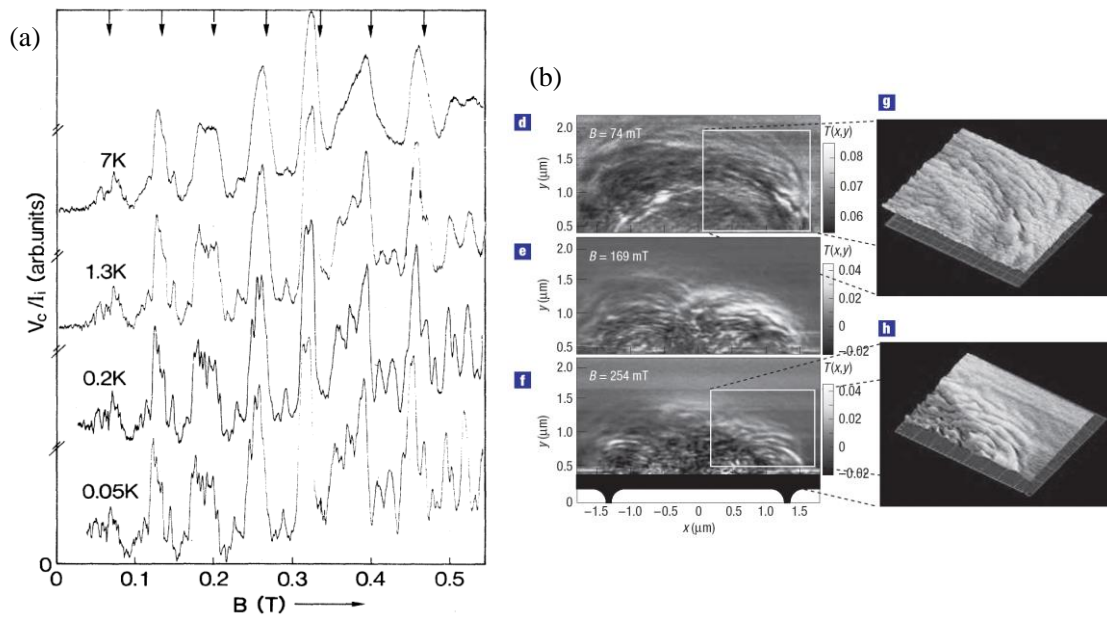


Fig. 1-6 コヒーレント電子フォーカシング効果(a)<sup>14</sup>とそのイメージング(b)<sup>26</sup>

#### 1.1.4 量子ホールエッジチャネル伝導

高移動度二次元電子系が示すもう一つの特徴的な量子輸送現象に、強磁場下での量子ホール効果が挙げられる。この現象は、二次元電子系において面直に磁場が加わると、ランダウ量子化が生じることによって発現する。具体的には、フェルミエネルギーがちょうどランダウ準位とランダウ準位の間にあるときに縦抵抗  $R_{xx}$  とホール抵抗  $R_{xy}$  と二端子抵抗  $R_{2t}$  がそれぞれ、



$$R_{xx} = 0 \quad (1.3)$$

$$R_{xy} = R_{2t} = \frac{1}{\nu} \frac{h}{e^2} \quad (1.4)$$

という値になる現象のことである( $h$ :プランク定数)[Fig. 1-7(a)]。ここで  $\nu$  はフィリングファクターと呼ばれ、フェルミエネルギーが何番目のランダウ準位(縮退したものも全て別々にカウント)の直上にあるか、ということを示す指標である。

量子ホール効果は Klitzing らが 1980 年に初めて実験的な観測に成功し<sup>2</sup>、特にホール抵抗の値に関しては、一定の大きさ以上の試料であれば、どのような試料幅・長さであっても(1.4)のようにプランク定数と電荷素量という物理学の基本定数のみで記述されるという点が大きな発見とされている。von Klitzing 定数と呼ばれる

$$\frac{h}{e^2} = 25812.807557 \, \Omega \quad (1.5)$$

というこの値は、量子ホール効果を用いることで 10 桁以上の精度で正確に求まることから、抵抗値の国際標準としても利用されており、Klitzing には本発見により 1985 年にノーベル物理学賞が授与されている。

さて、この量子ホール状態下において二次元電子系の量子伝導は、ゼロ磁場下とは全く異なるエッジチャネル伝導という形態を取る。バルク部分で磁場によって量子化したランダウ準位は、試料の端においては、閉じ込めポテンシャルにしたがって発散する。前述のように、量子ホール状態ではフェルミエネルギーはランダウ準位間に存在するが、これはバルク領域における議論であり、試料の端においては、閉じ込めポテンシャルによる準位の発散に伴って、準位とフェルミエネルギーが交差する。つまり、バルク領域において系は絶縁的である(量子ホール絶縁体)が、エッジ領域においてはランダウ準位とフェルミエネルギーが交差したところのみキャリアが伝導可能になる[Fig. 1-7(b)]。このチャネルのことをエッジチャネルと呼ぶ。

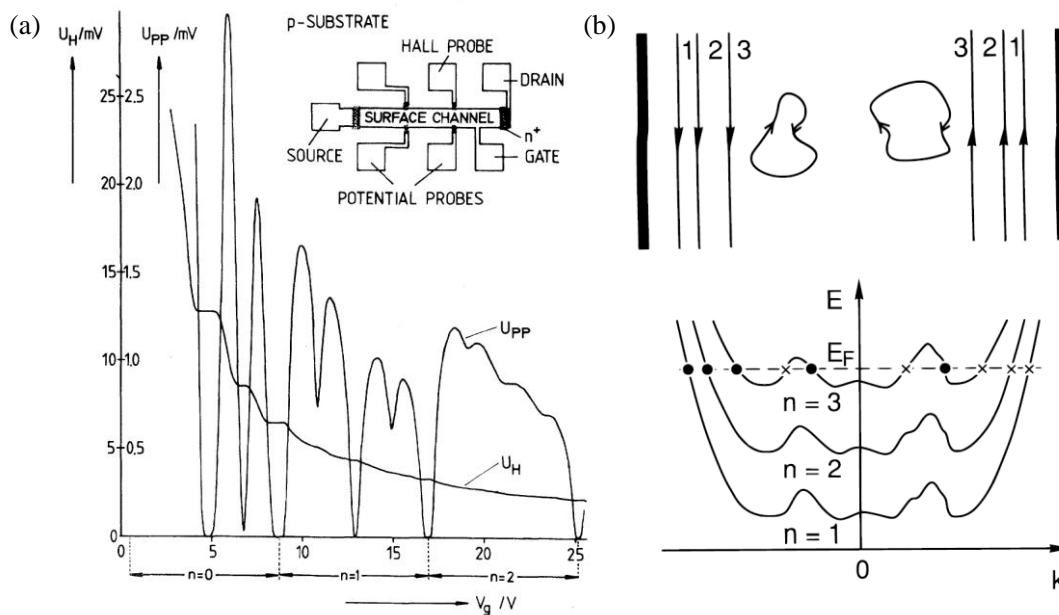


Fig. 1-7 量子ホール効果(a)<sup>2</sup> とエッジチャネル描像モデル(b)<sup>23</sup>

このエッジチャネルは、磁場下のキャリアのサイクロトロン運動が試料端をスキッピング運動しながら進む様子が量子化されたものと捉えることができ、大きな特徴は、進行方向が必ず一方向であり、後方散乱がトポロジカルに禁制となっていることにある。つまり、このチャネルに乗って伝導している電子は非常に巨視的なスケールで散乱を受けずに試料の端を伝搬することができる。このことは量子ホール状態において縦抵抗  $R_{xx}$  がゼロになっていることにも反映されており、更に、それぞれのエッジチャネルが量子化コンダクタンス  $e^2/h$  の伝導度を持つと考えることで、ホール抵抗  $R_{xy}$  が Klitzing 定数に量子化されることも説明できる<sup>27</sup>。

このように量子ホール効果が実現している系では、巨視的に後方散乱の抑制されたエッジチャネル伝導が実現することと、伝導度が量子化されていることが大きな特徴である。

## 1.2 グラフェンにおける量子輸送

前節のように半導体二次元電子系という系は、系の次元性の違いやその超高移動度な性質から、多彩な新規の量子現象・機能を示し、20 世紀後半の物性物理・応用物理の世界で極めて重要な役割を果たした。21 世紀に入って、この二次元電子系というフィールドに新たな風穴を開けた存在が、グラフェンである。本節ではこの新物質について概観する。

### 1.2.1 グラフエン

グラフエンは、炭素がハチの巣上の格子を組んだ、原子層一層分の単分子膜である。層状化させればグラファイトになり、丸めればカーボンナノチューブになり、球状にすればフラーレンになることから[Fig. 1-8(a)]<sup>28</sup>、多くの炭素系材料の基本要素となる系として、古くから詳細な電子状態計算が理論的に行われてきた<sup>29</sup>。特に、バンド構造が、K点において線形かつギャップレスな構造を有する[Fig. 1-8(b)]ことから、キャリアが相対論的な擬粒子 **Dirac fermion** として振る舞うことが予測され<sup>8</sup>、その単純な構造の裏に隠された興味深い性質が注目を集めていた。

一方で、一原子層のみという構造から、単層グラフエンを実験的に単離することは困難を極めた<sup>28</sup>。二次元の物質は熱力学的に不安定であるという理論<sup>30</sup>も相まって、グラフエンは理論家たちのみが扱う机上の物質と捉えることが、長年の間常識とされてきた。

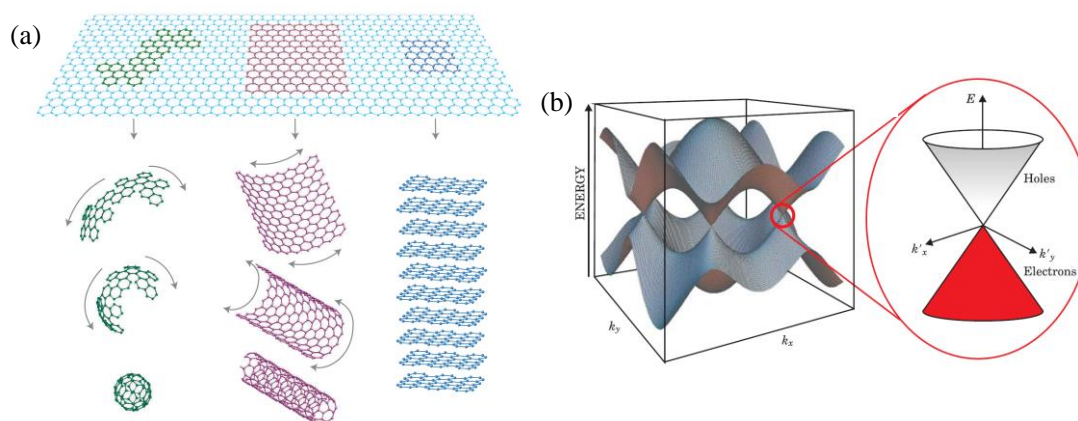


Fig. 1-8 (a) Geim らの初期のレビュー論文において、グラフエンは”Mother of all graphitic forms”として紹介されている<sup>28</sup> (b) グラフエンのバンド構造<sup>8</sup>

### 1.2.2 グラフエンの実験的単離の成功とその爆発的な広がり

そのような状況の中でグラフエンの研究は、2004 年に英マンチェスター大学の Geim, Novoselov らが、スコッチテープを用いたグラファイトの劈開法という極めて原始的な方法で、グラフエンの単離に成功したという報告<sup>31</sup>によって、実験的に一躍脚光を浴びるようになる。翌年には、Dirac 電子系特有の半整数量子ホール効果(1.2.3 で詳述)の観測に、Novoselov らと Zhang らがほぼ同時に成功し<sup>32,33</sup>、確かに単層が単離できていることが証明された。相対論的電子系が、二次元のナノスケールの物質において実現しているということの意味し、基礎物性物理の分野における一大発見と言えるだろう。

また、グラフエンという物質の興味深い点は、その材料の特性を示すパラメーター、具体的には引張強度・ヤング率・電子移動度・熱伝導率全てにおいて、多くの典型的な材料より

も優れていることにある[Fig. 1-9]<sup>34</sup>。このことから、応用分野、特に応用物理のみならず、材料工学・機械工学・生物学などの幅広い分野から大きな注目を集めるようになった。

Geim と Novoselov には、グラフェンの実験的単離というこの業績に対して、発見からわずか6年後の2010年に、ノーベル物理学賞が授与されている。

#### SUPER-MATERIAL

Graphene stands out for its superlative mechanical, thermal and electronic properties.

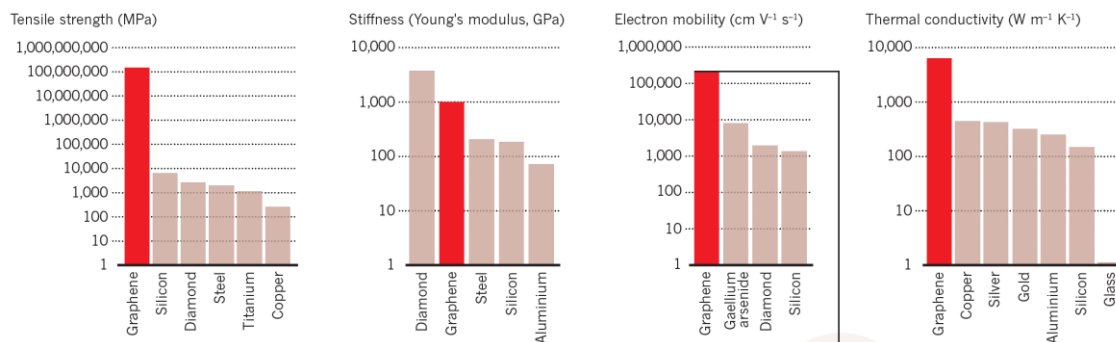


Fig. 1-9 Graphene is super material<sup>34</sup>

### 1.2.3 グラフェンの特徴 ～輸送現象の観点から～

グラフェンがいかに様々な観点から優れた物質であるかは既にいくつか論じてきたが、特に量子輸送現象という観点から注目すべき性質について、以下で紹介する。

#### 両極性電界効果

グラフェンはギャップレスなバンド構造を有し、不純物ドーピングや電界効果などが無い理想的な状態においては、フェルミエネルギーがちょうど伝導体と価電子帯がクロスする点(Dirac 点)に存在する。つまり熱励起を無視すると intrinsic にはキャリア密度ゼロであり、そこからバックゲートなどで電界を加えていくと p 型から n 型まで自在に変調可能である[Fig. 1-10]。このような性質のことを「両極性電界効果」と呼び、ある極性のキャリアしか実現しない通常の半導体や、両極性が実現可能でも p 型領域から n 型領域に遷移するために大きなバンドギャップを超えなければいけない物質とは、大きく性質が異なっている。

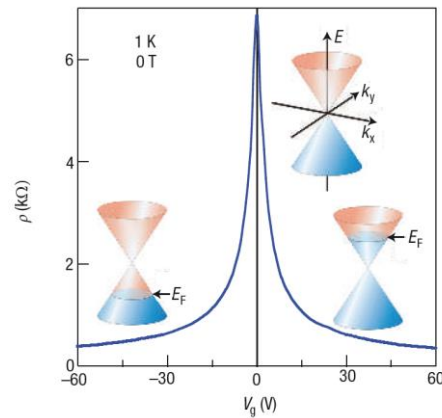


Fig. 1-10 両極性電界効果<sup>28</sup>

### 空乏層のない pn 接合

ゲート電圧による両極性電界効果を応用し、局所ゲート構造を用いた電界制御で pn 接合を作製することもできる[Fig. 1-11]。特にギャップレスなバンド構造を反映して、この pn 界面におけるキャリア密度分布は、ゲート配置によるキャパシタンスモデルのみで説明可能な電界分布となり、界面に空乏層が形成されない。このような系は、通常の半導体で作製される pn 接合では実現困難であり、p 領域と n 領域が極めて近接した領域での物理現象を観測できる興味深い系と言える。

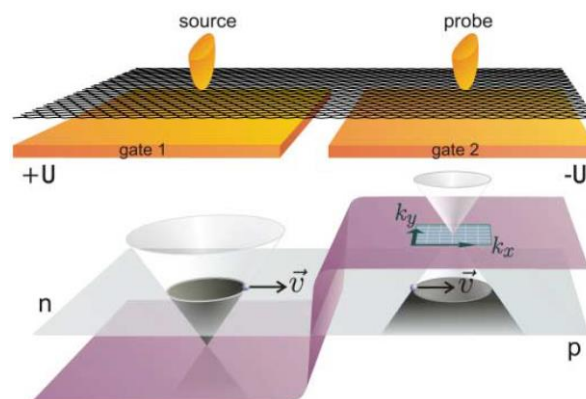


Fig. 1-11 局所ゲート構造による空乏層のない pn 接合<sup>35</sup>

### 超高移動度@室温

Chen らは、グラフェンの抵抗率に対するフォノン散乱の寄与を計算し、それがキャリア密度に依らず、室温において  $30 \Omega$  程度にしかならないことを示した<sup>36</sup>。グラフェンの線形なバンド構造に由来した特徴的な性質であり、この性質から、理論的には室温においても  $200,000 \text{ cm}^2/\text{Vs}$  という極めて高移動度な系が実現可能であることが示された。1.1.1 で紹介した従来の超高移動度半導体二次元電子系では、Fig. 1-12 に示すように高温になるとフォノンの影響が顕著になって、移動度は  $10,000 \text{ cm}^2/\text{Vs}$  程度まで低減してしまうことから、グラフェンが室温の移動度という観点で明らかに優れていることが分かる。

また、現存する室温高移動度の系と比べても、InSb の  $70,000 \text{ cm}^2/\text{Vs}$  という値<sup>37</sup>を超えているだけでなく、InSb は undoped の半導体であり高キャリア密度が期待できないのに対して、グラフェンは前述したようにゲート電圧によって  $10^{12} \text{ cm}^{-2}$  オーダーのキャリア密度は容易に実現可能である。そのため、(1.1)(1.2)を用いた平均自由行程計算をすると、室温でもサブミクロンスケールの平均自由行程が実現しうることが分かる。グラフェンの発見からわずか3年後の2007年に室温において量子ホール効果が観測された<sup>38</sup>ことにも代表されるように、従来の系では室温における実現が不可能な量子輸送現象が、グラフェンでは容易に観測できることが明らかになってきている。

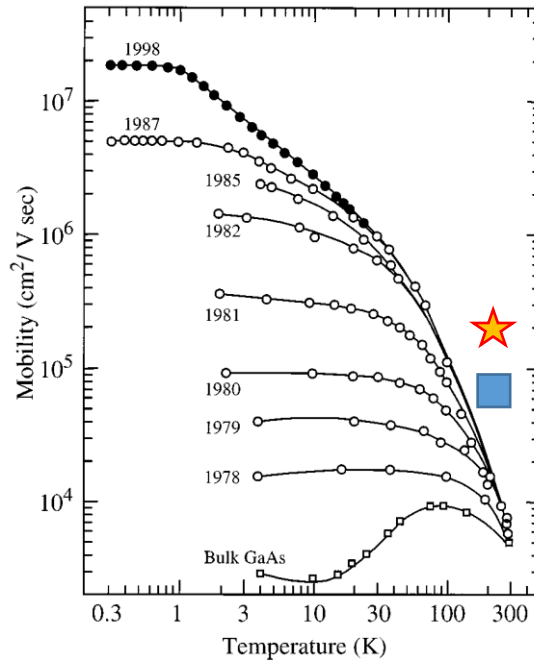


Fig. 1-12 高移動度半導体二次元電子系の移動度の温度依存性<sup>7</sup>(数字は達成年)と室温移動度の InSb のデータ<sup>37</sup> (青四角)およびグラフェンにおける理論限界値<sup>36</sup> (赤星)

#### 半整数量子ホール効果

1.1.4 で概説した量子ホール効果であるが、通常の半導体二次元電子系においては、フィリングファクター  $\nu = 2n = 2, 4, 6, \dots$  (スピン縮退のみ) もしくは  $\nu = 4n = 4, 8, 12, \dots$  (スピン+バレー縮退) の時に観測される ( $n$ : 整数)。しかしグラフェンにおいてはこのシーケンスが

$$\nu = 4(n + 1/2) = 2, 6, 10, \dots \quad (1.6)$$

となる[Fig. 1-13(a)]。量子数が  $1/2$  だけずれていることが大きな特徴であり<sup>39</sup>、Dirac fermion がサイクロトロン運動をすることで、擬スピンも  $2\pi$  だけ回転し、非自明なベリー位相を波動関数が得ることによって生じると解釈することができる<sup>40</sup>。1.2.2 で紹介したように、この特異なシーケンスでの量子ホール効果(半整数量子ホール効果)が観測されたことで、はじめて単層グラフェンの作製が実証された<sup>32,33</sup>。

また、通常の系のランダウ量子化は、ゼロエネルギー付近に準位を持たないが(そのため

$\nu = 2n$  or  $\nu = 4n$  という  $\nu = 0$  を満たすシーケンスとなる)、(1.6)式から、グラフェンではゼロエネルギーにランダウ準位が存在することになる[Fig. 1-13(b)]。

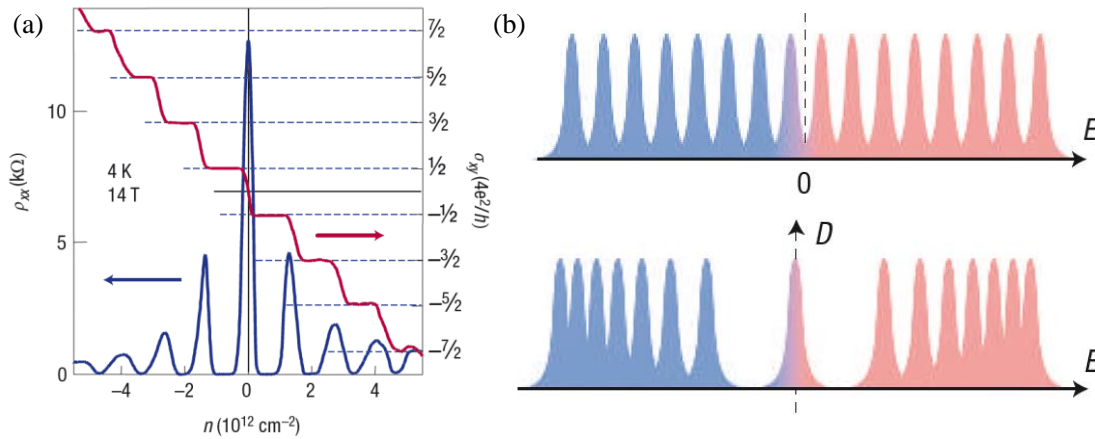


Fig. 1-13 (a) 半整数量子ホール効果 (b) 半導体二次元電子系(上)とグラフェン(下)のランダウ量子化の相違<sup>28</sup>

#### 1.2.4 高品質化に向けた課題

このように、瞬く間に実験物性物理の表舞台に現れたグラフェンであったが、よりグラフェン本来の物性を観測したり、それを応用したりするには、高移動度を示すデバイス作製という実験的な課題も浮き彫りになってきた。

そもそもグラフェンの研究においては、 $\text{SiO}_2$  という基板の上にグラフェンを劈開法により転写することで実験が行われてきた。この構造が利用されてきた背景としては、1.1.1 で示した Si-MOSFET 構造と同様に、ゲート電圧印加によるキャリア密度制御が可能であるという利点に加えて、 $\text{SiO}_2$  層の厚みを適正な値に設定し光学干渉を利用することで原子層一層という極めて薄いグラフェンを顕微鏡下で可視化できる<sup>41</sup>、という事情があった。

しかし一方で、 $\text{SiO}_2$  は単結晶 Si を表面熱酸化することによって作成されるアモルファス結晶である。そのため、表面が凸凹で荒れていること・ダングリングボンドが存在すること・荷電不純物が多いこと・フォノンのエネルギーが低いことなどから、その上に転写されるグラフェンチャネルに多くのキャリア散乱体を誘起し、グラフェンの移動度の低下を招いていた。グラフェン本来の物理を見るためには更なる移動度の向上が求められていた。

移動度向上に向けてまず提案されたのが **suspended** 構造である。文字通りグラフェンを基板から宙つりの構造[Fig. 1-14]にするために、基板の影響を排除することができ、移動度は一桁向上した<sup>42</sup>。それによりバリスティック伝導<sup>43</sup>・分数量子ホール効果<sup>44,45</sup>・量子化コンダクタンス<sup>46</sup>など  $\text{SiO}_2$  上グラフェンでは観測することのできなかつた輸送現象が観測された。現在に至るまで、この **suspended** 構造を利用して実験を行うグループはいくつか存在する<sup>47-49</sup> が、本構造は力学的に脆弱であることや、キャリア密度を十分に入れることができ



ないことから、実験的に汎用性の高い構造であるとは呼べず、基板がサポートする、より安定な構造は依然求められていた。

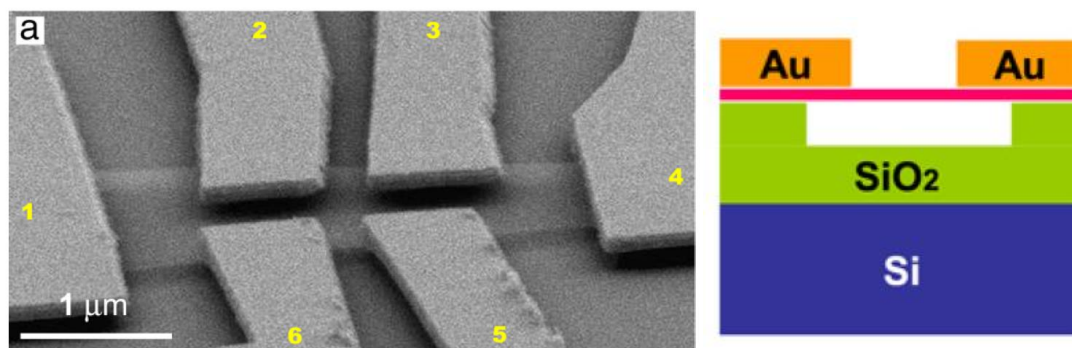


Fig. 1-14 suspended グラフェンの SEM 像(a)と模式図(b)<sup>42</sup>

この課題を解決すべく、2010 年に Dean らが h-BN という物質をグラフェンの基板に用いる構造を提案<sup>50</sup>した。この構造は上記の欠点を全て解決した理想的な構造であったが、作製技術が非常にトリッキーなものであり、筆者が本研究を始めた 2012 年 4 月において、この系を用いた実験結果を報告したグループは世界でも数グループ<sup>50-54</sup>に限定されていた。更なる領域の発展には、作製技術の進歩と歩留まりの向上が急務であったと言える。この系については第 2 章から詳細に論じていく。

## 1.3 量子輸送現象の電子光学的制御

ここまで、高移動度二次元電子系で実現する特徴的な量子輸送現象と、グラフェンという新物質の可能性と課題を論じてきた。本研究では、ここまで論じてきたような量子輸送現象を、グラフェンにおいて「電子光学的」に制御することを目指す。本節ではこの「電子光学」のコンセプトについて、まず半導体二次元電子系における先行研究を紹介し、その後グラフェンに適用する利点・期待される物性や機能について論ずる。

### 1.3.1 半導体二次元電子系における電子光学 ”Electron optics”

超高移動度を示す二次元電子系においては、1.1.2 や 1.1.3 で示したように、キャリアがバリスティック(直進しながら)およびコヒーレント(位相を保って)に伝搬する。この「直進性」と「干渉性」という性質から、電子は「光」と同様の振る舞いを固体中において実現していると捉えることができる。更に、このアナロジーをより積極的に活用していけば、以下で示すように電子波の屈折や干渉などをあたかも光波を操るよう制御できることになり、電子系におけるレンズや干渉計など「光学デバイス」の実現が可能になるとも言える。このコ



ンセプトは電子光学(“Electron optics”)と呼ばれ、半導体二次元電子系の高移動度化が進むにつれて注目を集めるようになったフィールドである。

### バリステック伝導を用いた Lensing

電子はフェルミ波数  $k_F$  を持つ電子波として振る舞う。この  $k_F$  は局所的なゲート構造により変調可能であるため、 $k_F$  の異なる(例えば  $k_{F1}$  と  $k_{F2}$ )界面を作製することができる。この界面に対して電子波が入射してくると、通常の光波が異なる媒体に入射した時と同様に、界面平行成分の波数  $k_y$  を一定にするために入射角  $\theta_1$  と屈折角  $\theta_2$  が以下の関係を満たしながら屈折を起こす。

$$k_{F1} \sin \theta_1 = k_{F2} \sin \theta_2 \quad (1.7)$$

この屈折の法則いわゆる“Snell の法則”が実現することから、電子波においても屈折をうまく制御することで **Lensing** が実現可能であるという報告が 1990 年に二つのグループから発表された[Fig. 1-15]<sup>55,56</sup>。電子系の移動度が低く途中で散乱を起こしてしまうと、波の進行方向が変化してしまうので、このような機能は実現不可能であるが、1.1.1 および 1.1.2 で示したような超高移動度二次元電子系におけるバリステック伝導の実現により、観測可能になった結果であると言える。

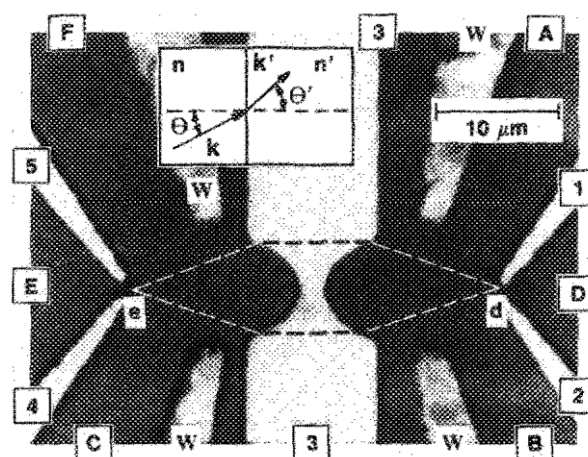


Fig. 1-15 Electrostatic lens<sup>55</sup>

このように、バリステック伝導を用いた **Electron optics** の実験は、一時期注目を集めたが、近年は研究報告例が減少し一旦下火となっている。単純に電子波をキャリア密度の異なる界面で屈折させるだけでは、「光学実験の単なる模倣」という範疇から抜け出すことができず、新しい物理が見えづらいことや、半導体二次元電子系においてはバリステック伝導を保つために極低温環境が必要で、応用可能性が極めて小さいことが、その後深く研究が進まなかった大きな理由と言える。

### コヒーレント伝導を用いた干渉計

一方で「波」の性質をより能動的に利用した、光学における「干渉計」を模倣した実験は、より盛んに行われるようになった。1.1.3 でも紹介したが Yacoby らは、バリスティックな系に対してヤングのダブルスリットの実験を模倣した系[Fig. 1-16(a)]を作り、電子波の「干渉計」の作製に成功した<sup>9,57</sup>。彼らは更に、干渉計の中に量子ドットを埋め込んだ構造[Fig. 1-16(b)]も作製し、量子ドットを電子が通過する際に電子の位相がどのような影響を受けるかについての考察を加え始めた<sup>58</sup>。これに類する研究は、瞬く間に注目を集め<sup>59-61</sup>、現在に至るまでに近藤状態に置かれた量子ドットの性質<sup>62,63</sup>や、電気伝導における Fano 効果<sup>64,65</sup>など、様々な興味深い量子輸送現象下での電子波の位相の性質が調べられてきている。

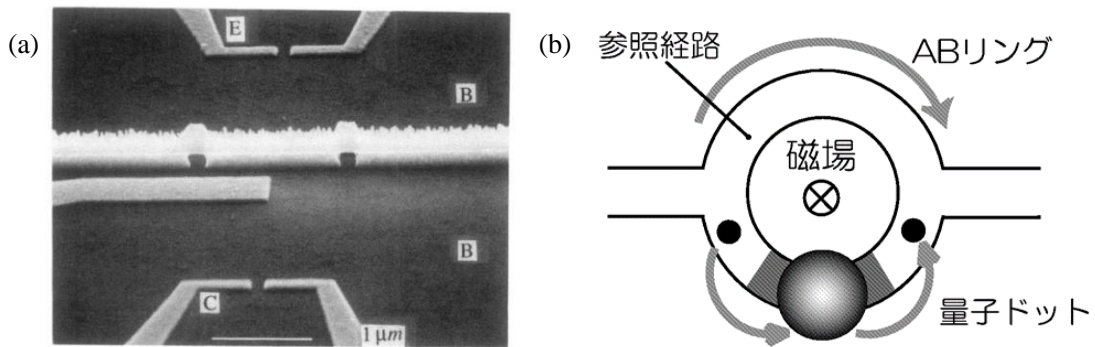


Fig. 1-16 (a) 電子波のダブルスリットの実験系<sup>57</sup> (b) AB 干渉計+量子ドット<sup>65</sup>

### 量子ホールエッジチャネル伝導を用いた干渉計

このような盛り上がりを見せていた電子波の干渉計の実験であるが、例えばダブルスリットの実験においては複数のチャネルがスリット内に存在することから、その平均化を受けて観測される振動振幅は非常に小さかった。また、強磁場を印加すると干渉経路間の対称性が崩れることから、干渉計としての機能が失われてしまっていた。

そこで提案されたのが、量子ホール状態において実現するエッジチャネル伝導(1.1.4 参照)を利用して干渉計を作るというアイデア<sup>66</sup>である。実験的には、Ji らが Mach-Zehnder 干渉計という形で初めて作製に成功し、極めて高い感度での干渉模様を観測した[Fig. 1-17]<sup>67</sup>。その後、量子ホールエッジチャネルを用いた AB 干渉計の実現<sup>68</sup>・コヒーレンス長の算出<sup>69</sup>・エッジ速度の算出<sup>70</sup>などの同様の系を用いた電子干渉に関する報告が相次ぎ、最近では分数量子ホール状態における非アーベル統計に関する実験<sup>5</sup>など、深遠な物理現象の理解に向けて有望な系と見なされている。

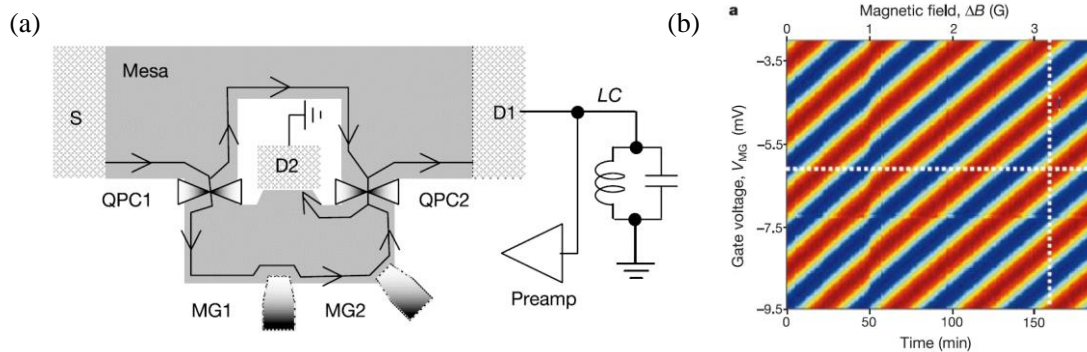


Fig. 1-17 量子ホールエッジチャネルを用いた Mach-Zehnder 干渉計(a)とそこで見られる明瞭な干渉模様(b)<sup>67</sup>

### 1.3.2 グラフェンにおける電子光学 “Dirac fermion optics”

このように高移動度半導体二次元電子系の世界で注目を集めていた”Electron optics”という概念であるが、グラフェンの登場により、再度理論的に脚光を浴びるようになる。グラフェンの Dirac 電子系の性質を活用することにより、従来の半導体二次元電子系では実現しないような「光学」、いうなれば”Dirac fermion optics”という奥深いフィールドを開拓できる可能性がいくつも示唆されるようになったからだ。以下にその一端となるグラフェン特有の「光学的」に興味深い性質を列挙する。

#### 「負の屈折」

グラフェンにおいてもキャリア密度の異なる界面では、電子波は 1.3.1 で議論したように通常のスネルの法則に従って界面平行成分の波数  $k_y$  が保存するように屈折する。それに伴い  $k_x$  の値は変化するが、通常の nn' 接合においてはこの  $k_x$  の符号は変わらない[Fig. 1-18(a)]。一方で、1.2.3 で論じた空乏層のない np 接合に対してバリスティックな電子が入射してきた場合は、少し状況が異なる。電子波の進む方向は群速度  $\vec{v}_g = dE/d\vec{k}$  ( $E$ :エネルギー,  $\vec{k}$ :波数ベクトル)で定義されるため、n 型伝導つまり伝導帯の状態を考えると  $\vec{v}_g \parallel \vec{k}$  であるが、p 型伝導つまり価電子帯の状態を考えると  $\vec{v}_g \parallel -\vec{k}$  である。つまり、 $k_y$  を保存しながら  $v_x$  の方向を保つ(進行波であることを維持する)ためには Fig. 1-18(b)のように  $k_x$  の符号も変化しなければならない。これによって、屈折角の符号と入射角の符号が逆になり、電子波が「負の屈折」を示すことになる<sup>35</sup>。

負の屈折現象は、光学の世界において、メタマテリアルという特殊な構造を持つ物質を用いることで実現が報告されてきたが<sup>71</sup>、pn 界面という極めてシンプルな系で電子波に対してこのような現象が起きることは興味深い。

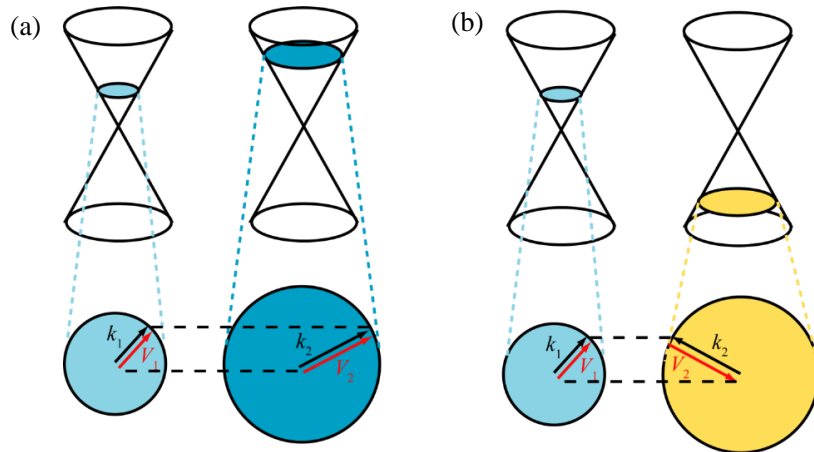


Fig. 1-18 nn'界面における通常の屈折(a)と pn 界面における負の屈折(b)

#### Klein tunneling と Klein collimation

グラフェンの pn 接合においては、「屈折」だけでなく「透過」現象も特徴的である。まず、グラフェンの実験的単離よりはるかに前から理論的に注目を集めていた現象が **Klein tunneling** である<sup>72)</sup>。この現象はグラフェンの相対論的な物理自由度である擬スピンの保存することによって、pn 界面において電子波が垂直に入射すると、そのポテンシャル高さの大きさに依らず、必ず透過率 1 で透過するという現象である[Fig. 1-19(a)]。相対論的量子力学の世界では **Klein paradox** として予言されていた有名な現象であったが<sup>73)</sup>、通常の高エネルギー物理学の世界では、膨大なエネルギー下(「ブラックホールを蒸発させるオーダーのエネルギーが必要」と論ずる文献もある<sup>72)</sup>)でないと観測は不可能な現象として知られていた。そのような透過現象がナノスケールの半導体の世界で実現するという事は極めて興味深い。

また、nn'接合の時と違い、pn 接合が形成されると途中でキャリア密度が非常に小さい領域を電子が透過することになり、一般的に入射角が非ゼロの場合は、エバネッセント(トンネル)伝導をしなければならない[Fig. 1-19(b)]。このことに起因して、pn 接合の透過率の角度依存性は、nn 接合のそれよりも極めて急峻であることも分かっている。つまりキャリアが pn 接合を透過すると、垂直出射にコリメートされやすいことを意味し、この現象は **Klein collimation** とも呼ばれている(3.1.2 で詳述)。

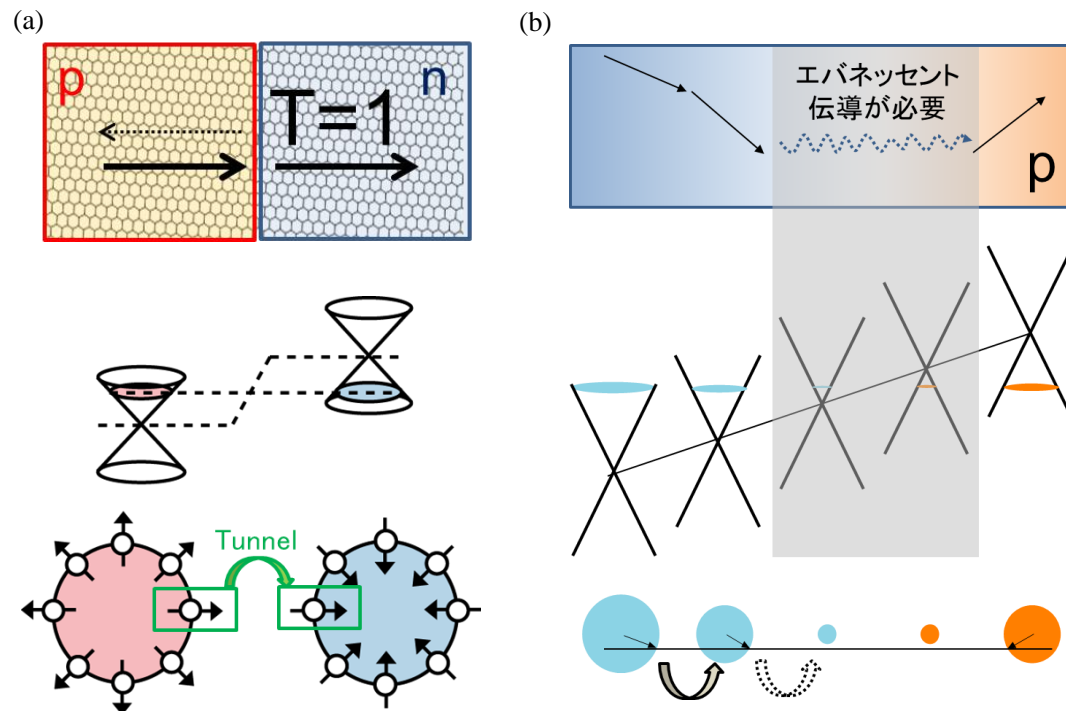


Fig. 1-19 (a) Klein tunneling (b) Klein collimation

### 室温バリステックの可能性

1.2.3 でも議論したように、グラフェンは室温においてもフォノンの影響が極めて小さいことから超高移動度を実現することが原理的に可能である。更に、電界効果によってキャリア密度を十分に増加させることが可能なことから、平均自由行程がサブミクロンメートルに達しうる。このことは、バリステック伝導を用いた **Electron optics** が室温においても実現可能であることを意味する。

従来の半導体二次元電子系においては、温度を高くするとバリステック性が失われてしまうので電子光学を用いたバリステックデバイスは室温においては動作不可能であった。このことが、1.3.1 で論じたように **Electron optics** の概念が下火になった理由の一つでもある。グラフェンはこの点を解決しうると言え、室温においても **Electron optics** の概念を利用したバリステックデバイスが実現し、電子デバイス応用への可能性も議論可能になるだろう。

### pn 界面における co-propagating な量子ホールエッジチャネル配置

1.1.4 で議論したように量子ホール効果が実現している系では、キャリアはスキッピング軌道の量子化として、試料端をエッジチャネル伝導する。ここでは、この伝導形態がグラフェン特有の pn 接合においてどう振る舞うかを考えてみる。古典的なサイクロトロン運動の

み考えると、 $p$  型部のサイクロトロン運動と  $n$  型部のサイクロトロン運動は逆回りであるので、 $pn$  界面においては、時計回りの  $p$  型由来のエッジチャネルと反時計回りの  $n$  型由来のエッジチャネルがミックスしながら同じ方向に進む「co-propagating」なエッジチャネル配置が実現する[Fig. 1-20(a)]。

この配置自体、グラフェン特有で非常に興味深いのが、グラフェンの高移動度化が実現すると、 $N = 0$  ランダウ準位の多体効果による縮退分離によって、 $p$  型由来のチャネルと  $n$  型由来のエッジチャネルが量子ホール絶縁領域を挟んで空間的に分離するようになる [Fig. 1-20(b)] (5.1.3 で詳述)。このようにキャリア符号の異なる二つのチャネルが極めて近接しながら同じ方向に伝導する系は、より新規の量子物性を示す可能性があり、注目に値する。

また、前項で議論した「量子ホールエッジチャネル伝導を用いた干渉計」を作製する上で、エッジチャネルの配置をいかに工夫するかが非常に重要であると言えるが、この  $pn$  界面における特徴的なエッジチャネル配置は、グラフェン特有のエッジチャネル干渉計を作製する上で有用になると考えることもできる。実際、第 5 章においては、このアイデアが利用されている。

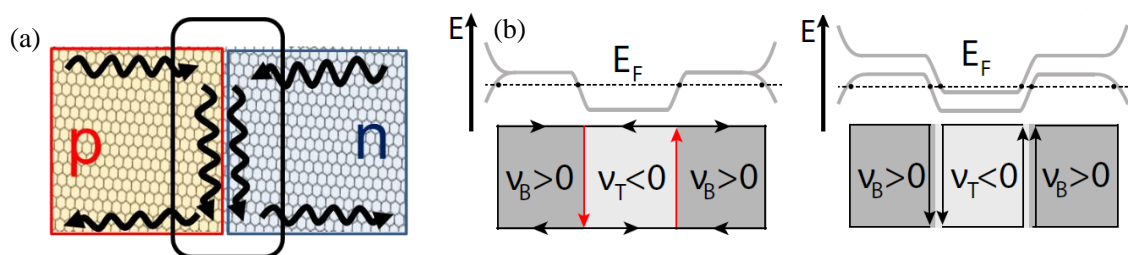


Fig. 1-20 co-propagating なエッジチャネル(a)とランダウ準位縮退分離によるエッジチャネルの空間分離(b)<sup>74</sup>

### 1.3.3 Dirac fermion optics で実現が期待されている物性・機能

前項で示したグラフェンの「光学的」な性質をうまく組み合わせることで、“Dirac fermion optics”と言うべき新しい概念に基づいた様々な新規物性や機能が発現しうると予測されている。以下にその代表例を列挙する。

#### Veselago lense

光学のフィールドにおいて、負の屈折を用いると、Veselago lens と呼ばれる収差がゼロの perfect lens が作れるという提案が発表されており<sup>75</sup>、グラフェンにおいても、電子波にとつての Veselago lens が作れるという理論提案がされている[Fig. 1-21]<sup>35</sup>。Dirac fermion optics の概念が誕生した初期の段階での理論提案であり、そのキャッチーなコンセプトから、新機能デバイス実現のベンチマークとして非常に良く取り上げられている。



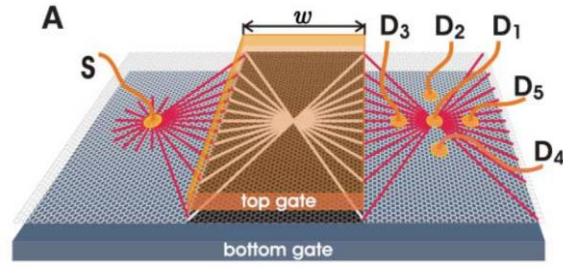


Fig. 1-21 負の屈折を利用したグラフェンにおける電子波の Veselago lens<sup>35</sup>

### Switching デバイス

界面における「全反射」の概念を利用することで電子波の透過を抑え、接合の透過率をゼロにするというアイデアである。当初はデバイス中にアンチドット構造を作製した上で負の屈折現象を利用する方法[Fig. 1-22(a)]<sup>76</sup>が提案されていたが、後になり、傾斜をつけた界面を作製した上で Klein collimation を利用する方法[Fig. 1-22(b)]<sup>77</sup>がより効率が良いことが分かり、いくつかのグループからの計算結果<sup>78-80</sup>が報告されている。本研究においても、後者のアイデアを第3章において利用している。

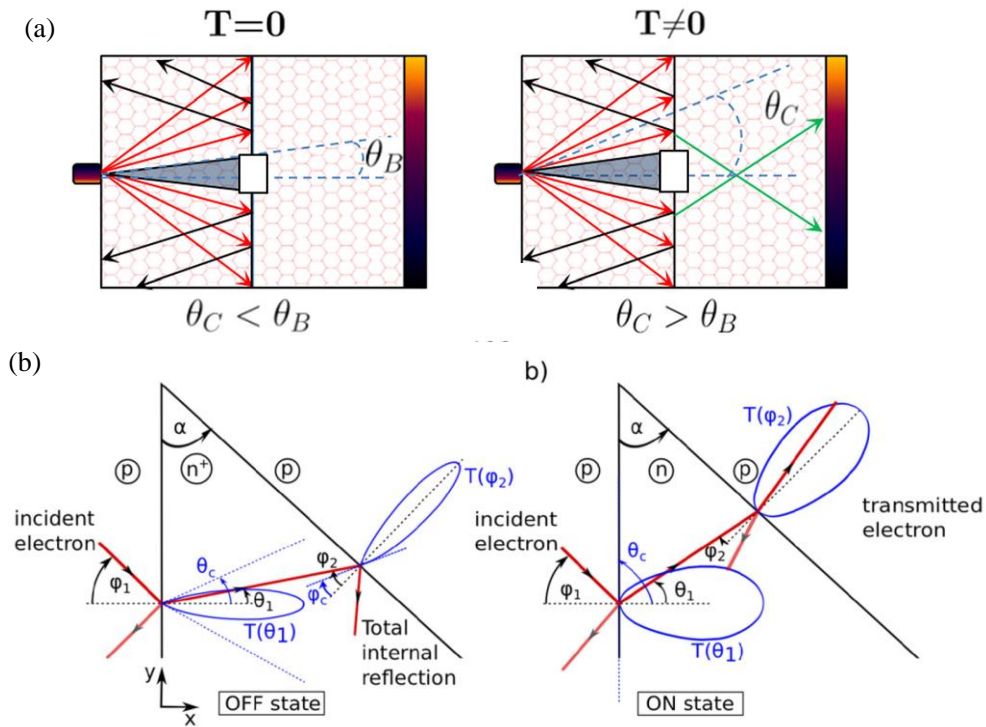


Fig. 1-22 (a) アンチドット系を利用した switching<sup>76</sup> (b) 傾斜界面を利用した switching<sup>80</sup>

### Wave guide

pnp 接合に対して界面平行方向にキャリアを流すことで、電子にとっての waveguide を作製することも可能である。グラフェンは光子の分散関係と同様の線形のバンド構造を

有することから、光の waveguide での伝搬と極めて類似した性質を有するという理論提案<sup>81</sup>がある一方で、Klein collimation によって全反射の効き方が異なり閉じ込め効率に変化するという提案[Fig. 1-23(a)]<sup>82</sup>もなされている。そのほかにも、通常の光学 waveguide と比べると、Klein tunneling の影響で存在する mode が異なったり<sup>83</sup>、mode が表れる閉じ込めポテンシャルの閾値が異なったり<sup>84</sup>、擬スピンの影響で全反射の際の Goos-Hänchen シフトに影響が出るという提案[Fig. 1-23(b)]<sup>85</sup>もあり、グラフェン特有の waveguide の様子が理論的に多く研究されている。

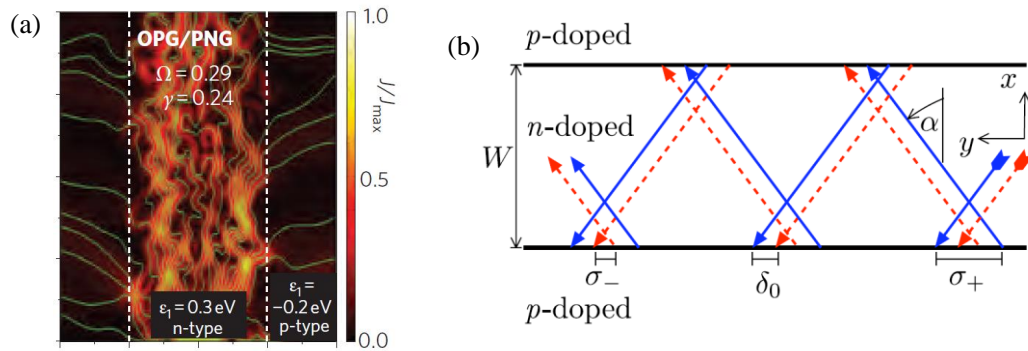


Fig. 1-23 (a) 全反射と Klein collimation を使った waveguide<sup>82</sup> (b) グラフェンにおける Goos-Hänchen 効果<sup>85</sup>

### Collimation

光学の概念を用いて自在に電子波の動きを制御するには、全ての電子が可能な限り同じ方向に出射する(コリメートしている)ことが望ましい。前項で Klein collimation によって pn 界面単体で電子波の垂直方向へのコリメーションが効果的に行われると議論したが、更に、超格子構造を利用したり[Fig. 1-24(a)]<sup>86</sup>、負の屈折を利用したり[Fig. 1-24(b)]<sup>87</sup>することで、より指向性の高いコリメーションが実現するという理論提案もなされている。

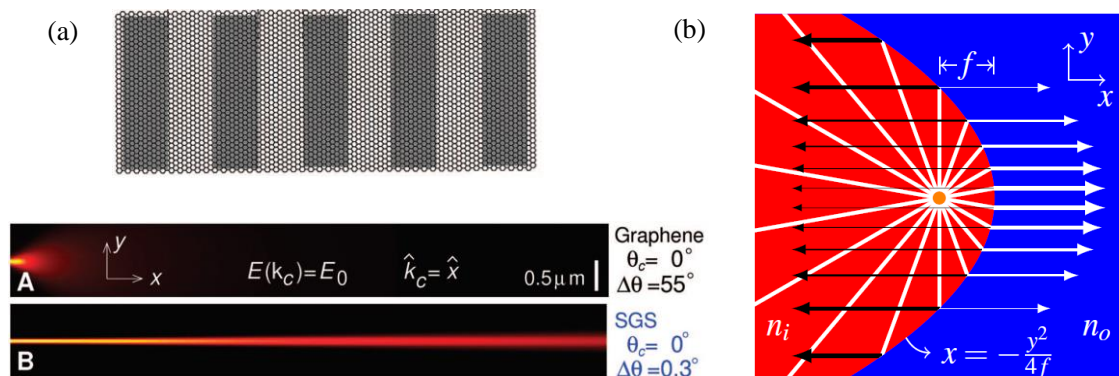


Fig. 1-24 超格子構造(a)<sup>86</sup>と負の屈折(b)<sup>87</sup>を用いたコリメーション



## Cloaking

負の屈折率を持つ媒体をドーナツ形に配置し、そこに波を入射させると、波は回り込みを起こして、ドーナツの内側の影響を受けない。この現象は **cloaking** と呼ばれ、**detect** 側には内側の様子が分からないことから、あたかも「透明マント」として機能する[Fig. 1-25]<sup>88</sup>。グラフェンの **pn** 接合も、同様の構造にすることで電子波にとっての負の屈折を利用した **cloaking** を実現することが、原理的に可能になると考えられる。

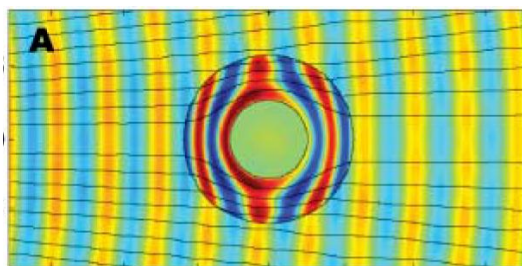


Fig. 1-25 Cloaking<sup>88</sup>

## 1.4 本研究の目的 ～Dirac fermion optics に向けて～

ここまでで紹介したように、“Dirac fermion optics”とも呼ぶべきグラフェンにおける電子光学的な量子輸送現象の制御が実現すれば、グラフェン特有の極めて広範で興味深い物理現象と機能の発現が期待される。

一方で、このコンセプトを実現するには、電子が光波のように振る舞うこと、つまりバリステックもしくはコヒーレントな系が必要不可欠であるが、1.2.4 で議論したように、筆者が本研究を始めた 2012 年当初においては、グラフェンにおける電子物性の実験は、低品質なグラフェン/SiO<sub>2</sub> 構造を用いたものが主流であった。

電子光学を実験的に実現するには、まず、

- 高移動度試料の作製とそれに伴うバリステックおよびコヒーレントな伝導の実現が必要不可欠であり、その後、
  - 電子波制御を行うためのナノ構造(pn 接合、局所ポテンシャル変調、エッジチャネル配置)の作製
  - 屈折・反射・干渉・回折など基本的な「光学」機能のデモンストレーション
- という取り組みが必要になると考えられた。

本博士研究では、主に上記の三点の整備に取り組むことによって、グラフェンの量子輸送現象のフィールドに、新たに **Dirac fermion optics** と呼ぶべき新概念が実現可能であることを明示することを目的とする[Fig. 1-26]。

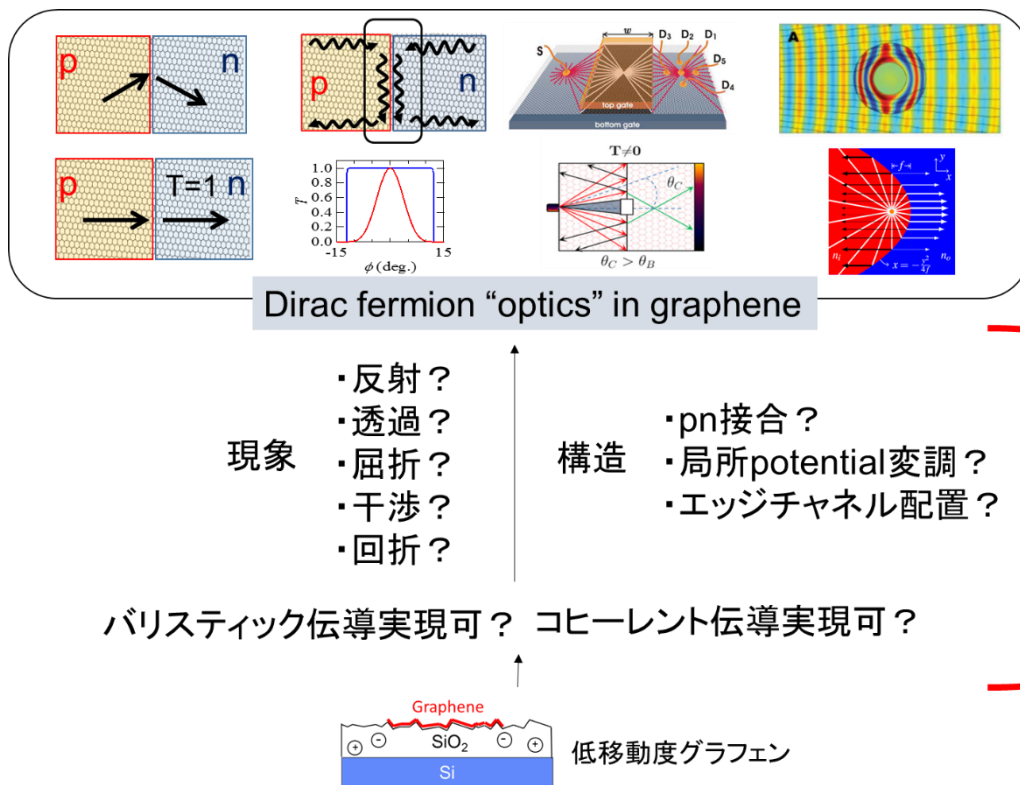


Fig. 1-26 本研究の目的と位置づけ(図の一部を Ref. 35, 76, 87, 88 から引用)

## 1.5 本論文の構成

本論文の構成を以下に示す。

### 第2章 グラフェン/h-BN 積層構造を用いた高移動度グラフェンの作製と評価

グラフェンとの相互作用が小さい絶縁膜 h-BN を、基板やゲート絶縁膜として用いることで高移動度なグラフェン、特にバリスティックおよびコヒーレントな伝導が実現した系の作製に成功した結果について報告する。また、局所ゲート変調を用いた高品質な pn 接合の作製についても報告し、Dirac fermion optics が実現する実験系の整備が整ったことを示す。

### 第3章 楕形 npn 接合を用いたバリスティック伝導の制御

楕形 npn 接合において電子波のコリメーションや全反射を制御することで、接合の透過率を制御可能であることを示す。また、Klein tunneling という相対論的透過現象によって、磁気抵抗の符号にゲートの幾何学構造の依存性が見られることも示す。ゲート構造がデザインされた接合においてバリスティックキャリアの軌道を光学のように制御しながら、機能を発現できることを実証する。

#### 第4章 局所ポテンシャル変調を用いたバリスティック伝導の制御

電子フォーカシング効果を発現させるサイクロトロン運動をするバリスティックキャリアの軌道を、Scanning gate microscopy (SGM)という局所プロービング技術によって制御した結果を示す。SGM チップがもたらす 100 nm オーダーの極めて局所的なポテンシャル変調領域に反射させることで、バリスティックなキャリアの軌道が制御できることを示す。

#### 第5章 PN 接合におけるエッジチャネル干渉計の実現

高品質グラフェン npn 接合において観測される特異な磁気抵抗振動現象が、pn 界面を貫く磁束の Aharonov-Bohm 干渉条件を考えることで良く説明できることを示す。グラフェンの量子ホール pn 接合においては、p 型由来のエッジチャネルと n 型由来のエッジチャネルが同じ方向に伝搬するという特異なエッジチャネル配置が実現しているが、このエッジチャネルが天然に干渉計を形成していることが示唆されることを示す。

## 第2章 グラフェン/h-BN 積層構造を用いた高移動度グラフェンの作製と評価

第 1 章では、高移動度二次元電子系における物理とそれを用いた電子光学という概念について、更に、グラフェンという新規二次元電子系のこの領域における可能性について論じてきた。このような研究を推し進める上で、1.2.4 で議論したように、まずはグラフェンの移動度の向上が急務であると言える。本章では、h-BN という材料をグラフェンの基板やゲート絶縁膜として利用することで、高移動度化を実現し、バリスティックおよびコヒーレントな伝導を観測した結果について報告する。これらの結果により、第 3 章以降で論ずるグラフェン量子輸送の電子光学的制御に向けた実験系の整備が整ったと言える。

なお、2.5 で論ずる内容については、

“Fabrication and characterization of high-mobility graphene p-n-p junctions encapsulated by hexagonal boron nitride”

S. Masubuchi, S. Morikawa, M. Onuki, K. Iguchi, K. Watanabe, T. Taniguchi, and T. Machida

Japanese Journal of Applied Physics **52**, 110105 (2013).

にて発表している。

### 2.1 グラフェン/h-BN 構造の登場

グラフェンの実験的発見から約 5 年が経ち、グラフェンを用いた量子輸送現象の研究は、基板由来のキャリア散乱による移動度の制限という大きな課題に直面していた。そこに登場したのが h-BN という極めて品質が高くグラフェンとの相性が良い絶縁体である。本節では、その登場から利用方法・課題などを概観する。

#### 2.1.1 h-BN 基板を用いたグラフェンの移動度向上

グラフェンの実験的単離が報告された当初は、グラフェンにおける実験は主に SiO<sub>2</sub> 基板上で行われてきた。しかし、1.2.4 で論じたように、SiO<sub>2</sub> が様々なキャリア散乱体をグラフェンに誘起することから、期待されたほどの高移動度を実現することができず、グラフェン本来の多彩な物理を観測することは十分にはできていなかった。キャリア散乱を抑制するためには、SiO<sub>2</sub> に代わるグラフェンの基板が徐々に求められていたと言える。

その状況で注目を集めたのが、六方晶窒化硼素(h-BN)という物質である。この物質は、もともとは紫外領域で直接遷移発光するワイドギャップ半導体として注目されていた物質で<sup>89,90</sup>、グラファイトと同様に硼素と窒素がハチの巣格子を組むことでシート状の平面構造を

とり、それが積み重なった層状の物質である。Dean らは 2010 年に、Taniguchi がダイヤモンド合成などに用いられる高温高压合成法により作製した h-BN<sup>90</sup> を、劈開法により薄層化することで SiO<sub>2</sub> 基板上に転写し、この上に更にグラフェンを転写することによって、グラフェンの移動度が SiO<sub>2</sub> 上グラフェンに比べて一桁向上するという結果を報告した<sup>50</sup>。h-BN が、層状の物質であることから表面が原子レベルで平坦で、光学フォノンエネルギーが大きく、Taniguchi による高温高压合成法<sup>90</sup> によって極めて不純物濃度が小さいことから、グラフェンへのキャリア散乱体の誘起が顕著に抑制され[Fig. 2-1]、グラフェンの移動度向上が達成された。

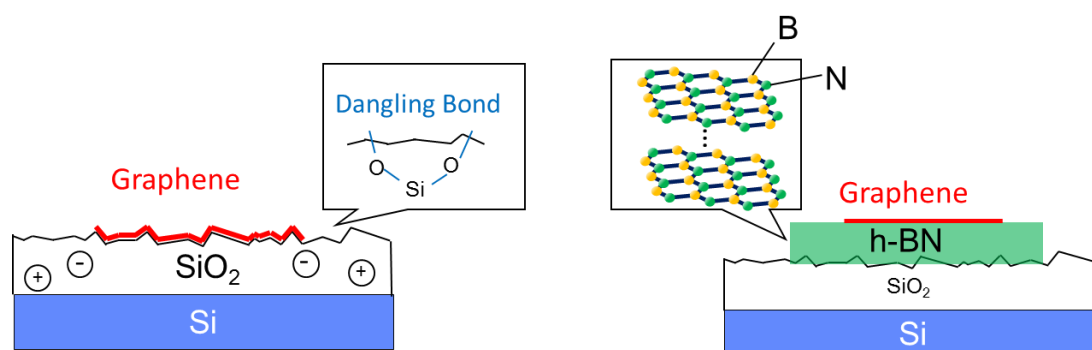


Fig. 2-1 グラフェン/SiO<sub>2</sub> vs グラフェン/h-BN

### 2.1.2 グラフェン/h-BN 構造に期待される「原子層科学」への貢献

h-BN 上グラフェンという原子層の積層構造が作製できたことによって、高移動度グラフェンの実現という点に留まらない、更なる領域の進展が期待された。なぜなら、原子層物質の上に別の原子層物質をファンデルワールス(vdW)力のみで重ねることができるということは、原理的にはこのプロセスを繰り返せば、任意の厚さの任意の種類の原子層物質の組み合わせを、任意の順番に任意の積層角度で積み重ねられることを意味するからだ[Fig. 2-2]<sup>91,92</sup>。

従来の半導体結晶成長の分野においても、MBE 法を利用することでこのように数種類の半導体を積み重ねて、例えば超格子構造を作製することなどは行われてきたが<sup>93-95</sup>、異種半導体界面に対して、格子不整合や合金化などの影響を極めて注意深く考慮する必要があった。しかし、この原子層物質同士の積層構造においては vdW 力のみで界面が接合しているため、界面の相互作用の影響を考慮する必要性が低く、極めて自由度が高い積層構造のデザインが可能になる。

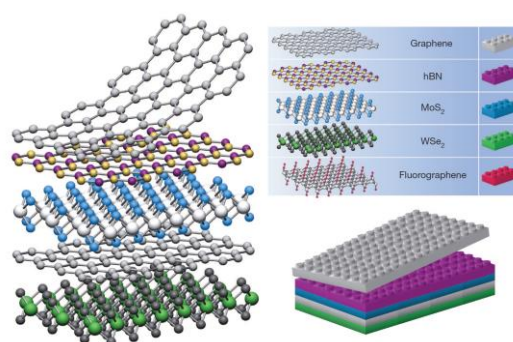


Fig. 2-2 vdW 積層構造 <sup>91</sup>

このような二次元層状物質の積層構造を用いた物性探索やデバイス応用は「原子層科学」とも呼ばれて注目を集め始めていたが、グラフェン/h-BN 二層構造は、その領域の発展に対して初歩的ながら極めて大きな役割を果たすこととなる。まずは、原子層と原子層を積層させる技術の向上に寄与するという点である。次項で課題としてあげるように、オングストロームオーダーの薄さの物質をマイクロメートルオーダーの位置精度で、界面に不純物やバブル <sup>96,97</sup> なく転写していく技術は極めて難易度が高い。グラフェン/h-BN 構造を作製し、その系におけるグラフェンの品質を向上させる取り組みは、そのまま他の原子層物質の転写技術の向上につながると言える。また、h-BN が「絶縁体」の層状物質であるという点も見逃せない。積層構造を用いて物性・機能を発現させるには、その構造の中に基板・キャップ層・ゲート絶縁膜・トンネルバリアとして絶縁体の存在が欠かせない。2.1.1 で紹介した Dean らの最初の報告 <sup>50</sup> においては h-BN を基板として用いているが、その他の活用方法も模索されることで、h-BN の果たすべき役割がより重要になってくると考えられる。

### 2.1.3 グラフェン/h-BN 積層構造の課題

このような背景から h-BN を用いたグラフェンの高移動度化、広い意味では原子層 vdW 積層構造の作製成功により、グラフェンの物性探索は更に加速すると思われた。確かに、バリストック伝導の実現による負の曲げ抵抗の観測(1.1.2 で詳述)<sup>51</sup> や multi-component の分数量子ホール効果の観測 <sup>98</sup> など、いくつかのグループで SiO<sub>2</sub> 上のグラフェンでは観測不可能な現象の報告がなされた。しかし一方で、筆者が博士研究をはじめた 2012 年 4 月の段階では、h-BN を用いた高移動度グラフェンにおける量子輸送現象の研究報告は、これら含め片手で数えられる程度に留まっており <sup>51,98-100</sup>、期待されたほど領域の研究進展は進んでいなかったとも言える。この一番の原因は、h-BN 上グラフェンの作製方法が 2.3 で紹介するように技術的に極めて困難で、界面におけるバブルや不純物 <sup>96,97</sup> やグラフェン表面におけるレジスト残渣の影響 <sup>101</sup> から高移動度試料作製の歩留まりや再現性が乏しかったことが挙げられる。

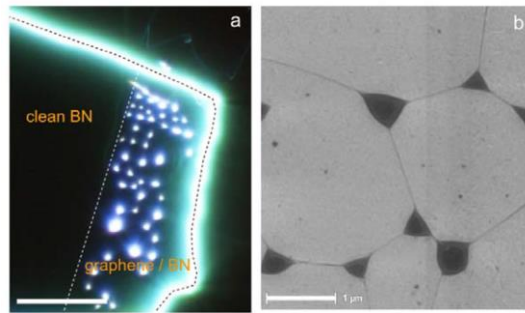


Fig. 2-3 グラフェン/h-BN 界面に入ったバブル<sup>96</sup>

また、h-BN を基板としてだけでなく局所ゲート絶縁膜として用いようと考えたとき、更にこの上に h-BN を転写した h-BN/グラフェン/h-BN 構造を作製した上で top gate 構造を作製する必要があったが、グラフェン/h-BN という二層構造ですら当初は作製が困難であったため、このような三層構造の作製報告はほぼ皆無であった。そのため、h-BN のゲート絶縁膜としての性質やそれを用いて得られることが期待される高移動度 pn 接合の物性に関する報告はなかった。

## 2.2 本章のねらい

2.1.3 で挙げた課題を鑑みて、グラフェン/h-BN 積層構造の作製条件の最適化にまず取り組んだ。第一目標としては、再現性良く、高移動度でバリスティック伝導が実現する試料作製に取り組み、それを実現するなかで、バリスティック伝導によって観測することが可能になった試料端散乱について定量的な解析を行う。

また、本研究の大きな目的である Dirac fermion optics の実現に向けては、1.3.2 や 1.3.3 で非常に多く扱われていることから分かるように、pn 接合の作製が不可欠である。この実現に向けて top gate/h-BN/グラフェン/h-BN/SiO<sub>2</sub>/back gate 構造を作製し、高品質なグラフェン npn 接合の作製を目指した。その過程で、npn 接合を用いた Fabry-Perot 干渉の観測、つまりバリスティックだけでなくコヒーレントな伝導の実現も目指し、Dirac fermion optics に向けた実験系の整備を行う。

## 2.3 試料作製法

グラフェン/h-BN 構造はじめ原子層積層構造の作製方法は様々な方法が現在でも提案され続けており<sup>50,99,102-105</sup>、求める品質や構造・扱う物質に応じて様々である。本研究では主に Dean らが提案した「ドライ転写法<sup>50</sup>」と「スタンピング法＋一次元コンタクト法<sup>102</sup>」を踏襲し、我々の研究室独自の改良を加えることで利用した。以下にその具体的な方法を記す。



### 2.3.1 ドライ転写法

2.1.1 に紹介した Dean らによる初めてのグラフェン/h-BN 構造の作製方法は、PMMA 上にグラフェンを転写して、それを水に浮かせてガラス板で掬い取るという極めてトリッキーな作業が必要であった<sup>50</sup>。また、水とグラフェンが接することから、完成したサンプルに水分子が付着してしまう可能性が高く、移動度が高いサンプルが作製されることは稀であった。そこで彼らは新たに、水を使わない転写方法(ドライ転写法)を考案した<sup>98</sup>。本研究ではこの方法を手本として、以下のような手順でグラフェン/h-BN 積層構造を作製した。

#### ① 基板洗浄

表面を熱酸化法により 290 nm だけ酸化させた Si 基板を、アセトン・イソプロパノールで超音波有機洗浄した後、硫酸と過酸化水素水の混合溶液(混合比 2:1)でピラニア洗浄を行う。

#### ② PMMA 膜塗布

洗浄後の基板に水溶性膜→PMMA 膜の順番にスピスコートをを行い、オーブンでベーキングを行うことで PMMA 中の溶媒を蒸発させる。

#### ③ グラフェン作製・探索

スコッチテープ劈開法<sup>106</sup>を用いて、グラフェンを PMMA 上に転写する[Fig. 2-4(a)]。顕微鏡下で探索を行い、最も色の薄い原子層を見つける。最終的にその層が単層グラフェンであるかどうかは、低温での伝導測定を行い 1.2.2 や 1.2.3 で論じたような半整数量子ホール効果が観測されるかどうかで判断する。

#### ④ PMMA 膜剥離

所望のグラフェンが存在する付近をペン等でマーキングした後、その周りを囲むようにテープを張ってから、そのテープを再度引きはがすことで PMMA/水溶性膜ごと SiO<sub>2</sub> 基板から剥ぎ取る。その膜を穴の開いたガラス板の上に移動させることでガラス板/水溶性膜/PMMA 膜/グラフェンという構造を作る[Fig. 2-4(b)]。

#### ⑤ h-BN 作製

これとは別に、①と同様の基板洗浄を行った SiO<sub>2</sub>/Si 基板に h-BN をスコッチテープ劈開法を用いて転写する[Fig. 2-4(c)]。h-BN もグラフェン<sup>41</sup>と同様に SiO<sub>2</sub>/Si との多層構造が及ぼす光学干渉<sup>107</sup>により厚さに応じて色が変わる。薄すぎると基板の影響を引き継ぎ表面がラフネスを持ってしまうこと、厚すぎると後に蒸着する電極がその厚みを乗り越えられないことから、緑色付近の 30-60 nm 程度の厚さの h-BN を利用する。また原料となる h-BN 結晶は物材機構の谷口氏が高温高圧合成で作製したもの<sup>90</sup>の提供を受けている。

#### ⑥ 張り合わせ

顕微鏡下で、④で作製したグラフェン/PMMA/水溶性膜/ガラス板構造と⑤で作製した h-BN/SiO<sub>2</sub>/Si 構造の位置合わせを行い、110 °Cで熱しながら張り合わせる[Fig. 2-4(d)]。熱することで、原子層の表面に付着した水分子を蒸発させるとともに PMMA 膜を柔らかくし張り



合わせの密着性を高めている。

#### ⑦ 水溶性膜と PMMA 膜の除去

室温まで温度を下げて、PMMA 膜を固い状態に戻してから、力を加えて PMMA 膜をガラススライドから破り取る。これにより水溶性膜/PMMA 膜/グラフェン/h-BN/SiO<sub>2</sub>/Si 構造が完成する[Fig. 2-4(e)]。水溶性膜を水で、PMMA 膜をアセトンで除去することで所望のグラフェン/h-BN/SiO<sub>2</sub>/Si 構造が完成する[Fig. 2-4(f)]。

#### ⑧ エッチング+電極蒸着

PMMA レジストを利用した、電子線による描画+MIBK 溶液による現像によって、ナノパターンを作製する。このナノパターンに対してエッチングや電極蒸着を行うことで、グラフェンを所望の形に成形したり、所望の電極パターンを作製したりする。なおエッチングは、Radical Ion Etching(RIE)装置を用いて Ar:O<sub>2</sub>=9:1 雰囲気で行い、電極は厚み 60 nm 程度の Pd を電子線蒸着機を利用して堆積させている。

#### ⑨ アニールによる PMMA 除去

こうして完成したグラフェン/h-BN 構造であるが、グラフェンの表面には転写の際に利用した PMMA やナノパターン作製のレジスト用に利用した PMMA が残渣として存在しており[Fig. 2-4(f)]、グラフェンの移動度を著しく低減している原因となっている。これを除去するために、Ar/H<sub>2</sub> = 97:3 雰囲気中で 300 °C 5 時間および電気伝導測定システムである VTI 内で He 雰囲気中で 140 °C 6 時間アニールを行う[Fig. 2-4(g)]。このアニールがグラフェンの移動度向上に極めて重要なプロセスである<sup>101</sup>。

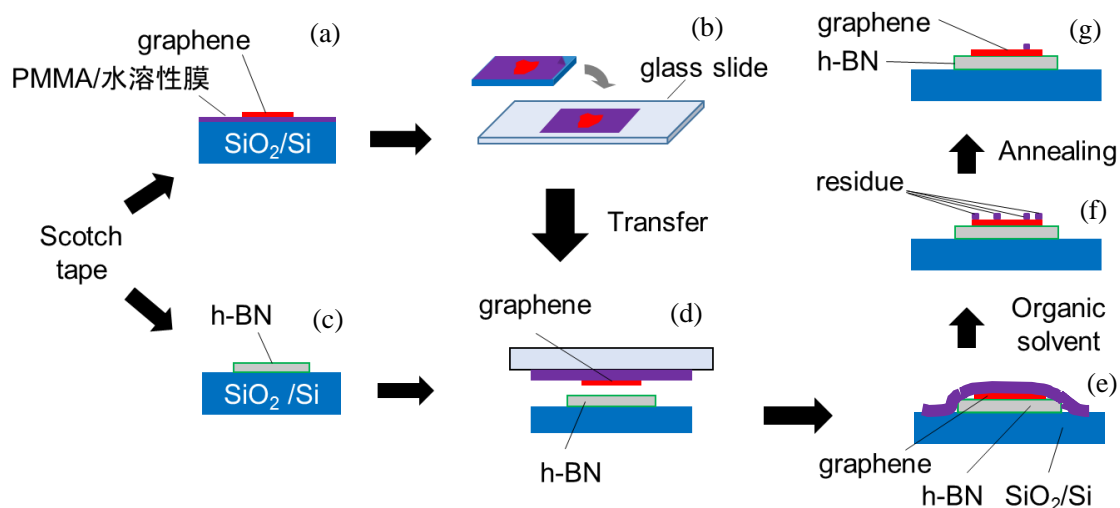


Fig. 2-4 ドライ転写法

このドライ転写法を用いることでグラフェン/h-BN 構造の作製が実現し、グラフェン/SiO<sub>2</sub> 基板では低温で最大 10,000 cm<sup>2</sup>/Vs 程度に留まっていたグラフェンの移動度は、一桁程度の向上を遂げた(実際の実験結果については 2.4.2 で論ずる)。

### 2.3.2 スタンピング法

高移動度化を実現したドライ転写法であったが改良の余地も有していた。一番の大きな問題点はプロセス中にグラフェンと PMMA が接することにある。2.3.1⑨のアニールのプロセスによって一定の残渣を除去することはできているが、それでも無視できない程度は表面に残渣として残り、移動度を低減させていた。

このような問題点を解決すべく、2013 年に Dean らは、改めて更に移動度の高いグラフェン/h-BN 積層構造を作製する方法を報告した<sup>102</sup>。この方法は、PDMS と呼ばれるポリマーを「スタンプ」のように利用し、予め用意しておいた任意の原子層物質を次々と持ち上げながら積層構造を作る方法であり、「スタンピング法」とも呼ばれる[Fig. 2-5(a)]。電極の作製方法も特徴的であり、作製した積層構造からグラフェンのエッジのみが露出するようにエッチングを行い、それに一次元的にコンタクトが取られる[Fig. 2-5(b)]。

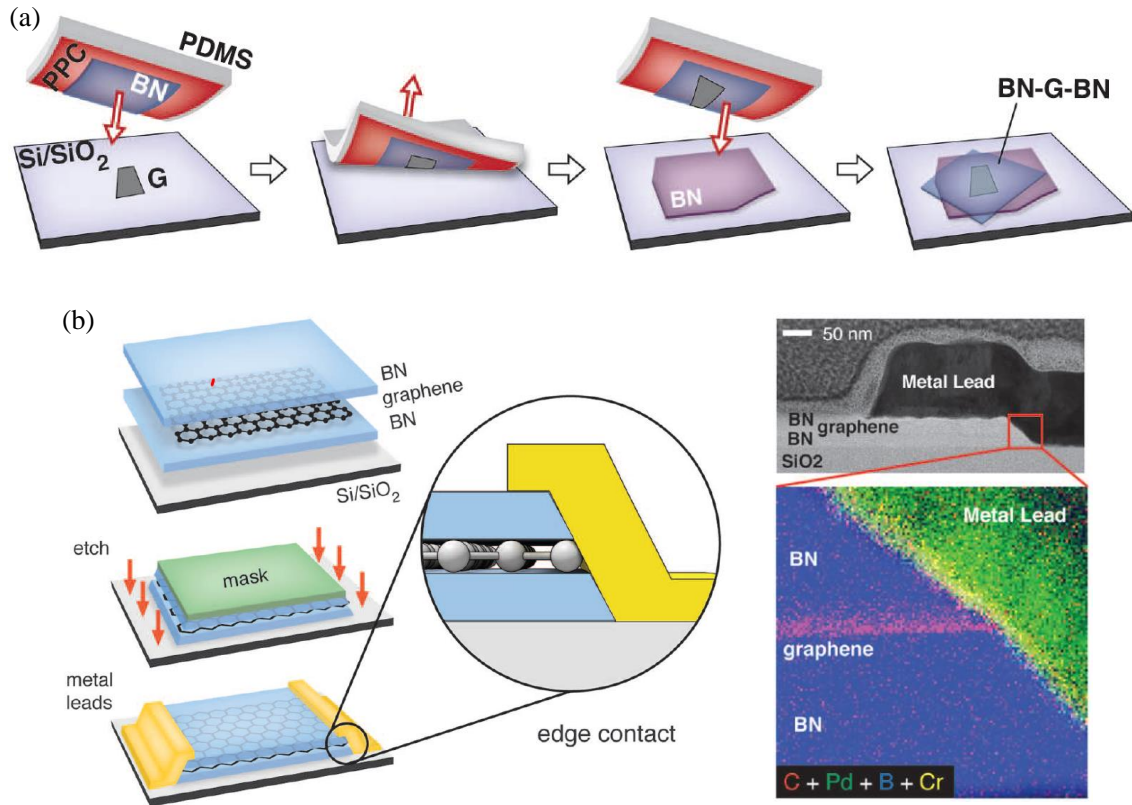


Fig. 2-5 (a) スタンピング法 (b) エッジコンタクト<sup>102</sup>

この方法が 2.3.1 に比べて優れている点は、積層構造作製中にチャンネルとなるグラフェンが h-BN 以外のポリマーやレジストとは一切触れることがない点にある。また、通常の蒸着方法でグラフェンに二次元的に(面で)コンタクトを取ると電極由来のドーピングがチャンネルに悪影響を与える可能性があったが、その影響もエッジから一次元的にコンタクトを取

ることで抑制できると考えられる。これらの改良により、グラフェンの移動度は更に一桁向上し、低温においては  $1,000,000 \text{ cm}^2/\text{Vs}$  以上、室温においては、高キャリア密度領域において  $20,000 \text{ cm}^2/\text{Vs}$  という phonon の影響を考えると移動度の理論限界となる値<sup>36</sup>に到達し、極めて高純度のチャンネルが形成されることが分かった<sup>102</sup>。

本研究ではこの方法を踏襲し、以下の手順で h-BN/グラフェン/h-BN 構造を作製し、エッチングおよび電極蒸着を行った。

#### ① 基板洗浄

2.3.1 と同様に  $\text{SiO}_2/\text{Si}$  基板を洗浄する。ただし、この基板は一時的に原子層を作製するためのものであり最終的なデバイスの back gate 構造には利用しない。そのため、しばしば有機洗浄を省略する。

#### ② グラフェンおよび h-BN 作製

洗浄後の基板にスコッチテープ劈開法を用いてグラフェンおよび h-BN を作製する。また、③のスタンピングを行う前に  $\text{Ar}/\text{H}_2$  雰囲気下  $500^\circ\text{C}$  で一晩程度アニールしておく。

#### ③ スタンピング

ガラス板上にポリマーを溶かした溶媒を作製しておき、これと②で作製したグラフェンや h-BN を顕微鏡下で位置合わせしたうえで、 $85^\circ\text{C}$  程度の温度下で基板とポリマーの貼り付けと引き離しを繰り返す。これにより、原子層物質が  $\text{SiO}_2$  基板上からポリマー上に積層構造を形成しながら移っていく(「スタンプ」される)。たとえば h-BN/グラフェン/h-BN 構造が作製したい場合は、h-BN→グラフェン→h-BN の順番で「スタンプ」していくことになる。

#### ④ 積層構造の基板への移動

完成したポリマー上の積層構造を、別に基板洗浄しておいた(この基板は back gate となるために有機洗浄は省略せず行う)  $\text{SiO}_2/\text{Si}$  基板上に移す。基板の温度を  $180^\circ\text{C}$  程度にしながらゆっくりとガラス板と基板の貼り付けと引き離しを行うことで、高温下で柔らかくなったポリマーごと積層構造が基板上に移動する。

#### ⑤ ポリマーの除去

このようにして作製したポリマー/h-BN/グラフェン/h-BN/ $\text{SiO}_2/\text{Si}$  構造をクロロホルム溶液に溶解させることでポリマーが除去され、所望の h-BN/グラフェン/h-BN 積層構造が完成する。

#### ⑥ 二層レジスト構造を用いたエッチングマスク作製

この積層構造に対して PMMA→HSQ(Hydrogen silsesquioxane)の順番にスピコートを行い[Fig. 2-6(a)]、マスク部分を電子線描画する。その後、NMD-3 溶液(東京応化工業製)を用いて HSQ 部分だけ現像する[Fig. 2-6(b)]。

#### ⑦ エッチング

RIE を用いることで、HSQ マスクで覆われた部分以外をエッチングする。具体的には酸素雰囲気下で PMMA 膜部分を[Fig. 2-6(c)]、その後、 $\text{Ar}/\text{F}_2$  雰囲気下で原子層部分をエッチング

する[Fig. 2-6(d)]。この際、レジスト端近傍のエッチングレートとそれ以外のエッチングレートが異なることから(詳細な理由は不明だが、**side etching** が起こっている・レジスト自体が横方向に削られている等の要因が考えられる)、エッチング後の試料端の形状は斜めになる。

#### ⑧ 電極蒸着+リフトオフ

2.3.1⑧と同様の PMMA レジストを利用した方法で電極パターンを電子線描画・現像後、Cr/Pd/Au 電極をそれぞれ 5 nm/10 nm/45~85 nm 電子線蒸着機で蒸着する[Fig. 2-6(e)]。この時、先ほど形成された斜め構造の試料端にも金属が付着するため、グラフェンに対して 1 次元的なコンタクトを形成することができる。最後にアセトン溶液に一晩程度浸すことで、リフトオフを行う[Fig. 2-6(f)]。この際にチャンネル上に残存する PMMA/HSQ や金属も同時に除去できる。これにより h-BN/グラフェン/h-BN 構造に一次的にコンタクトがついた構造が完成する(SEM 像を Fig. 2-6(g)に示す)。

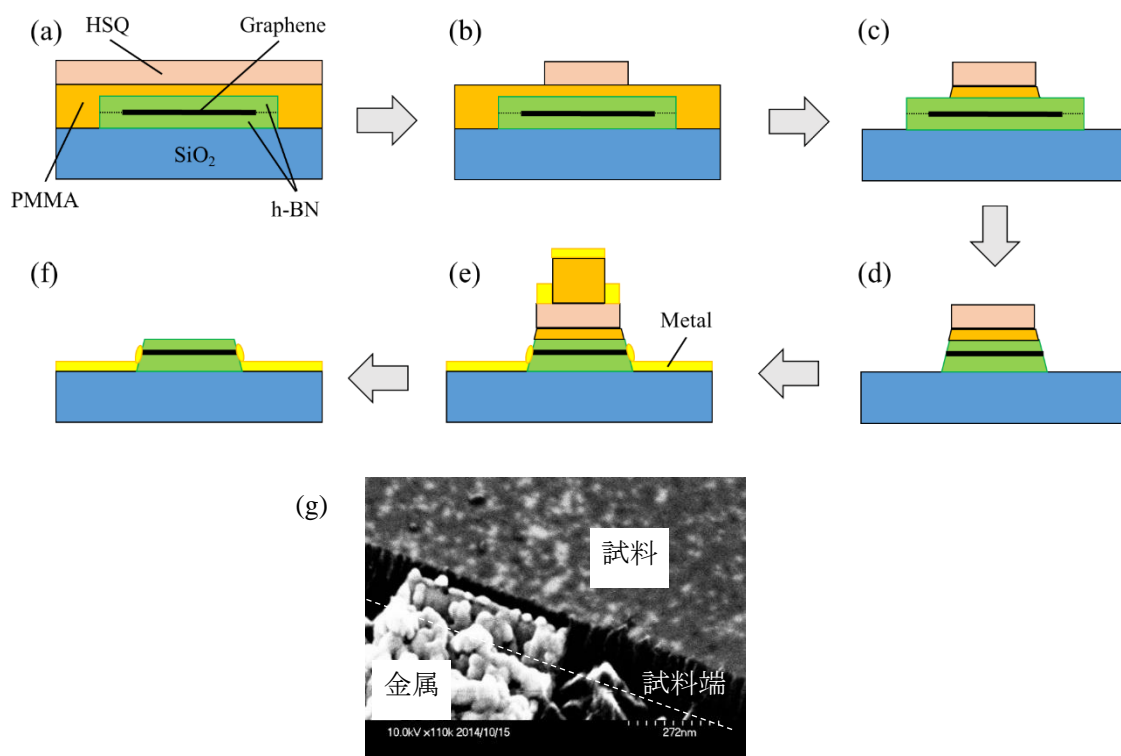


Fig. 2-6 (a)-(f) エッジコンタクト作製法 と (g) その SEM 像

### 2.3.3 本研究での利用した方法

筆者が博士研究をはじめた 2012 年当初はスタンピング法の提案はされていなかったため、2.4 と 2.5 および第 5 章で紹介する結果については 2.3.1 ドライ転写法を用いて作製した素子における結果となっており、第 3 章と第 4 章で紹介する結果については新たに提案された 2.3.2 スタンピング法を用いて作製した素子における結果となっている。

## 2.4 バリスティック伝導の実現と端散乱の観測

本節では、2.3.1 ドライ転写法を用いることで複数のグラフェン/h-BN 構造を作製し、再現性良く高移動度のグラフェンが作製できることを確認する。特に、磁場を加えたときに見られる特異な磁気抵抗ピークから試料の端でのキャリア散乱の様子が観測されていることを確認することで、バリスティック伝導の実現を証明する。またこのピーク位置について古典的なビリヤードモデルと比較しながら定量的に解析することで、グラフェン端散乱の特異性について考察する。

### 2.4.1 素子構造と両極性電界効果

Fig. 2-7(a)に、系統的な測定を行った3つのh-BN上グラフェンデバイスのAFM像を載せる。試料の幅 $W$ が150(素子A), 450(素子B), 1500(素子C) nmとなるように2.3.1⑧エッチングを行っている。また、適切な条件下で⑨アニールを行っていることから、試料表面に残渣が残らず清浄なチャネル構造を作製できていることが分かる。

Fig. 2-7(b)にはそれぞれのチャネルにおいて観測された二端子抵抗率 $\rho$ の温度 $T=1.6$  Kにおけるback gate 電圧 $V_{bg}$ 依存性を記載している。全てのデータにおいてFig. 1-10のように抵抗値にピーク構造が観測されており、両極性電界効果つまり電子からホールまでキャリアを誘起できていることが分かる。また全てのチャネルにおいて、抵抗が最も高くなる $V_{bg}$ (Dirac点)が0 V付近にあることから、不純物や欠陥による外因的なキャリア誘起のない清浄なチャネルが形成できていることが分かる。

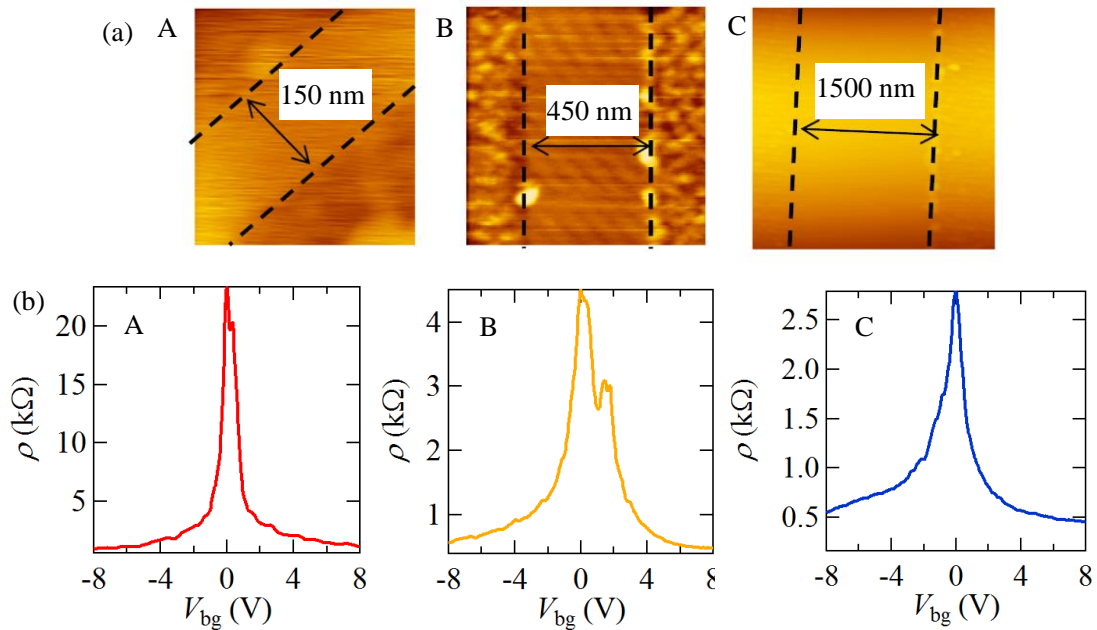


Fig. 2-7 素子 A-C の AFM 像(a)と 1.6 K における二端子抵抗率の back gate 電圧依存性(b)

## 2.4.2 移動度評価

素子の品質を定量的に評価する上で最も使われる物性値が移動度 $\mu$ である。移動度は最もシンプルな定義として、Drude の公式、

$$\sigma = 1/\rho = ne\mu \quad (2.1)$$

という式が用いられている。しかしグラフェンは、 $n = 0$  である Dirac 点においても不純物<sup>108</sup> や Electron-hole puddle<sup>109</sup> の影響で有限の伝導度を示す。また十分にキャリアを誘起しても、short range ポテンシャルを持つ散乱体によって有限の抵抗を示す。そのため、より正確には、 $\sigma_0, \rho_{\text{short}}$  という補正項を用いて、

$$\frac{1}{\sigma} = \frac{1}{|n|e\mu + \sigma_0} + \rho_{\text{short}} \quad (2.2)$$

と書くべきである<sup>99</sup>。実験結果にこの式を当てはめて移動度を計算するためには、フィッティングを用いる方法もあるが、ここではフィッティング範囲の恣意性を排除できる以下の方法を紹介する。

(2.2)をキャリア密度で微分すると、

$$\frac{d\sigma}{d(|n|e)} = \frac{\mu}{(1 + (|n|e\mu + \sigma_0)\rho_{\text{short}})^2} \quad (2.3)$$

となるが、これの  $n \rightarrow 0$  の極限は、 $\mu(1 + \sigma_0\rho_{\text{short}})^{-2}$  となり、 $\sigma_0$  や  $\rho_{\text{short}}$  が十分に小さければ移動度とほぼ同じ値になるはずである。 $(1 + \sigma_0\rho_{\text{short}})^{-2}$  は通常 5-30 % の範囲に収まることも確認しており、移動度の見積もりとしてはフェアな方法である。Fig. 2-8(a)に、実際これを  $T = 1.6 \text{ K}$  において行った結果を示す。伝導度のキャリア密度微分をとり  $n \rightarrow \pm 0$  付近の値を移動度としている。 $n = 0$  の部分は数値微分の影響で 0 に落ち込んでしまっているために、その周辺の極大値を利用している。 $n$  の正側が電子、負側がホール移動度に対応する。

Fig. 2-7 で示した試料幅の異なる三つのサンプルのデータに対してこの解析を行い、移動度の試料幅依存性をプロットしたものが Fig. 2-8(b)である。試料幅が太くなるにつれて移動度が上昇している様子が分かり、1500 nm のサンプルにおいては  $50,000 \text{ cm}^2/\text{Vs}$  という SiO<sub>2</sub> 上グラフェンの値と比べて一桁程度高い高移動度が実現していることが分かる。h-BN を基板として用いることによって、基板由来の不純物が減少し、移動度の向上が達成できたと言える。試料幅を狭くすると移動度が減少する理由としては、試料端でのキャリア散乱の影響がより伝導に影響を与え、移動度の減少に寄与していると考えられる。

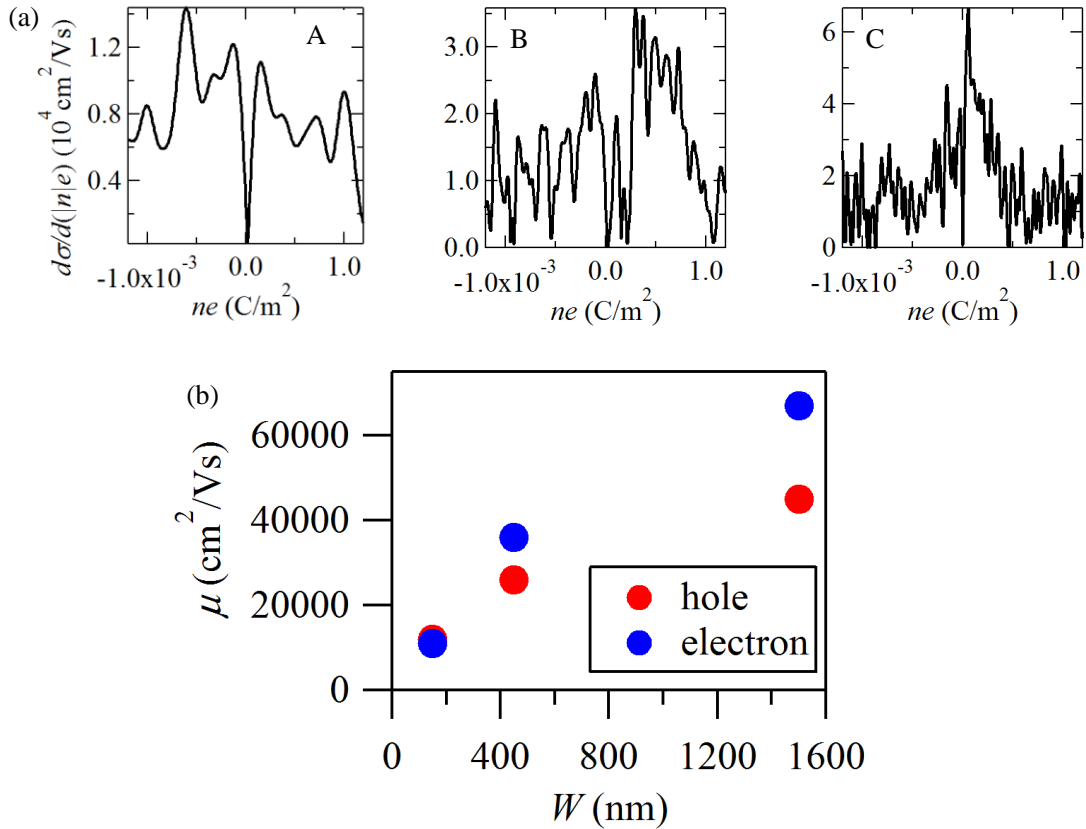


Fig. 2-8 (a) Fig. 2-7 から計算される伝導度のキャリア密度微分 (b) (a)から計算される移動度の  $W$  依存性

### 2.4.3 縮退分離量子ホール効果とゲートキャパシタンスの見積もり

強磁場下での量子ホール効果の様子からも高移動度の試料が実現していることが分かる。Fig. 2-9 は素子 C の 9 T, 1.6 K における (a) 二端子抵抗  $R_{2t}$  の back gate 電圧依存性と (b) それをコンダクタンス  $G = 1/R_{2t}$  に変換したものである。複数のプラトー構造が見られることが分かり、コンダクタンスを量子化コンダクタンス  $e^2/h$  のスケールでプロットした時にちょうど整数の部分でプラトーを持っていることから、(1.4)に従って伝導度が量子化されていることが分かる。

ここで注目すべき点が、観測されている量子ホール効果フィリングファクターのシーケンスである。Fig. 1-13 でも議論したように通常単層グラフェンでは  $|v| = 2, 6, 10, \dots$  のみ観測されるはずであるが、今回の実験結果は、これ以外の  $v = -3, -4, -5, -7, -8, -9$  なども明瞭に観測されていることが Fig. 2-9(b) から分かる。このことから、4 飛びのシーケンスの由来である四重縮退のランダウ準位が、多体効果によって縮退分離を起こして、全てのシーケンスの量子ホール効果が観測できたと言える。つまり、多体効果が見られるほど高移動度のグラフェンを作製できたということを意味する<sup>50</sup>。



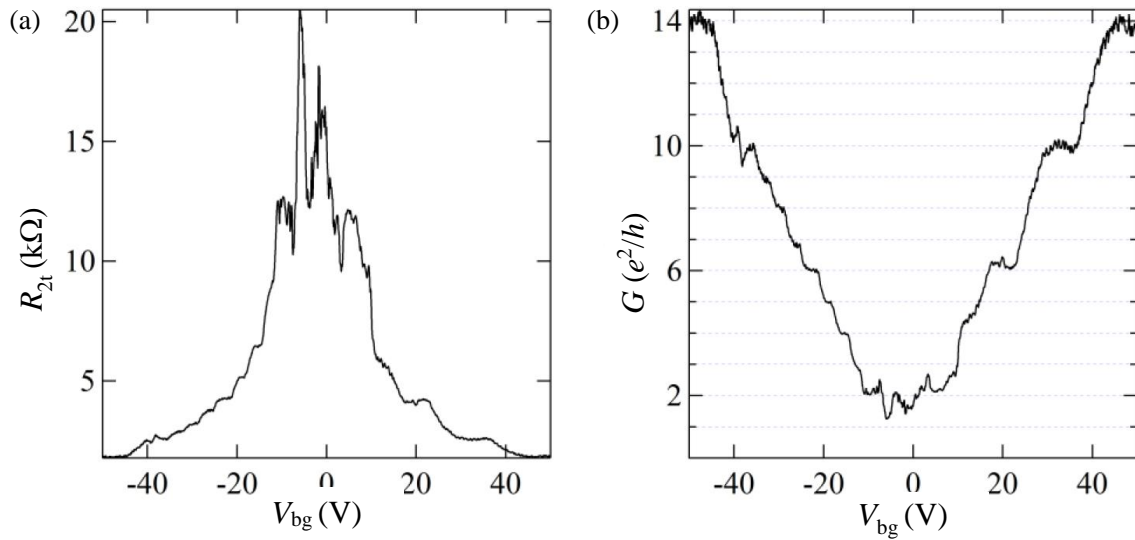


Fig. 2-9 素子 C の抵抗値(a)および伝導度(b)の 9 T, 1.6 K におけるゲート電圧依存性

磁場を変化させながら同様の測定を行った結果が Fig. 2-10 である。磁場  $B$  を小さくするにつれてプラトーを取る  $|V_{bg}|$  が小さな値に変化していることが分かる。より定量的に見るために、Fig. 2-10(a)を  $V_{bg}$  方向で微分したデータを  $(V_{bg}, B)$  平面内にプロットした図が Fig. 2-10(b)である。微分を行ったことにより、量子ホール状態のプラトー構造が白色部として表れており、その白色部分が  $B$  と  $V_{bg}$  の比が一定の直線状に存在していることが分かる(例のため  $\nu = -5$  を満たす領域を黒点線で示す)。この結果は以下のように説明することができる。

1.1.4 で論じたように、量子ホール効果はフェルミエネルギーがランダウ準位とランダウ準位の間に存在するときを生じる現象である。ここで、一つのランダウ準位に縮退している状態数(格納できる電子の数)は、

$$n_{\phi} = \frac{B}{h/e} \quad (2.4)$$

で書ける。また、フィリングファクターと呼ばれる量子ホール効果の量子数  $\nu$  はフェルミエネルギーより下に何個のランダウ準位があるか、つまりランダウ準位何個分の電子密度を系が持っているかを意味するので、フィリングファクター  $\nu$  の量子ホール状態においては、キャリア密度は

$$n = \nu n_{\phi} = \frac{\nu B e}{h} \quad (2.5)$$

であることが分かる。この結果から同じフィリングファクターの量子ホール状態は磁場とキャリア密度の比が一定の場所で生じることが分かり、 $V_{bg}$  がキャリア密度と比例することを考慮すると、Fig. 2-10(b)は(2.5)の関係を実験的に観測したことになる。



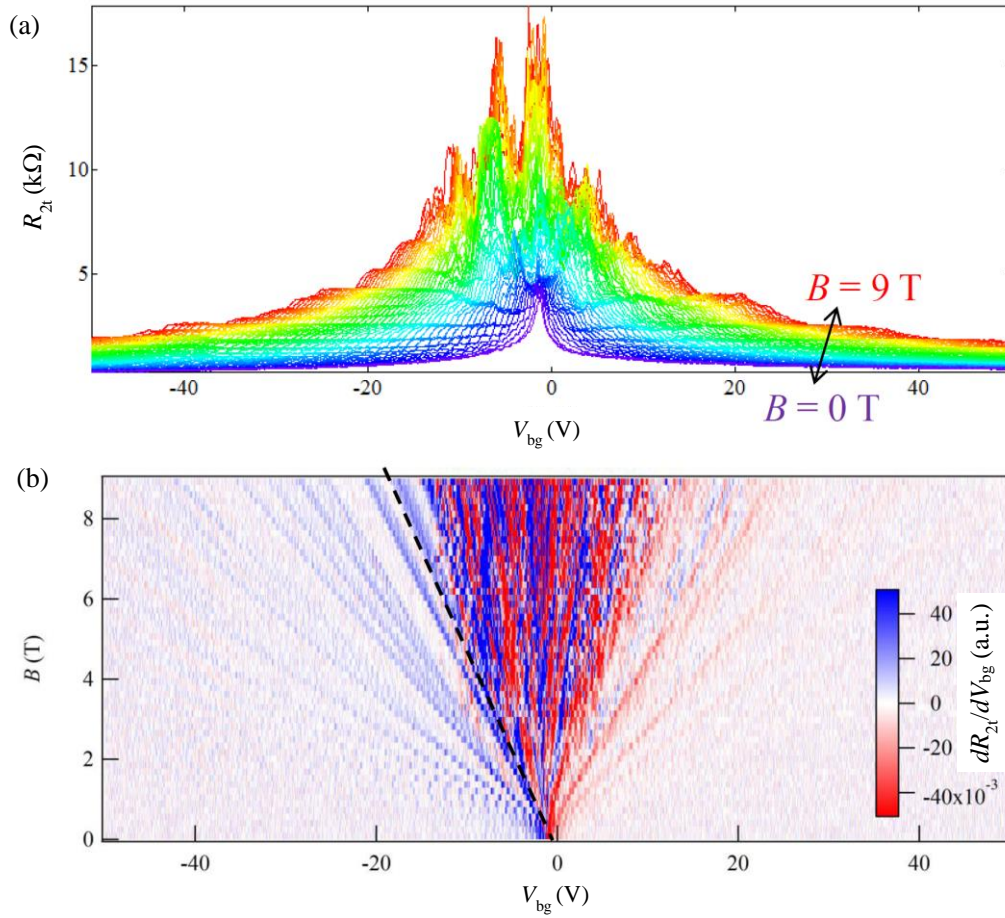


Fig. 2-10 1.6 Kにおいて磁場を 0 T ~ 9 T の範囲で変化させながら測定した素子 C の二端子抵抗のゲート電圧依存性(a)とそのゲート電圧微分の( $V_{bg}$ ,  $B$ )平面におけるカラープロット(b)

より定量的にはゲートキャパシタンス  $C_{bg}$  を用いて

$$n = \frac{C_{bg} V_{bg}}{e} \quad (2.6)$$

と書けるので、これを(2.5)に代入すると

$$B = \frac{h C_{bg}}{e^2 \nu} V_{bg} \quad (2.7)$$

を得ることができる。この式と Fig. 2-10(b)の白色部分の傾きを比較することにより、 $C_{bg}$  を計算できることが分かる。 $C_{bg}$  はチャンネル中のキャリア密度を見積もる際に極めて重要な値であり、今後示す実験においては全てこの方法を用いることで  $C_{bg}$  を計算している。

たとえば、様々な  $W$  を持つ試料においてこの方法を用いて  $C_{bg}$  を計算した結果が Fig. 2-11 である(実際に用いたデータは補遺 7.2 に掲載する)。全体的な傾向として、試料幅が小さくなるにつれ  $C_{bg}$  が増大するという先行研究<sup>110,111</sup>と一致した傾向を示していることが分かる。この  $C_{bg}$  の  $W$  依存性は、以下のように説明されている。**Back gate** とグラフェンチャンネルは

絶縁膜を通して静電的にカップルしており、試料の十分に内側つまり試料端から離れた部分においては、平行極板のコンデンサーのように捉えることができる。そのため十分に広いサンプルを考えれば、 $C_{bg}$  は極板間の距離  $d$  にしか依存しないことから、 $W$  が変化しても  $C_{bg}$  に変化はないはずである。しかし試料の端においては、下右図のようにゲートから出てきた電気力線が回り込みによって集中するようになり、平行極板コンデンサのモデルでは説明できない大きな  $C_{bg}$  を持つようになる。試料の幅  $W$  が狭いければ狭いほど、この端での効果が顕著に試料全体のキャリア密度に影響を与えるようになるために  $C_{bg}$  が大きくなる、と説明することができる。

Fig. 2-11 の青点線は試料幅最大の  $W = 1.5 \mu\text{m}$  の時のキャパシタンス  $9.7 \times 10^{-5} \text{ F/m}^2$  を示したもので、確かに  $W$  が小さい試料ではこの値より大きな  $C_{bg}$  を示している。一方黒線は先行研究において有限要素法を用いた計算によってキャパシタンスの試料幅依存性を見積もったものである<sup>111</sup>。こちらも  $W$  の減少とともに  $C_{bg}$  が増加していく様子が分かるが、実験結果の  $C_{bg}$  の値よりも明らかに大きな値を示していることが分かる。この理論と計算の不一致も先行研究では既に議論されており<sup>110,111</sup>、誘電体が理想的な振る舞いをしていないこと・周辺にある電極の遮蔽の影響・端状態が及ぼす静電学的摂動の影響<sup>112</sup>などが原因と考えられている。

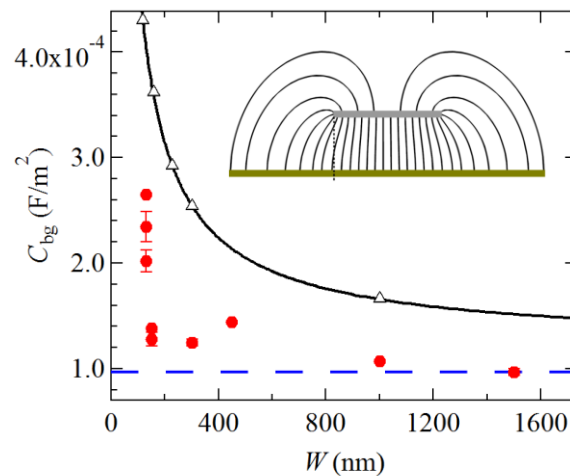


Fig. 2-11 量子ホール効果から求めた  $C_{bg}$  の  $W$  依存性(赤:実験結果、青: $W = 1500 \text{ nm}$  における実験結果、黒:計算結果<sup>111</sup>) Inset: 電気力線の試料端への回り込み模式図<sup>113</sup>

#### 2.4.4 端散乱由来の磁気抵抗 ～先行研究とねらい～

ここまで両極性電界効果・キャリア移動度・量子ホール効果・ゲートキャパシタンスなど、デバイスにとって基本的な輸送現象や物性値を見積もりながら、作製した h-BN 上グラフェンが高い品質のものであることを示してきた。ここからは、より直接的にバリスティックな伝導が実現していること示す実験結果について紹介する。

今回特に注目するのは試料端における散乱現象である。本項ではまずこの現象のモデルと先行研究を紹介する。平均自由行程の短い拡散的な伝導を示す系においては、Fig. 1-3 で表されているように、キャリアがバルク中で何度も何度も散乱されながらソースからドレインに伝搬していくために、伝導特性にはバルクでの散乱の影響しか関与してこない。一方でバリスティックな伝導、具体的には平均自由行程  $l$  が試料幅  $W$  に匹敵するようになると、キャリアがほとんどバルク部分では散乱を受けないようになり、試料の端での散乱の様子が観測できるようになる。

1989 年に Thornton らは高移動度の半導体二次元電子系においてこの端散乱が磁気抵抗に影響を及ぼしていることを実験的に確かめた<sup>12</sup>。具体的には、端散乱によって磁気抵抗がピーク構造を取ることが分かっており、Fig. 2-12 で示すモデルで説明することができる。まずゼロ磁場においては、キャリアは単に直進するだけなので、試料端散乱の影響はあまり受けない。また十分に大きな磁場を加えると、サイクロトロン半径が十分に小さくなるので、キャリアは試料端をスキッピング運動しながらも前進していくことが可能になり、抵抗が試料端散乱の影響によって大きくはならない。一方でこの中間領域つまりサイクロトロン半径と試料の幅が同程度のスケールになった時、Fig. 2-12 燈枠線内のように、試料の両端で散乱されることで電子が後方に散乱されるような状況が生じうる。これによって、ある特定の磁場において最大になるような抵抗のピーク構造が観測される。このピーク磁場は試料幅  $W$  とサイクロトロン半径  $R_c$  がある一定の比

$$W = \alpha R_c \quad (2.8)$$

になったところで生じることが分かっており、計算結果や実験結果から  $\alpha=0.55$  となることが知られていた<sup>12</sup>。

Masubuchi らは h-BN 上に高移動度グラフェンを作製することでグラフェンにおいて初めてこの端散乱由来の磁気抵抗のピーク構造を観測することに成功した。更にグラフェンにおいては、この  $\alpha$  の値が理論・及び通常の半導体二次元電子系と異なり  $\alpha \sim 0.9$  の大きな値を取ることを報告した<sup>114</sup>。グラフェンの端散乱はエッジ状態などを反映して、通常の系と異なる可能性があり、その影響を反映した実験結果であることが示唆された。

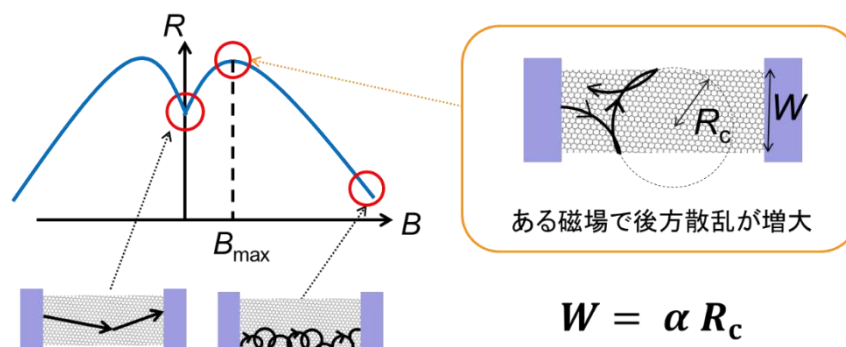


Fig. 2-12 端散乱由来の磁気抵抗ピーク構造

ここまで、バリスティック伝導を実現することによって試料端散乱が観測可能になると論じてきたが、逆に捉えると、Fig. 2-12 のような磁気抵抗のピーク構造を観測することによってバリスティック伝導が実現していることを直接的に観測できるとも言える。また、 $\alpha$ の値の特異性からグラフェン端散乱の物理に迫ることができるとも言え、そのためには、より系統的に  $W$  の異なる試料に対して  $\alpha$  の解析を行う必要がある。

この二点を鑑みて、今回作製した Fig. 2-7 のサンプルに対しても磁気抵抗を測定し、ピーク構造を確認することでバリスティック伝導が実現していることを確認する。また、ピーク磁場に注目することで  $\alpha$  を定量的に見積もり、 $\alpha$  の特異性に関してより詳細な議論を行う。

#### 2.4.5 端散乱由来の磁気抵抗 ～実験結果～

Fig. 2-7 で示したサンプルの結果に Masubuchi らが初めて磁気抵抗のピーク構造を観測した  $W = 1000 \text{ nm}$  のサンプルの結果<sup>114</sup>も合わせて Fig. 2-13 に示す。各サンプルにおいて上のデータが低キャリア密度における結果、下に行くにつれて高キャリア密度における結果となっている。具体的には素子 A が  $V_{\text{bg}} = 10, 12, 14, 16, 18 \text{ V}$ 、素子 B が  $V_{\text{bg}} = 17, 23, 29, 35, 41 \text{ V}$ 、 $W = 1000 \text{ nm}$  の素子が  $V_{\text{bg}} = -32, -36, -40, -44, -48 \text{ V}$ 、素子 C が  $V_{\text{bg}} = -28, -32, -36, -40, -44 \text{ V}$  となっている。測定温度は  $300 \text{ K(A)}$ ,  $40 \text{ K(B)}$ ,  $4 \text{ K(W = 1000 nm)}$ ,  $1.6 \text{ K(C)}$  である。

全てのサンプルにおいて特徴的な磁気抵抗のピーク構造が観測されており、試料の移動度が高いことから平均自由行程  $l$  が  $W$  よりも大きくなることで、バリスティック伝導が実現し、試料端散乱由来のシグナルが見られていることが分かる。また試料幅が小さいサンプルの方が、もしくは同じサンプル内でもキャリア密度が大きい方が、より高磁場においてピーク構造が観測されていることも分かる。この定性的な結果は以下のように説明することができる。

まずサイクロトロン半径は以下のように計算できることが知られている。

$$R_c = \frac{\hbar k_F}{eB} = \frac{\hbar \sqrt{n\pi}}{eB} = \frac{\hbar \sqrt{\pi C_{\text{bg}} |V_{\text{bg}}|}}{e^{3/2} B} \quad (2.9)$$

ここで  $\hbar = h/2\pi$  である。これと(2.8)から、ピーク磁場  $B_{\text{max}}$  は

$$B_{\text{max}} = \frac{\alpha \hbar \sqrt{\pi C_{\text{bg}} |V_{\text{bg}}|}}{e^{3/2} W} \quad (2.10)$$

となるはずである。この式から、確かにキャリア密度が大きいほうが、もしくは試料幅が小さいほうが、ピーク磁場が大きくなることが分かり、実験結果と整合している。

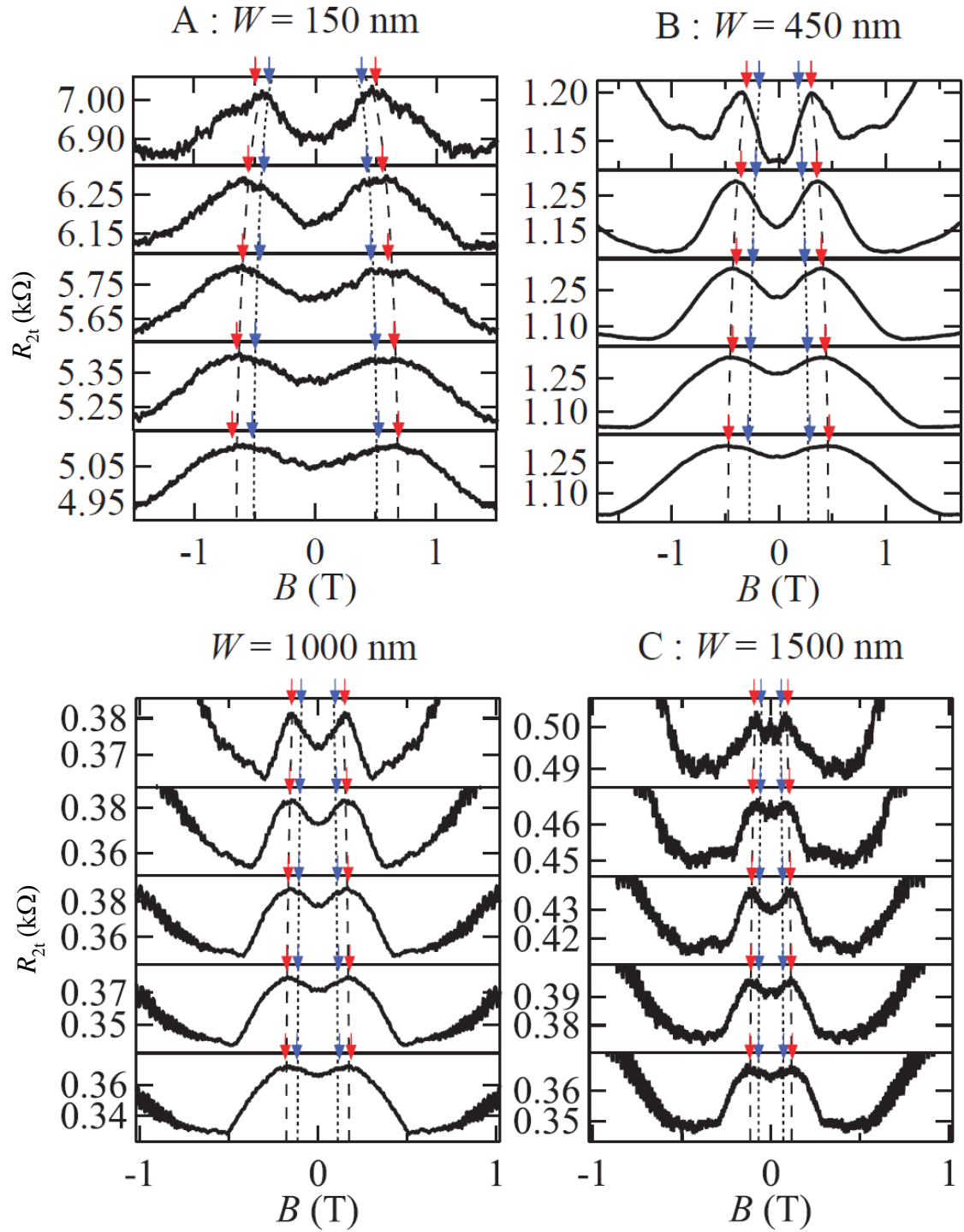


Fig. 2-13 素子 A-C および増渕らが最初に報告<sup>114</sup>した  $W = 1000 \text{ nm}$  の素子における二端子抵抗の磁場依存性(素子 A: 測定温度  $300 \text{ K}$   $V_{\text{bg}} = 10, 12, 14, 16, 18 \text{ V}$ 、素子 B: 測定温度  $40 \text{ K}$   $V_{\text{bg}} = 17, 23, 29, 35, 41 \text{ V}$ 、 $W = 1000 \text{ nm}$ : 測定温度  $4 \text{ K}$   $V_{\text{bg}} = -32, -36, -40, -44, -48 \text{ V}$ 、素子 B: 測定温度  $1.6 \text{ K}$   $V_{\text{bg}} = -28, -32, -36, -40, -44 \text{ V}$ ) Fig. 2-14 で示す $\alpha$ (赤矢印・破線) および  $\alpha = 0.55$ (青矢印・点線)を用いて計算した(2.10)のピーク磁場も示している

更にこの結果から $\alpha$ を見積もっていく。2.4.3の方法を用いて見積もった $C_{bg}$ を(2.10)に代入して、理論・および先行研究で予想されている $\alpha=0.55$ が成立する場合 $B_{max}$ がどの磁場に来るかを計算した結果が、Fig. 2-13 青矢印および点線で記された領域である。実験で観測されたピーク磁場よりも低磁場側に存在することが分かる。そこで逆に、実験結果からどのような $\alpha$ を用いるとピーク磁場の場所を説明できるかを計算した。その結果を Fig. 2-14(a)に示す。この $\alpha$ を用いると Fig. 2-13 赤矢印および破線の場所にピーク磁場が存在することになり、確かに良く実験結果を説明していることが分かる。全ての試料幅 $W$ において $\alpha$ がほぼ一定の0.7-0.9の値を示していることが分かり、やはり再現性良く、 $\alpha$ は0.55ではない特異な値を示していることが確認された。

このように複数の試料幅のサンプルで $\alpha$ の値の普遍性が得られたということは、再現性の確認という点以上の意味を持つ。 $W=1000\text{nm}$ の結果のみだと、以下で論ずるような、エッチングが及ぼす deplete 領域の影響で見かけ上 $\alpha$ が増大した、という可能性を排除できていなかったからだ。

具体的には、(2.10)に代入する $W$ の値としてエッチングのマスク幅 $W$ を利用しているが、実際その幅 $W$ が全てキャリアが伝導できるチャンネルとして機能しているかどうかは自明ではなかった。つまり Fig. 2-14(b)のようにチャンネルの端にエッチングによってチャンネルとして機能しない deplete 領域が存在する可能性は否定できていなかった。もしこのような deplete 領域が存在している場合、deplete 領域の幅を $W_{dep}$ とすると、

$$\alpha_{true} = \frac{eB}{\hbar\sqrt{\pi n}}(W - 2W_{dep}) \neq \alpha_{exp} = \frac{eB}{\hbar\sqrt{\pi n}}W \quad (2.11)$$

と正しく $\alpha_{true}$ を計算する必要がある、ここまで計算してきた $\alpha_{exp}$ は正しい値よりも大きく見積もられていたことになる。

しかし今回、複数の $W$ で $\alpha$ の普遍性が得られていることから、この可能性を排除できると言える。なぜなら $W_{dep}$ はエッチングの影響により生じる deplete 領域であることから一定であると考えることができ、そのため(2.11)式を変形した、

$$\alpha_{exp} = \frac{W}{W - 2W_{dep}} \alpha_{true} \quad (2.12)$$

のように、実験で得られる $\alpha_{exp}$ が $W$ に強く依存するはずであるからだ。例えば $2W_{dep}$ を50, 150, 350, 500 nm に定めたとき(2.12)に基づいて $\alpha$ の $W$ 依存性を計算した結果を Fig. 2-14(b)に黒点線で示す。これらのように $\alpha_{exp}$ が $W$ に対して単調減少すると予測できるが、今回の実験結果はどの計算結果にも従わないことから、やはり deplete 領域は存在せず、本質的に $W$ によらず $\alpha$ の値が0.8程度の特異な値を示していることが確認された。

この特異な端散乱の物理的な起源は未だ明らかになっていないが、Masubuchi らの実験的報告の前に、第一原理計算によって同様の系でピーク位置が特異であることが予測されており[Fig. 2-14(c)]<sup>115</sup>、その後 $W=1000\text{nm}$ の結果と計算結果がよく一致することが報告されている<sup>116</sup>。今後、更なる微視的な考察が求められる現象と言えるだろう。



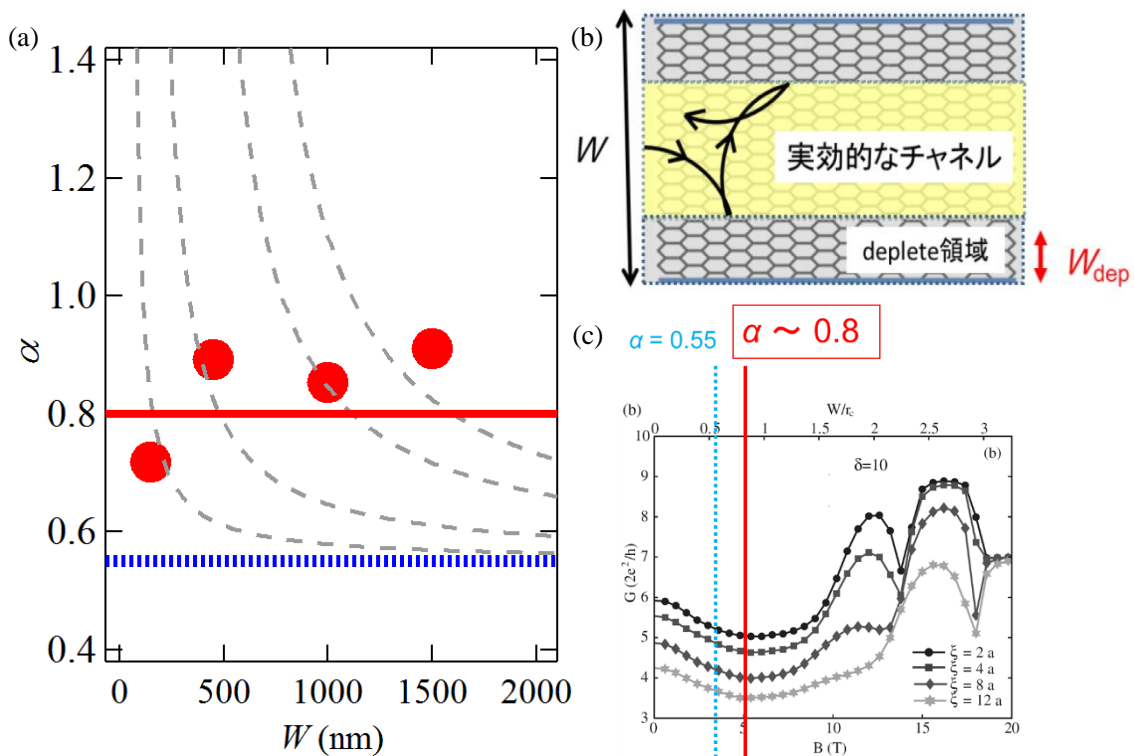


Fig. 2-14 (a) 赤： $\alpha$ の実験値、青： $\alpha = 0.55$ 、灰： $2W_{\text{dep}} = 50, 150, 350, 500$  nm に定めたとき (2.12)から計算される $\alpha$ の計算値 (b)見かけ上のチャネル幅と実効的なチャネル幅の違い (c)  $\alpha$ の特異性を予測した Xu らによる計算結果<sup>115</sup>

#### 2.4.6 室温バリスティック

最後に今回の現象の温度依存性についても論ずる。素子 B に対して  $V_{\text{bg}} = 25$  V に固定しながら測定した磁気抵抗の温度依存性が Fig. 2-15 である。温度の上昇とともに平均自由行程が減少しバリスティック性が失われていくことで磁気抵抗のピーク振幅が減衰しているが、300 K という室温においてもピーク構造が維持されていることが分かる。このことは、450 nm というマイクロメートルオーダーに近いスケールの系においても、室温でバリスティック伝導が維持されていることを意味しており、従来の半導体二次元電子系ではフォノンの影響で観測が困難な現象が、1.2.3 や 1.3.2 で論じたような室温高移動度というグラフェンの特性により発現できたと言える。

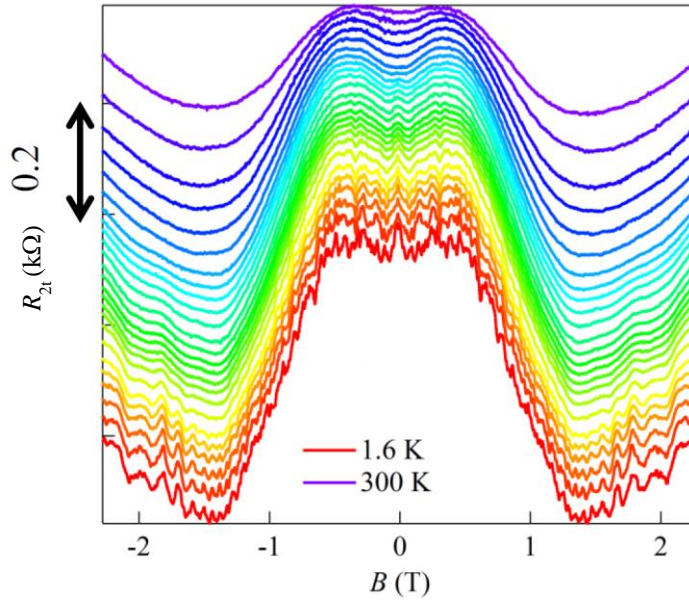


Fig. 2-15 素子 B の  $V_{bg} = 25$  V,  $T = 1.6$  K ~ 300 K における磁気抵抗 (y 軸方向にオフセットを加えている)

#### 2.4.7 バリスティック伝導の実現まとめ

h-BN を基板として用いたグラフェン/h-BN 積層構造をドライ転写法により作製し、試料幅の異なる複数のサンプルにおいて高移動度な試料を作製することに成功した。またこれらの試料においては、試料端の散乱に由来する磁気抵抗の特異なピーク構造が観測され、バリスティック伝導が実現できていることが確認された。更に、グラフェン特有の性質として、ピーク磁場値の特異性や室温でもバリスティック伝導が実現していることが確認された。

### 2.5 バリスティックかつコヒーレントな npn 接合の実現

前節では、Global な back gate のみで一様にキャリアを誘起した系において、高移動度化とバリスティック伝導の観測に成功した結果について述べた。更に Dirac fermion optics という概念に近づいていくためには、1.3.2 や 1.3.3 で紹介しているデバイス構造から分かるように、pn 接合を作製することが必要となる。本節では、高移動度のグラフェン npn 接合を作製した結果について述べる。また、高移動度化によって、この npn 接合においては pn 界面をハーフミラーとする Fabry-Perot 干渉の観測が達成され、電子の波としての性質が露わになったコヒーレント伝導が実現していることも報告する。



### 2.5.1 先行研究と課題

pn 接合を作製するためには、チャンネル上に局所ゲート用の絶縁膜を用意する必要があり、h-BN の登場以前には高誘電率材料<sup>82,117–120</sup>や PMMA<sup>121,122</sup>や SiO<sub>2</sub><sup>123,124</sup>などが試されてきた。このうち Young らは 2009 年に HSQ/HfO<sub>2</sub> 上に超微細加工を用いて幅 20nm の top gate を作製し[Fig. 2-16(a)]、その下に形成される npn 接合において電子波の Fabry-Perot 干渉の観測を報告した[Fig. 2-16(b),(d)]<sup>117</sup>。この結果は、磁場を加えたときに干渉パターンの位相が $\pi$ シフト<sup>125,126</sup>することから[Fig. 2-16(c)]、pn 界面における Klein tunneling の初めての直接的な観測であると捉えられている。

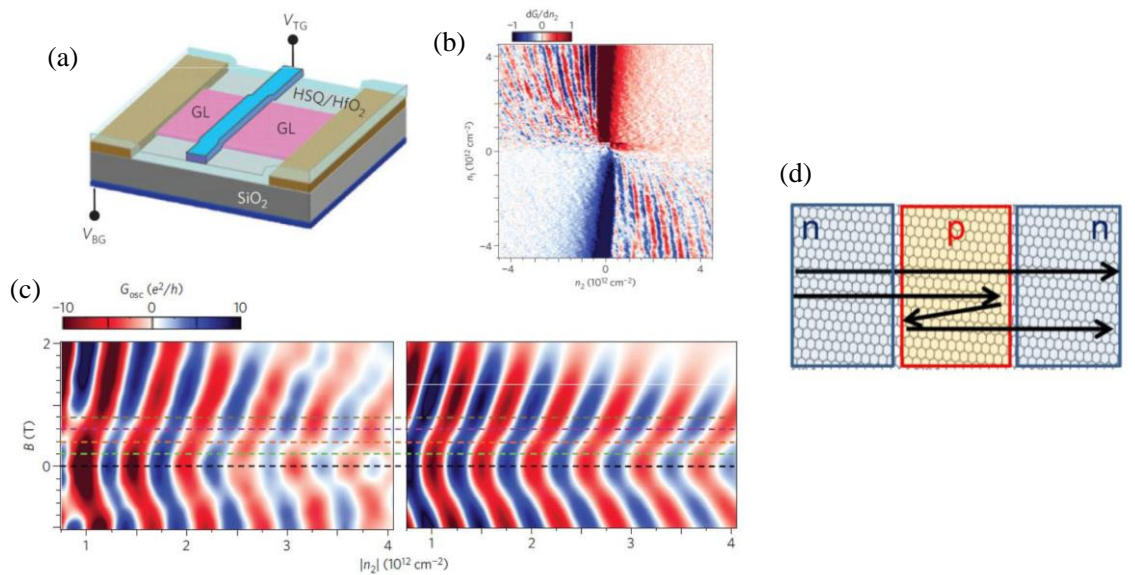


Fig. 2-16 (a) Young らのサンプル構造<sup>117</sup> (b) Fabry-Perot 干渉の観測<sup>117</sup> (c) 位相シフト(左実験、右計算)<sup>117</sup> (d) Fabry-Perot 干渉模式図

一方で彼らのデバイスにおいては、SiO<sub>2</sub> 上のグラフェンに HSQ/HfO<sub>2</sub> 絶縁膜が接していることから、グラフェンの移動度が基板と絶縁膜の影響で顕著に抑制されていた。そのため、平均自由行程が 100 nm 以下と短く、20 nm という非常に長さの短い top gate を利用することで、接合内でバリスティック伝導を実現する必要があった。Dirac fermion optics を実現するには、自由自在にゲート構造の形状を変化させながら、バリスティックやコヒーレントな電子の動きを制御する必要があり、20 nm という微細なリソグラフィが必要な構造はサンプルのデザインの自由度を極めて抑制し不適切である。グラフェンの移動度を抑制させることなく pn 接合を作製する取り組みが徐々に求められていた。

## 2.5.2 素子構造と局所キャリア変調

そこで本研究では、2.3.1 のドライ転写法を繰り返すことで h-BN/グラフェン/h-BN 構造を作製し、そこに局所的な top gate 構造を蒸着することで Fig. 2-17(a),(b)のような構造を作製した。h-BN は前節で示したように、グラフェンとの相互作用が小さくグラフェンの移動度を悪化させない。そのため、top gate の絶縁膜として利用しても、グラフェンが高移動度を保ったまま局所キャリア変調が実現できると期待される。Top gate の長さ  $L$  は 410 nm となっており、Young らの実験と比べて 20 倍以上長い。この素子では、キャリア密度をグローバルに変調する back gate と局所的に変調する top gate に独立に電圧を印可することによって、top gate 直下のキャリア密度  $n_2$  とそれ以外のキャリア密度  $n_1$  を以下の式に基づいて独立に変調することができる。

$$n_1 = C_{bg} V_{bg} / e \quad (2.13)$$

$$n_2 = (C_{tg} V_{tg} + C_{bg} V_{bg}) / e \quad (2.14)$$

ここで  $C_{tg}$  はグラフェンと top gate のゲートキャパシタンスである。Fig. 2-17(c)にこの接合の 1.6 K における二端子抵抗(端子 A,B 間)の  $V_{bg}$ ,  $V_{tg}$  依存性を示す。 $V_{bg} = 0$  V の領域(水平方向)と  $V_{bg}/V_{tg}$  一定の領域(斜め方向)に抵抗が高い領域が存在することが分かる。(2.13)(2.14)からキャリア密度が 0 になることで抵抗が高くなる領域は  $V_{bg} = 0$  および  $V_{bg}/V_{tg} = -C_{tg}/C_{bg}$  の領域であると予想できるが、この結果と定性的によく一致している。逆に定量的には、Fig. 2-17(c)の  $V_{bg}/V_{tg}$  一定の斜めの線の傾きを求めることで  $C_{tg}/C_{bg}$  が求まることが分かり、Fig. 5-5(b)を用いて求めた  $C_{tg} = 5.6 \times 10^{-4}$  F/m<sup>2</sup> を用いると  $C_{bg} = 1.2 \times 10^{-4}$  F/m<sup>2</sup> となる。なお、この  $C_{tg}$  の値は、h-BN の厚みが 50 nm であることを加味すると h-BN の誘電率が 3.2 であれば説明可能であり、h-BN 誘電率の他の研究結果<sup>127</sup>とよく一致していることから確からしい。

Fig. 2-17(d)は  $V_{tg} = -0.2$  V に固定して抵抗値の  $V_{bg}$  依存性を測定した結果である。 $V_{tg} = -0.2$  V は上記の二本の抵抗が高い領域( $n_1 = 0$  および  $n_2 = 0$ )が交点を取るときの  $V_{tg}$  であり、この状況では top gate の影響を排しグラフェンに一樣なキャリアを誘起できていることから、2.4 で紹介したような通常の back gate のみのデバイスとの品質の比較が行いやすい(理想的にはこの状況は  $V_{tg} = 0$  V にて起こるはずだが、top gate による doping の影響等により 0.2 V 分の小さなオフセットが生じている)。この  $V_{bg}$  依存性において、急峻な抵抗のピーク構造が  $V_{bg} = 0$  V に見られることが分かり、不純物や不均一のない高品質な試料が作製できていることが示唆される。実際にこの結果から、2.4.2 と同様の方法を用いて移動度を評価すると約 70,000 cm<sup>2</sup>/Vs となり  $n \sim 10^{12}$  cm<sup>-2</sup> の領域では平均自由行程がマイクロメートルのオーダーに達するバリスティックな系が実現していることが分かる。h-BN をゲート絶縁膜として利用しても、グラフェンの高移動度を維持できることを示している。また、Fig. 2-17(e)は  $V_{bg} = 10$  V に固定して抵抗値の  $V_{tg}$  依存性を見た結果のうち、 $V_{tg}$  を -10 V から 10 V に向けて掃引

したもの(青)と 10 V から -10 V に向けて掃引したもの(赤)を比較したものである。二つの結果の間で Dirac 点の場所に大きな変化が見られないことから、h-BN がヒステリシスの少ない良質なゲート絶縁膜であることも分かる。

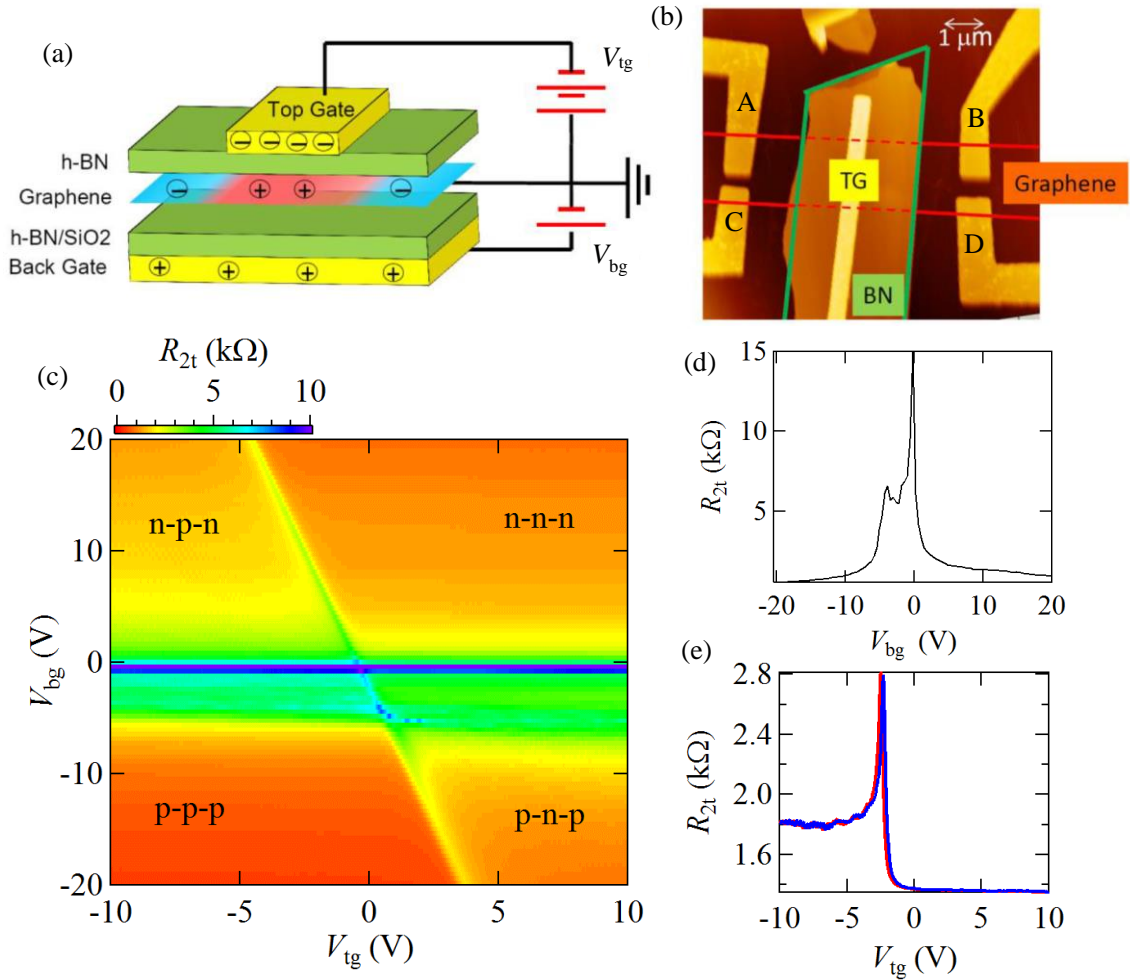


Fig. 2-17 (a) 素子構造模式図 (b) 素子 AFM 像 (c)  $T = 1.6$  K における  $R_{2t}$  の  $(V_{tg}, V_{bg})$  平面へのカラープロット (d) (c) の  $V_{tg} = -0.2$  V における  $V_{bg}$  方向の line cut (e) (c) の  $V_{bg} = 10$  V における  $V_{tg}$  方向の line cut (青 : upsweep, 赤 : downsweep)

### 2.5.3 Fabry-Perot 干渉

更に詳細に npn 接合が実現している時を見るために、Fig. 2-17(e)のうち npn 領域 ( $-4$  V <  $V_{tg}$  <  $-10$  V) での抵抗値の  $V_{tg}$  依存性を見た結果が Fig. 2-18(a)である。抵抗値が  $V_{tg}$  の関数として顕著に振動している様子が見られる。より振動構造を見やすくするために Fig. 2-17(c)の結果を  $V_{tg}$  方向に微分した結果が Fig. 2-18(b)であるが、nnp 領域と pnp 領域において明瞭な振動構造が見られていることが分かる。特に振動の等位相面が  $n_2 = 0$  の直線と平行に、つまり  $n_2 = (\text{一定})$  の領域に沿って見られていることが分かる。この結果は、Young らの結果と

一致しており、nnp 接合の中で Fig. 2-16(d)の模式図で示したような電子波の Fabry-Perot 干渉の観測に成功したことを意味している。

具体的には、この干渉効果は  $k_F \times 2L = 2\pi N$  ( $N$  は整数) が実現したときに強め合いが生じるはずである。ここで、フェルミ波数は  $k_F = \sqrt{n\pi}$  で記述されることから、干渉の等位相面は top gate 直下のキャリア密度一定の領域に見られるはずであり、確かに実験結果と整合している。定量的には、振動周期は一つ目の強め合いと次の強め合いの間隔を意味するので、

$$\left(\sqrt{(n+\Delta n)\pi} - \sqrt{n\pi}\right) \times 2L = 2\pi \rightarrow \Delta n \sim \frac{2\sqrt{n\pi}}{L} \quad (2.15)$$

となるはずである。これを今回の実験で用いた  $n \sim 1.5 \times 10^{12} \text{ cm}^{-2}$ ,  $L \sim 410 \text{ nm}$  を代入して計算すると  $\Delta n \sim 1.1 \times 10^{11} \text{ cm}^{-2}$  となり、これはゲート電圧換算で  $C_{\text{tg}} = 5.6 \times 10^4 \text{ F/m}^2$  のもとで  $\Delta V_{\text{tg}} \sim 0.30 \text{ V}$  となることから、実験の振動周期のオーダー ( $\Delta V_{\text{tg}} \sim 0.25 \text{ V}$ ) と一致している。実験結果が計算結果に比べて小さくなっている原因として、Klein tunneling の影響により干渉経路の長さ  $L$  が実効的に長くなっていることが考えられる。この点については、2.5.5 において簡単に論ずる。

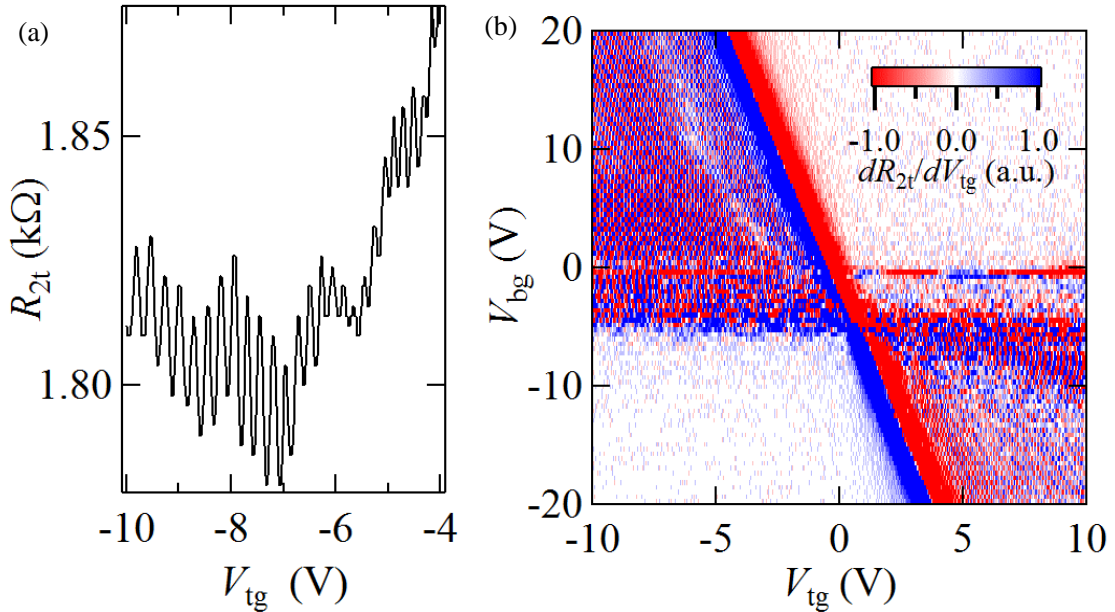


Fig. 2-18 (a) Fig. 2-17(e)の  $-10 \text{ V} < V_{\text{tg}} < -4 \text{ V}$  における拡大図 (b) Fig. 2-17(c)の  $V_{\text{tg}}$  方向微分カラープロット

以上の結果から、今回作製した h-BN を基板及び top gate 絶縁膜として用いたグラフェン npn 接合においては、マイクロメートルオーダーの平均自由行程を持つような高移動度が実現しており、Fabry-Perot 干渉というコヒーレント現象が観測できていることが分かった。干渉効果自体は Young らが  $\text{SiO}_2$  上グラフェンにおいて実現したのと同じであるが、2.5.1 で指摘したように彼らはその移動度の低さを補完するために top gate の長さを  $20 \text{ nm}$  と極めて

小さくすることで初めて観測に成功していた。今回のデバイスはこれが 500 nm 程度であり、マイクロメートルオーダーの系においてもバリスティックかつコヒーレントな伝導を npn 接合において実現できたと言える。前節で h-BN は基板として優れた物質であると論じたが、本節の結果から、ゲート絶縁膜としても接合の移動度を抑制しない物質であることが分かる。

将来的に Dirac fermion optics の概念を発展させて、このバリスティックかつコヒーレントな伝導を接合内でより能動的に制御しようとする、デバイス構造の設計に高い自由度が必要になると言え、本デバイスのように超微細加工の精度に頼る必要のない巨視的なスケールの高移動度接合が作製できたことは、非常に重要な進展である。

## 2.5.4 Fabry-Perot 干渉の温度依存性

デバイスの品質を更に評価するために温度依存性の測定も行った。Fig. 2-19(a)が  $V_{bg} = 20$  V において見られる Fabry-Perot 干渉の温度依存性の結果である。振動振幅  $R_{osc}$  を  $T$  の関数としてプロットしたのも Fig. 2-19(b),(c)黒点のように示す。温度上昇とともに振動振幅が減衰し、15 K 付近で振動が消失していることが分かる。振動振幅が減衰する理由の候補として、温度上昇に伴う移動度の減少と熱揺らぎによるコヒーレンスの減衰の二つが挙げられる。

まず一つ目の移動度の減少について調べるために、移動度の温度依存性をプロットしたものが Fig. 2-19(b)となる。この温度領域においては移動度の減衰はほとんど見られていないことが分かる。このことから今回の干渉の消失は移動度変化とは無関係であることが分かる。一方 Young らの先行研究においては、この移動度の減衰による平均自由行程の減少が干渉の振動振幅に大きく影響を与えていると考察されている。この違いからも、今回利用したデバイスが先行研究と異なり十分に高移動度なデバイスを作製できていることが分かる。

次に、熱揺らぎによるコヒーレンスの減衰の効果について調べる。一般的に有限の温度環境下にある電子系は、 $k_B T$  のオーダーでフェルミエネルギーが揺らいでおり、電子波の波長も  $k_B T = \hbar v_F \Delta k$  に従って  $\Delta k$  だけ揺らいでいるはずである。この波長の揺らぎは波が長い距離を伝搬するにしたがって蓄積されて、干渉を減衰させるはずであり、熱波長

$$L_{\text{thermal}} = \frac{1}{\Delta k} = \frac{\hbar v_F}{k_B T} \quad (2.16)$$

だけ電子波が進行すると干渉が消失することが知られている( $v_F$ :フェルミ速度)。この熱波長を温度の関数としてプロットしたものが Fig. 2-19(c)である。温度とともに減少していることが分かり、温度上昇によってコヒーレンスを維持できる長さスケールが短くなっていることが分かる。ここで注目すべきことは、熱波長の値が 15 K 付近において 500 nm 弱にな

っている点である。Fabry-Perot 干渉を観測するために電子波は少なくとも top gate の長さ分はコヒーレンスを維持している必要があり、今回作製した試料の top gate の長さと熱波長とが同じ長さスケールになる温度において振動構造が消失していることは、実験結果を良く説明している。

以上の結果から、今回観測された Fabry-Perot 干渉の振動振幅は、サンプルの品質によって決まる移動度ではなく、実験系の環境で決定する熱揺らぎに依存していることが分かり、高品質な試料を作製できたことが裏付けられる。

将来的に高温においても干渉効果を保存させ、振動振幅を向上させる方法として、top gate 長さを短くするという手法が考えられる。例えば Young らが用いたような 20 nm の top gate 長さの素子で実験を行えば、彼らの低移動度デバイスでは室温においてバリスティック性が失われて振動の観測が実現できなかったが、今回のような高移動度デバイスにおいては室温においても十分に平均自由行程が長く(2.4.6 で既に同程度の品質のサンプルで室温バリスティックの実現が実証されている)、熱波長(室温において約 25 nm)とともに室温で 20 nm を十分に超える。そのため、室温でのコヒーレントな干渉現象の観測が原理的に可能になると考えられる。

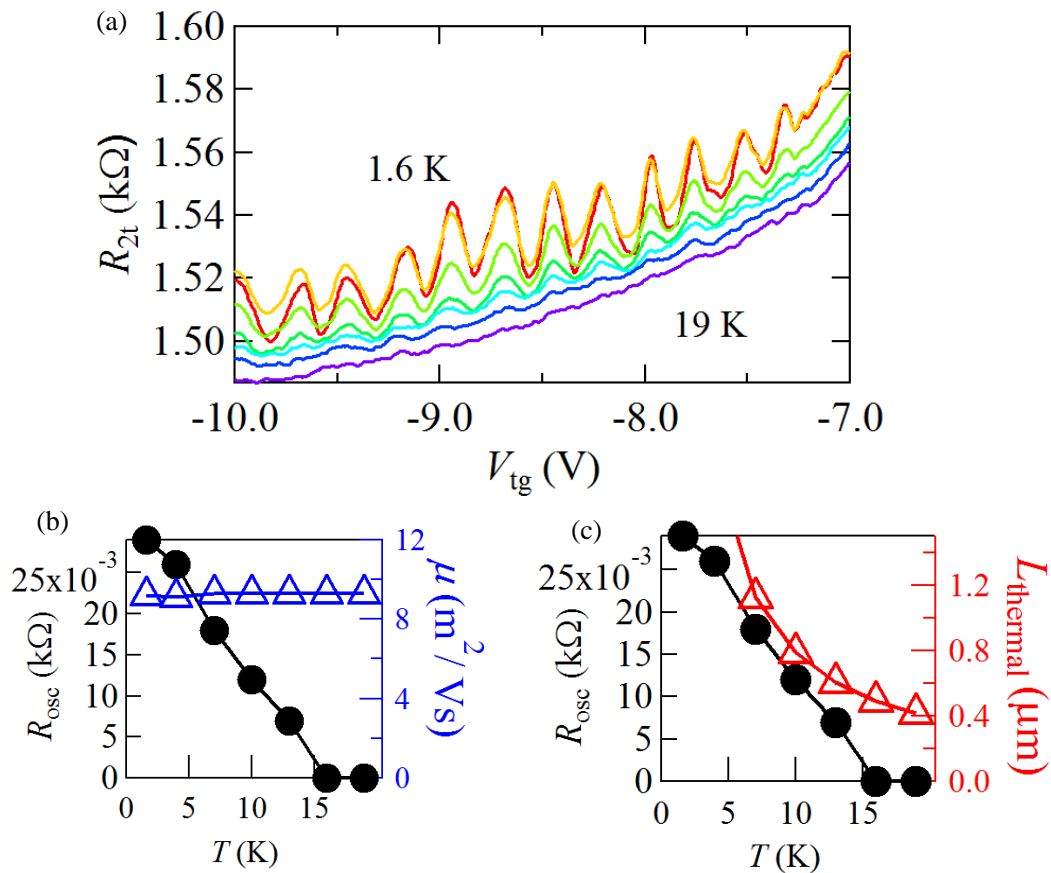


Fig. 2-19 (a) 1.6 ~ 19 K における  $V_{bg} = 20$  V での二端子抵抗の  $V_{tg}$  依存性 (b),(c) 振動振幅の温度依存性と移動度(b)・熱波長(c)の温度依存性との比較

### 2.5.5 Klein tunneling と Berry 位相の影響

Young らはこの Fabry-Perot 干渉の磁場依存性を測定することで、1.3.2 で紹介した pn 界面における相対論的現象 Klein tunneling の影響が観測できるという議論も行っている。本デバイスでもこの結果が見られているので、以下にその解釈とともに紹介する。

Fig. 2-20(a)に、 $V_{bg} = 20 \text{ V}$ ,  $T = 1.6 \text{ K}$  に固定し  $V_{tg}$  を変化した時に観測される Fabry-Perot 干渉の磁場依存性を載せる。磁場を印加していくと、40 mT 付近で矢印に示したように振動の位相が半位相シフトしている様子が見られる。この現象は、二端子抵抗を  $V_{tg}$  に対して微分したデータを  $(V_{tg}, B)$  平面にプロットした Fig. 2-20(b)において、より明瞭に確認することができる。

この振動位相のシフトは、以下のように Klein tunneling を考慮に入れた電子波の軌道を考え、更にグラフェン特有の物理自由度であるベリ一位相を考えることで説明することができる。まず、ここまで今回の Fabry-Perot 干渉の干渉経路として、Fig. 2-16(d)のような経路を想定して議論を進めてきたが、正確にはこの描像は誤っている。なぜなら pn 界面での Klein tunneling を考慮すると、キャリアが Fig. 2-16(d)のように pn 界面に垂直入射する場合は反射が生じないために、干渉経路が存在できないからだ。実際には、Fig. 2-20(c)に示すように、各界面において非ゼロの入射角を有して複数回反射するような経路同士が干渉していると考えられる。磁場を加えた場合も同様で、Fig. 2-20 (d)のように、各界面における入射角が非ゼロの値を取るような干渉経路によって抵抗振動が生じる。

ここで Fig. 2-20 (c),(d)それぞれについて、干渉の位相に寄与している赤の軌道が、波数空間内でどのような状態に対応するかを示した図が Fig. 2-20 (e),(f)になる。ゼロ磁場においては、二つの状態間を反射によって行き来するだけの状態遷移となっているが[Fig. 2-20(e)]、磁場下においては、接合内を進行しているときにキャリアがサイクロトロン運動をすることから、反射 $\rightarrow k_y$ の符号変化 $\rightarrow$ 反射 $\rightarrow k_y$ の符号変化という状態遷移を起こす[Fig. 2-20(f)]。ここで磁場の有無によって大きく異なる点として、状態の遷移が波数空間上の原点を囲むか否かが挙げられる。この原点はグラフェンの Dirac 点に対応していることからトポロジカルに特異な点であり、この点を囲んで状態が遷移すると、電子波はトポロジカルな位相である Berry 位相を $\pi$ 獲得することが知られており<sup>125,126</sup>、今回観測された位相シフトがこの効果によるものと説明することができる。

またこのように、Klein tunneling によって非ゼロの入射角を持つ経路が干渉を支配するということは、Fabry-Perot 干渉を考える際の経路  $L$  が top gate の長さ  $L = 410 \text{ nm}$  よりも実効的に長いということも意味している。そのため、(2.15)から求まる振動周期は  $L = 410 \text{ nm}$  を用いた場合よりも小さくなると考えられ、この効果が 2.5.3 において振動周期の実験値(0.25 V)が計算値(0.3 V)よりも小さくなった要因であると考察することができる。



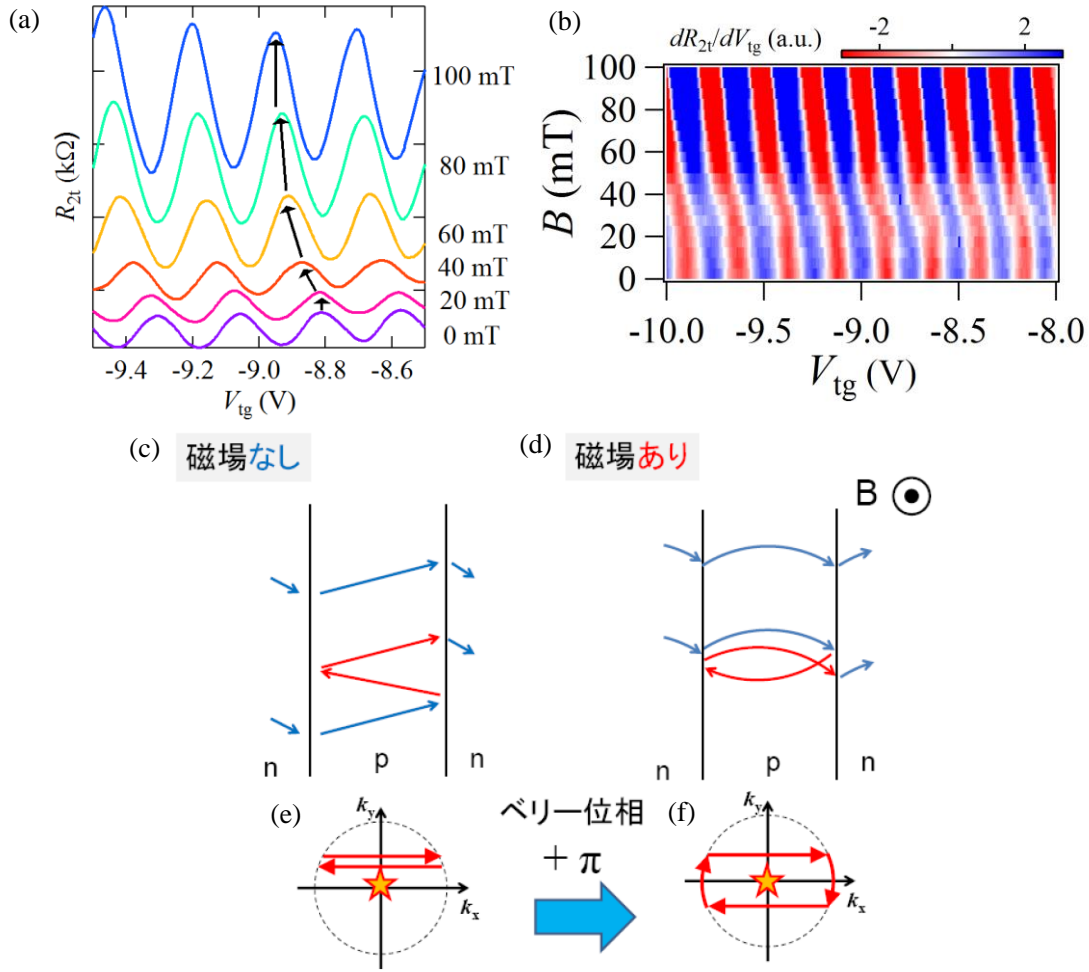


Fig. 2-20 (a)  $T = 1.6$  K,  $V_{bg} = 20$  V における二端子抵抗の磁場依存性 (b) (a)のゲート電圧微分を  $(V_{tg}, B)$  平面内にカラープロットしたもの (c),(d) 磁場なしと磁場ありの場合で Fabry-Perot 干渉に寄与する電子の軌道 (e),(f) (c),(d) に対応する波数空間での状態遷移

## 2.5.6 バリスティックかつコヒーレントな npn 接合の実現まとめ

2.4 で実現した h-BN 上高移動度グラフェンの上に、h-BN を更に top gate の絶縁膜として転写し、局所キャリア変調によって npn(pnp)接合の作製に成功した。この接合では p(n)型部のキャリア密度の関数として抵抗が顕著に振動する現象が観測され、この接合を cavity とする電子波の Fabry-Perot 干渉が実現していることが分かった。従来 Fabry-Perot 干渉が報告されていた低移動度グラフェンの系に比べて、cavity 長が一桁以上大きくなったことから、巨視的なスケールにおいてバリスティックかつコヒーレントな伝導が実現している、高品質な npn 接合の作製に成功したと言える。



## 2.6 本章のまとめ

h-BN を基板およびゲート絶縁膜として利用することで、高移動度かつ平均自由行程の長い素子を作製することができ、従来の SiO<sub>2</sub> 上グラフェンでは実現しえなかったマイクロメートルオーダーという巨視的なバリスティック伝導の実現に成功した。特に、h-BN を局所ゲートの絶縁膜として用いた系では、局所キャリア変調を行うことで npn 接合を実現し、Fabry-Perot 干渉の観測によってコヒーレントな伝導も実現していることを確認した。このことにより、電子の波としての性質を明らかにする実験が行えるだけでなく、pn 界面という電子波の制御を行う上で重要な要素を、高品質を保ちながら作製することができたと言える。以上の結果は、この後紹介していくグラフェン量子輸送現象の電子光学的制御に向けて実験系の整備が完了したことを意味する。

## 2.7 展望 ～vdW 積層構造の発展と h-BN の役割～

2.3 で示した方法に代表される原子層積層技術の向上により、vdW 積層構造を用いた物性・機能探索の研究はここ数年で爆発的な広がりを見せている。特に近年では、Dirac 電子系のグラフェンや絶縁体の h-BN だけでなく、MoS<sub>2</sub> をはじめとした半導体物質<sup>128-130</sup>、NbSe<sub>2</sub> をはじめとした超電導物質<sup>105,131,132</sup>、更には強磁性物質<sup>133</sup> など、様々な物性を持つ原子層物質が発見されており、これらの組み合わせで作製される積層構造について電子物性・光学物性などを中心に数多の研究が進んでいる<sup>91,92</sup>。

その中でも h-BN は未だ唯一の絶縁体物質と言える。2.1.2 でも論じたように将来的に任意の積層構造を作製しながら研究を進める上で絶縁体の存在は必要不可欠であることから、h-BN の重要性は日に日に大きくなっていると言っても過言ではない。たとえば今回は取り扱わなかったが、数層レベルまで h-BN を薄層化することによってトンネルバリアとして利用できることも<sup>134-136</sup> その汎用性を示す好例である。本研究で実現した基板・絶縁膜としての有用性の証明およびそれに伴った積層技術の向上は、このような vdW 積層構造の発展に向けても重要な礎となる成果と言えるだろう。

## 第3章 楕形 npn 接合を用いた透過率制御

前章の結果から、h-BN を基板やゲート絶縁膜として用いることで、グラフェンの移動度が向上し、グラフェンにおいてもバリスティックかつコヒーレントな伝導を実現させることで、電子光学の実験を行う実験系の準備が整ったと言える。本章からは、具体的に楕形 npn 接合という系を用いてバリスティックキャリアを制御し、抵抗増大や磁気抵抗符号の制御を行った結果について報告する。

なお本章で報告する結果は、3.3 の内容を

“Dirac fermion reflector by ballistic graphene sawtooth-shaped npn junctions”

S. Morikawa, Q. Wilmart, S. Masubuchi, K. Watanabe, T. Taniguchi, B. Plaçais, and T. Machida

Semiconductor Science and Technology, <https://doi.org/10.1088/1361-6641/aa6102>.

で発表しており、3.4 の内容を

“Comparison of magnetoresistances of triangular and rectangular ballistic graphene npn junctions”

S. Morikawa, S. Masubuchi, K. Watanabe, T. Taniguchi, and T. Machida

Japanese Journal of Applied Physics **55**, 100305 (2016).

で発表している。

### 3.1 キャリア密度の異なる界面における電子波屈折

#### 3.1.1 スネルの法則

1.3.1 で議論したように、フェルミエネルギーの異なる界面において電子波は屈折を起こす。また、1.3.2 で紹介したようにグラフェンの pn 接合においては、負の方向への屈折も起こりうる。本項では、これらの点についてより定量的な議論を行う。

まず、グラフェンがスピン・バレーの四重縮退を持つ系であることを考慮すると、フェルミ

波数とキャリア密度の間に、 $k_F = \sqrt{|n|}\pi$  (3.1) の関係式が成立する<sup>8</sup>。この関係から  $n$  の

違う界面を作れば  $k_F$  が違う界面を作れることが分かる。また、グラフェンは両極性電界効果を示すことからキャリア密度  $n$  を符号付きで扱う必要があることに注意する( $n > 0$ :電子,  $n < 0$ :ホール)。これにより、キャリア密度  $n_1$  と  $n_2$  の界面においては、(1.7)を拡張した式として、

$$\text{sgn}(n_1)\sqrt{|n_1|}\pi \sin \theta_1 = \text{sgn}(n_2)\sqrt{|n_2|}\pi \sin \theta_2 \quad (3.2)$$

という Snell の法則が成立する。ここで、1.3.2 で議論した負の屈折も考慮に入れるために、キャリアの符号に関する項が加わっており、pn 接合の時は、屈折角が負の値をとるように

なっていることに注意する。これを変形することで、

$$\theta_2 = \text{sgn}\left(\frac{n_1}{n_2}\right) \text{Arcsin}\left(\sqrt{\left|\frac{n_1}{n_2}\right|} \sin \theta_1\right) \quad (3.3)$$

という屈折角を求める式を得ることができる。この式から

$$\theta_2 > \theta_1 \quad (n_1 > n_2) \quad (3.4)$$

$$\theta_2 < \theta_1 \quad (n_1 < n_2) \quad (3.5)$$

が分かり、Fig. 3-1 のような屈折が実現する。また、 $n_1 > n_2$  の時は  $\theta_1 > \text{Arcsin}\left(\sqrt{|n_2/n_1|}\right)$  が成立すると、(3.3)の解が存在できないため全ての電子が反射する。これは光学の概念で言うと全反射と同じ現象であり、

$$\theta_c = \text{Arcsin}\left(\sqrt{|n_2/n_1|}\right) \quad (3.6)$$

は全反射臨界角に対応する。

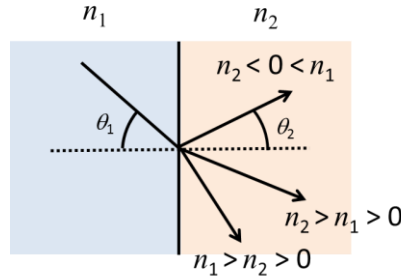


Fig. 3-1 グラフェンにおけるスネルの法則

### 3.1.2 透過率の角度依存性・Klein collimation

前項では、グラフェンの電子波にとっての「スネルの法則」を導入することで、屈折を起こす場合にその屈折角がいくつになるかを導出した。ここまでは、通常の光学における光波屈折と同じアナロジーで議論が可能であった。

一方で、入射した電子の一部(もしくは全て)は屈折せず反射し得る。そこで本項では入射電子の透過率、つまりどの程度の電子が反射せず屈折するか、に関して定量的な議論を行う。この透過率の入射角依存性を見ていくと、Klein collimation をはじめとした「グラフェンらしさ」が露わになってくる。

電子波の透過率  $T$  の入射依存性は、様々な文献で議論されているが、キャリア密度の符号や、界面のポテンシャル形状の違いによって様々な立式がある。ここでは、Cayssol らが

導いた、

$$T = 1 - \frac{\sinh(\pi d \kappa^{+-} / 4.5) \sinh(\pi d \kappa^{-+} / 4.5)}{\sinh(\pi d \kappa^{++} / 4.5) \sinh(\pi d \kappa^{--} / 4.5)} \quad (3.7)$$

という式を用いる<sup>137</sup>。ただし、

$$\kappa^{\rho\sigma} = \text{abs}(n_2) \sqrt{|n_2|} \pi (1 + \rho \cos \theta_2) - \text{abs}(n_1) \sqrt{|n_1|} \pi (1 - \sigma \cos \theta_1) \quad (\rho, \sigma = \pm 1) \quad (3.8)$$

と定義する。なお界面のポテンシャル形状に関しては、位置  $x$  の関数として

$$V(x) = V_0 \frac{1}{1 + \exp(-4.5x/d)} \quad (3.9)$$

を仮定している。ここで(3.7)は、全てのポテンシャル形状やキャリア密度の符号に適用可能である。特に、スムーズな界面において成立する式<sup>138</sup>と、急峻な界面において成立する式<sup>72</sup>のどちらの極限も満たし、その二つの間を補完した式となっているところが、本関係式の優れた点である。

この式に従って、電子波の透過率の入射角依存性を計算した結果が Fig. 3-2 である。急峻な界面と緩やかな界面の違いを見るために  $d = 1 \text{ nm}$  の場合と  $d = 120 \text{ nm}$  の場合を計算している。緩やかな界面として  $d = 120 \text{ nm}$  という値を利用した理由として、3.3 で紹介する実際に利用したデバイスの界面ポテンシャル形状を想定している。具体的には、厚さ~50 nm の h-BN ゲート絶縁膜に電圧を加えた際のポテンシャル形状を有限要素法を用いてシミュレーションした結果(詳細は 5.4.3 にて紹介する)から見積もられる  $d$  の値を用いている。今回は簡単のため、(3.9)を用いて  $V(x) = 0.1V_0$  と  $V(x) = 0.9V_0$  となる  $x$  の差を使って  $d$  を近似した。入射側のキャリア密度の絶対値が  $2 \times 10^{12} \text{ cm}^{-2}$  と大きく、出射側のキャリア密度の絶対値が  $9 \times 10^{10} \text{ cm}^{-2}$  と小さいケースを考えていることから、全反射臨界角(3.6)が定義でき、確かに全ての場合において  $|\theta| > \sim 12$  度の時に透過率が完全にゼロとなっていることが分かる。

まず、nn'接合の場合の(a)と(b)を比べてみる。ポテンシャルの形状が緩やかになるにつれて( $d$ が大きくなるにつれて)透過率分布が step 関数的、つまり全反射角より内側ではほぼ 1 に近づいていることが分かる。このことは、ポテンシャルの勾配が緩やかになることで、界面を透過する際にキャリアが受ける力(ポテンシャルの勾配に比例)が小さくなり、より透過しやすくなる、と解釈することができる。一方 pn 接合の場合の(c)と(d)を比べると、その逆の傾向になっていることが分かるが、この点についてはこの後で議論する。

次に nn'接合の場合(上段)と pn 接合の場合(下段)を比べてみる。ポテンシャルが急峻な場合( $d = 1 \text{ nm}$ )も緩やかな場合( $d = 120 \text{ nm}$ )も pn 接合にすることによって透過率が抑制されていることが分かる。このことは、pn 接合では界面にキャリア密度が非常に小さい領域(Dirac 点近傍)が含まれ、Fig. 1-19 で説明したように、たとえ入射角が全反射臨界角より小さかったとしても、角度をもって入射してきた電子は、局所的には途中で進行波としての解が存在せずエバネッセント伝導をしなければならないことから、透過率が著しく減少する、と説明

することができる。

このことから、透過のしやすさがキャリアの受ける力に依存する nn' 接合の場合と違い、pn 接合の場合においては、キャリア密度の小さい領域がどの程度の長さスケールで存在するか(電子がどの程度の長さエバネッセント伝導しなければいけないか)に透過率が強く依存している。そのため、(c)と(d)を比べると、(d)の方がポテンシャル形状が緩やかになることでその領域が長くなり、透過率の減少が顕著に見られる。実際、十分にスムーズな pn 界面における透過率分布は単純に、

$$T = \exp(-\pi k_F d \sin^2 \theta_1) \quad (3.10)$$

と書くこともでき<sup>138</sup>、 $\sin \theta_1$  に対して急峻なガウス分布で透過率分布が記述され、 $d$  の増加とともに、より急峻な分布となることが分かる。

一方で、どんなに緩やかな界面にしてキャリア密度が小さい領域を長くしても、入射角 0 においては透過率が 1 を保たれることも導かれている。この結果は、Fig. 1-19 で説明したように、垂直入射に関しては、擬スピンの保存から必ず透過率 1 になるという Klein tunneling に由来している。

以上の結果から、特に緩やかな pn 接合においては、入射角 0 での透過率は 1 であるが、その他の透過率においては透過率が顕著に抑制されていることが分かる。この透過率分布は、通常の光学における界面屈折とは全く異なる透過率分布であり、入射角 0 の電子のみ選択的に透過しやすく、自動的に出射角が垂直方向にコリメートされることから、Klein collimation と呼ばれる。

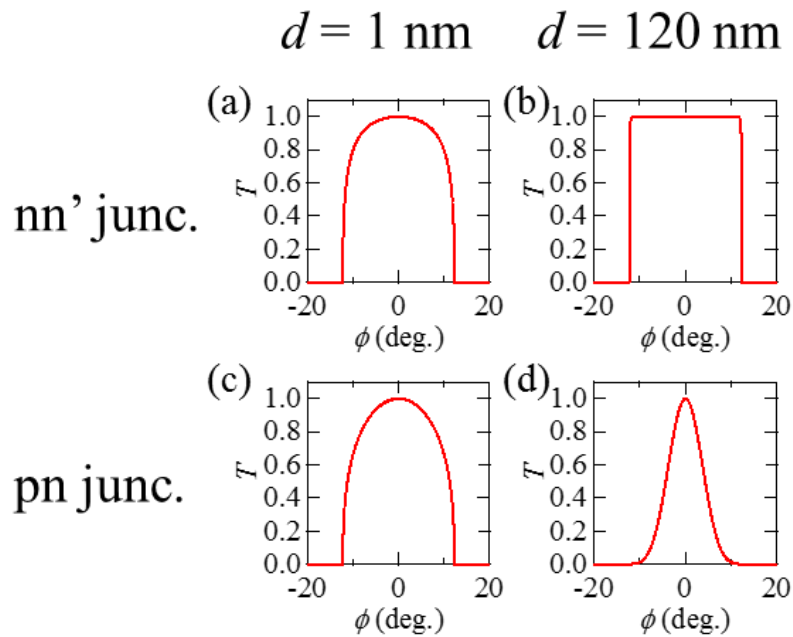


Fig. 3-2 nn' 接合,  $d = 1, 120 \text{ nm}$ (a,b) と pn 接合,  $d = 1, 120 \text{ nm}$ (c,d) における透過率の入射角度依存性

## 3.2 本章のねらい

前節で議論したように、キャリア密度の異なる界面を用意することで、グラフェン中の電子は屈折を起こす。この現象は、3.1.1 で議論した光学のアナロジーで説明可能な性質を有する一方で、3.1.2 のように定量的にはグラフェンにしか見られない性質も有する。今回我々は、これらの現象を利用することで、グラフェン中のバリスティックな電子波(Dirac fermion 波)の制御を行うことを目指した。具体的には、二つ目の界面が一つ目の界面に対してある角度を持つような接合を作製し、3.2.1 および 3.2.2 のような現象を観測することを目指した。

### 3.2.1 Klein collimation および全反射を用いた抵抗増大

Fig. 3-3 のように二つ目の界面が一つ目の界面に対して角度  $\alpha$  で傾きを持つような接合を考え、接合のキャリア密度比を調整することで、電子波の界面におけるコリメーションや全反射を制御し、接合の透過率の増減を実現することを試みる。

キャリア密度をそれぞれ  $n_1$ ,  $n_2$ ,  $n_1$  と定義し、簡単のため、 $n_2$  が  $n_1$  より大きい状況を考える。まず一つ目の界面においては、Fig. 3-1 から分かるように屈折角が入射角より小さくなることから、全ての方向から入射した電子は全反射臨界角  $\theta_c$  より小さな屈折角に集光されながら出射していくことになる。これらの電子が二つ目の界面に入射すると、一部は透過するが、一部は入射角が  $\theta_c$  より大きくなることから全反射を起こし、二つ目の界面を透過できない。単純に考えると、バリスティックな伝導が実現している場合、この二つ目の界面を透過できる電子の割合が多いほど、全体の接合透過率も高いと言える。

そこで、極端なケースである  $n_2$  が  $n_1$  よりも十分に大きい場合を考える。すると、臨界角がゼロに近づくことから、一つ目の界面を抜けたとき、全ての方向からやってきた電子が殆ど垂直出射方向にコリメートされながら二つ目の界面に向かうことになる。更に二つ目の界面においては、臨界角がゼロに近いことから、全ての電子の入射角が臨界角よりも大きくなり、全反射を起こすことになる。このことから、 $|n_2| \gg |n_1|$  において電子の透過率が著しく抑制されると予測することができる。

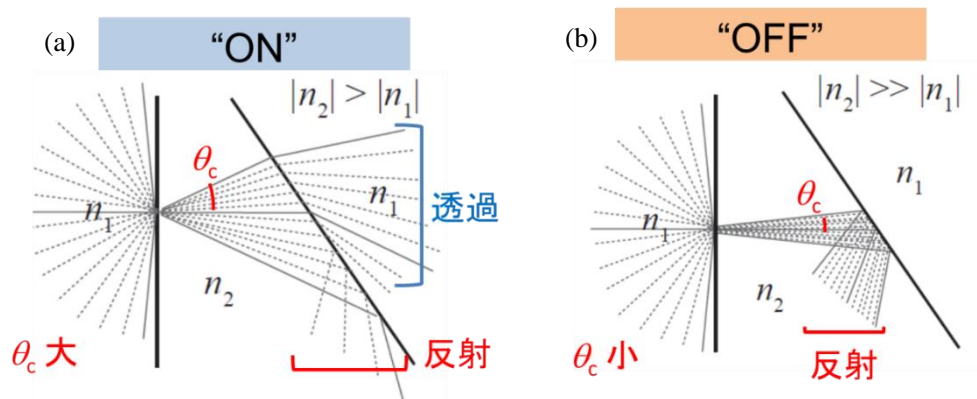


Fig. 3-3 コリメーションと全反射を利用した抵抗変調(ON 状態(a)と OFF 状態(b))

以上の定性的な考察はスネルの法則のみ考慮しており、キャリア密度の絶対値にしか依存をしていないので、接合の抵抗値は $|n_2| \gg |n_1|$ の状況であれば nn'n 接合でも npn 接合でも同様な上昇が見られると予測できる[Fig. 3-4(a)]。一方で、3.1.2 で議論したように、Klein collimation の効果を考えると、nn 接合に比べて pn 接合の方がコリメーションが効くことが分かっており、更に、Fig. 3-2(d)から分かるように、仮に全反射角よりも小さな入射角であっても透過率が顕著に抑制されていることから、「実効的な全反射角」はより小さいと捉えられる。このことから、Fig. 3-3 で議論したようなコリメーションおよび全反射による抵抗の増大は、nnp 接合の方が nn'n 接合よりもより明瞭に観測できると予測することができる[Fig. 3-4(b)]。

以上のことを理論的にも確認するために、仏理論グループの協力を得て、Fig. 3-4(c)の inset に書かれているような三角構造を有する接合での散乱理論を用いた計算を行った。計算方法は彼らの論文<sup>80</sup>にて詳細が議論されているが、アイデアとしては全ての場所から全ての方向に入射してくる電子がこの接合の中で複数回反射される場合、3.1.2 の透過率分布を用いて計算すると最終的にどの程度の確率で電子が接合を透過するか、を計算している。10 回以上の反射を経ても接合内に残っている電子の影響は計算量の問題で切り捨てているが、10 回以上を考慮して漸近していく解に比べて、切り捨てた場合の解は 10 パーセント程度しか誤差がないことを確認しており、十分な精度で計算が行われていると考えることができる。

得られた計算結果が Fig. 3-4(c)である。確かに定性的な予測の通り、 $|n_2| \gg |n_1|$ かつ npn 接合( $n_1 n_2 < 0$ )の領域において抵抗が最も増大していることが確認できる。今回、この抵抗増大を実際にも実験的に観測することを試みる。

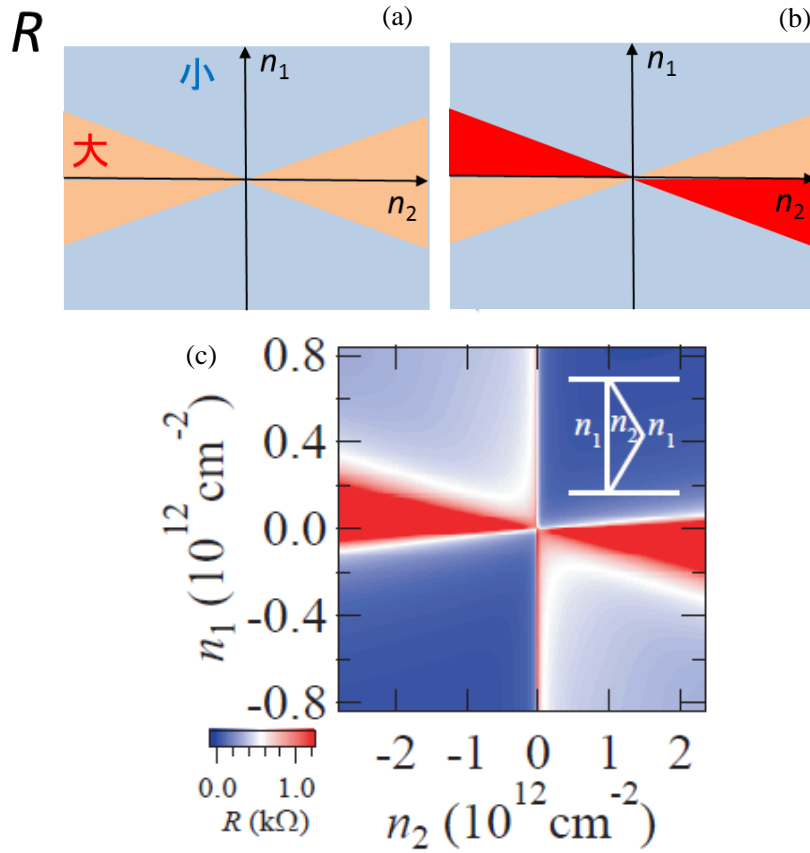


Fig. 3-4 抵抗値の  $n_1, n_2$  依存性の定性的予測(Klein collimation を考慮しない場合(a)と考慮した場合(b))と計算結果(c)

### 3.2.2 Klein tunneling を用いた磁気抵抗符号の変化

この tilted npn 接合では、低磁場下においてバリスティックなキャリアがサイクロトロン運動をするような状況でも、通常の接合の場合と異なる以下のような特徴的な結果が見られると予想できる。

通常の flat な npn 接合では、ゼロ磁場下においては、一つ目の界面を Klein tunneling した電子は、二つ目の界面も Klein tunneling できることから、キャリアが接合をスムーズに通過することができ、抵抗は低いと考えることができる[Fig. 3-5(a)]。これに磁場を加えると、一つ目の界面で Klein tunneling した電子は接合中でサイクロトロン運動をするために二つ目の界面ではもはや垂直入射とならず透過することが難しくなり、抵抗が増大する [Fig. 3-5(b)]。一方、tilted npn 接合においてはこの逆の現象が生じる。ゼロ磁場において、最初の界面を Klein tunneling で通過した電子は二つ目の界面において傾いた界面の影響で垂直入射とならずに透過率が低い[Fig. 3-5(d)]。しかし、磁場を加えキャリアがサイクロトロン運動を起こすと、サイクロトロン半径と試料のスケールがうまく整合した時に、キャリアが両方



の界面を Klein tunneling で通過可能な磁場が存在するようになり、抵抗が減少する [Fig. 3-5(e)]. つまり flat 接合と tilted 接合の間で、磁場を加えたときの磁気抵抗の符号の正負が逆転すると予測できる。更に磁場を加えていくと、どちらの接合においても、サイクロトロン半径が小さくなることで、そもそもバリスティックなキャリアが二つ目の界面に到達できなくなり、キャリアが界面をスキッピング運動し始める。これにより、更に抵抗が上がる と予測できる [Fig. 3-5(c),(f)].

このような磁気抵抗の振る舞いの違いを、二つの接合を比較することによって観測することを目指す。これが実現すれば、接合の形を変えることによって、サイクロトロン運動するバリスティックキャリアの動きを制御し、磁気抵抗そのものにも変調が加えられることを意味する。

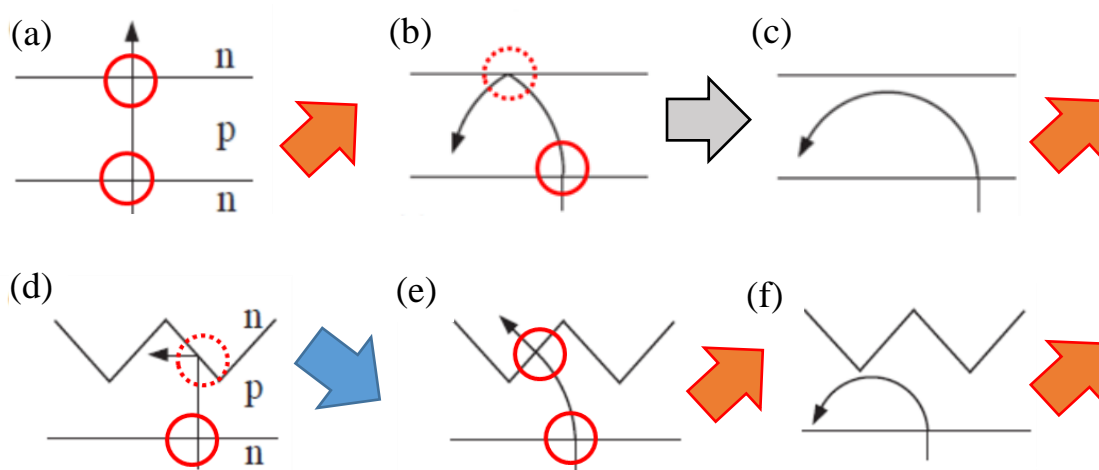


Fig. 3-5 flat 接合と tilted 接合における磁気抵抗の増減

### 3.2.3 意義付けと応用可能性

以上の 3.2.1 および 3.2.2 を観測できれば、接合の形をデザインすることによって、バリスティックキャリアの軌道を制御し、電子物性の変調が可能であることを意味し、Dirac fermion optics の典型的なデモンストレーションに成功できたと言えるだろう。ゲート構造を工夫することで電子光学的に様々な機能をもたらすことができることは、1.3.3 で紹介済みであり、このような機能の実現に向けた第一歩となる実験結果となりうる。

更に、3.2.1 はデバイス応用という観点からも魅力的な機能である。そもそもグラフェンのデバイス応用に向けての最大の課題は、ギャップレスなバンド構造を反映して、全てのエネルギーに状態密度が存在してしまうことから、電流の抑制状態(OFF 状態)を実現できないことにあった。この課題を解決するために、ナノリボンの作製<sup>139</sup>・表面の化学修飾<sup>140</sup>・bilayer グラフェンへの電圧印加<sup>123</sup>など様々な方法がとられてきたが、これら全ての取り組みは、キャリア密度の非常に小さな領域での実験に限定されており、更に単層グラフェン本来の

ギャップレスかつ高移動度という性質を犠牲にすることで OFF 状態を実現していた。

今回 3.2.1 で実現を目指している機能はこれらとは全く異なり、そもそも高移動度でないと実現しえないものである。高移動度を保った抵抗変調素子の実現は、グラフェンの利点を保ったままのデバイス応用が可能になるという点が極めて魅力的である。また興味深い点は、 $n_2$  部分の電子密度を大きくするにつれて抵抗が増大していくという点にもある。たとえばトランジスタが OFF 状態を実現するためには、通常はキャリア密度を減少させることで抵抗増大を実現するが、このデバイスにおいては、キャリア密度を大きくしながらも透過率を顕著に抑制することで OFF 状態を実現している。高キャリア密度領域での動作を可能にするだけでなく、intrinsic には抵抗が小さな系で透過率を抑制させると、ノイズ特性などの向上も期待できる<sup>80</sup>。

### 3.3 抵抗増大の観測

まず本節では、3.2.1 で論じたような、npn 接合内のコリメーションと全反射を利用することで抵抗増大を実現した結果について報告する。

#### 3.3.1 素子構造・基礎伝導特性

3.2.1 の機能を実現するために、2.3.2 スタンプング法を用いて作成した h-BN/グラフェン/h-BN 構造に対して更に局所的な top gate を蒸着した Fig. 3-6 のような構造を作製した。左から光学顕微鏡像・AFM 像・模式図である。top gate の二つ目の界面が一つ目に界面に対して角度  $\alpha = 20$  度の zigzag 構造を取るように設計されている(実際はリソグラフィの不確かさから場所によって  $\pm 5$  度程度のばらつきがある)。模式図の点線部がこのデバイスの単位構造であり、Fig. 3-3 の機能が実現しうる構造となっている。このように単位構造を組み合わせた zigzag 構造にした理由は、top gate 部の長さ( $L = 430$  nm)を可能な限り小さくすることでバリスティック伝導を維持するためである。

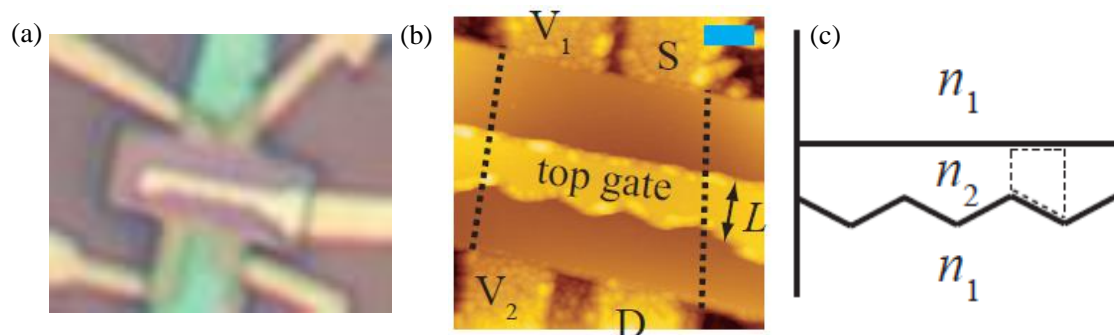


Fig. 3-6 (a) 素子光学顕微鏡像 (b) 素子 AFM 像(水色スケールバー : 500 nm) (c) 素子模式図(点線枠内が単位構造)

Fig. 3-7(a)に  $T = 1.6 \text{ K}$  における四端子抵抗  $R_{4t}$  (電流端子 S,D・電圧端子  $V_1, V_2$ ) の  $(V_{tg}, V_{bg})$  依存性の結果を示す。微細構造を明瞭にするため、Fig. 3-7(b)に  $V_{bg}$  方向の微分データを載せる。この結果から npn(pnp)領域において、 $V_{tg}$  方向、 $V_{bg}$  方向どちらにも極めて明瞭な抵抗値の振動が観測されていることが分かる。

$V_{tg}$  方向の振動は 2.5 で論じた結果と同様に gate 直下における電子波の Fabry-Perot 干渉であるが、 $V_{bg}$  方向の振動も先行研究で既に報告されているように pn 界面とコンタクトの間の反射で生じる gate 外の領域での Fabry-Perot 干渉と考えられる<sup>49</sup>。このように、複数の領域において干渉効果が観測されていることから、極めて高移動度の npn 接合を作製できていることが分かる。

一方注意すべき点は、 $V_{bg}$  方向の振動の干渉模様が完全に  $V_{tg}$  軸に対して平行ではないことである。このことは先行研究<sup>49</sup>でも報告されているように、gate 外の領域が top gate とわずかながらキャパシティブにカップリングしていることを意味している。そのため、キャリア密度を計算する際、

$$n_1 = (C_{bg} V_{bg} + C_{tg}' V_{tg}) / e \quad (3.11)$$

$$n_1 = (C_{bg} V_{bg} + C_{tg} V_{tg}) / e \quad (3.12)$$

のように、(3.11)第二項で示される  $C_{tg}'$  を考える必要があることに注意する。今回、まず Fig. 3-7(c)で示すような量子ホール効果を用いて  $C_{tg} = 6.0 \times 10^{-4} \text{ F/m}^2$  を計算し、これと Fig. 3-7(b)の干渉縞の傾きから  $C_{bg} = 1.2 \times 10^{-4} \text{ F/m}^2$  および  $C_{tg}' = 0.1 \times 10^{-4} \text{ F/m}^2$  を求めた。

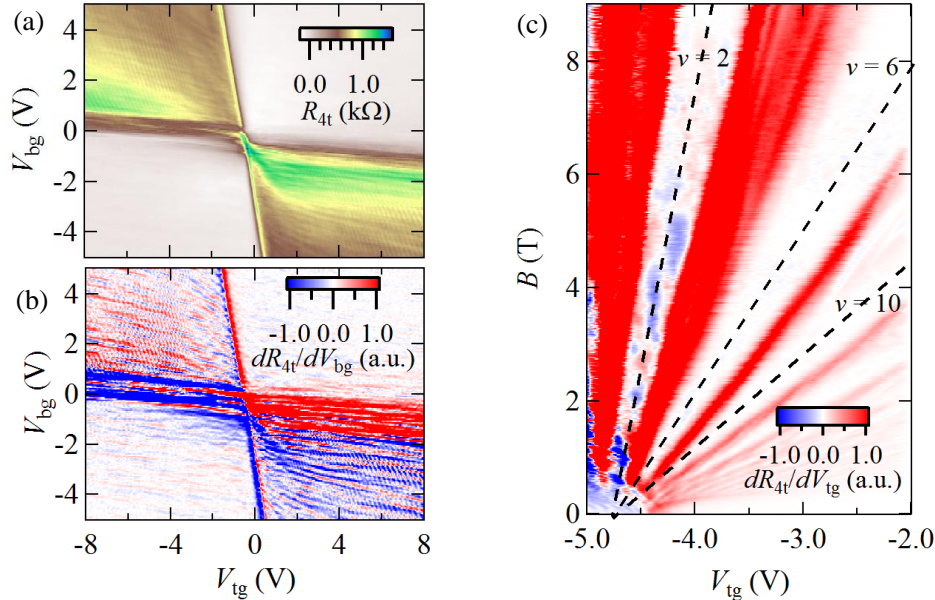


Fig. 3-7 1.6 K における (a)  $R_{4t}$  の  $(V_{tg}, V_{bg})$  依存 (b) (a) の  $V_{bg}$  微分 (c)  $dR_{4t}/dV_{tg}$  の  $V_{bg} = 20 \text{ V}$  における四端子抵抗の  $(V_{tg}, B)$  依存

### 3.3.2 抵抗増大の観測

120 Kにおける四端子抵抗  $R_{4t}$  の測定結果を Fig. 3-8(a),(c)に示す。なお、前項で論じたような量子干渉の効果を除外するために高温で実験を行っている。3.3.4 で後述するようにこの温度においてもバリスティックな効果は最低温とほぼ変わらない程度に観測される。(a)が  $R_{4t}$  の  $(n_1, n_2)$ 依存性をカラープロットしたものである。通常は、Fig. 2-17 の結果でも見られているように、 $n_1 = 0$  および  $n_2 = 0$  の部分でのみキャリア密度が減少することに対応して抵抗が増大する現象が見られるが、本素子においては、 $|n_2| \gg |n_1|$  の領域、特に  $n_1$  と  $n_2$  の符号が異なる領域において抵抗の増大(カラープロットで赤色の領域)が見られている。(c)が  $n_1$  を固定した上で  $n_2$  を変化させた時の  $R_{4t}$  の結果となるが、 $|n_1|$  が十分に大きい領域においては(赤線付近)、 $|n_2|$  を増大させても抵抗の増大が見られないが、 $|n_1|$  が十分に小さい領域においては(紫線付近)、 $|n_2|$  の増大に伴って  $R_{4t}$  の増大が見られることが分かる。

キャリア密度の絶対値が増大すると通常抵抗は減少することから、今回見られている現象は本素子特有の現象であると言え、 $|n_2|/|n_1|$  比が増大することによって、Fig. 3-3 で示されているような電子波のコリメーションと全反射によって接合透過率が抑制されて、抵抗増大が見られていると定性的に考えることができる。

実際、Fig. 3-8(b),(d)に(a),(c)に対応する計算結果を示すが(Fig. 3-4(c)と同じデータ)、定性的な良い一致が見られることが分かる。特に、npn 接合での抵抗値の増大が nn'n 接合での抵抗値の増大に比べて大きく観測されている点が良く再現されており、Fig. 3-4(a),(b)を用いながら論じたように、pn 接合が存在するほうが Klein collimation の効果が効き、この影響で抵抗の増大がより大きく見られていると考えることができる。より詳細な、実験結果と計算結果の抵抗増大値の比較・考察は、後程 3.3.5, 3.3.6 で行う。

(c)において、ゼロキャリア密度に近い  $n_2 > 0$  の領域で負の抵抗が見られているのは、Fig. 1-4 で紹介したような負の曲げ抵抗が観測されているためと考えられる。この影響により(c)と(d)の間では特に  $n_2 > 0$  の領域で抵抗のオフセットに違いが見られている。

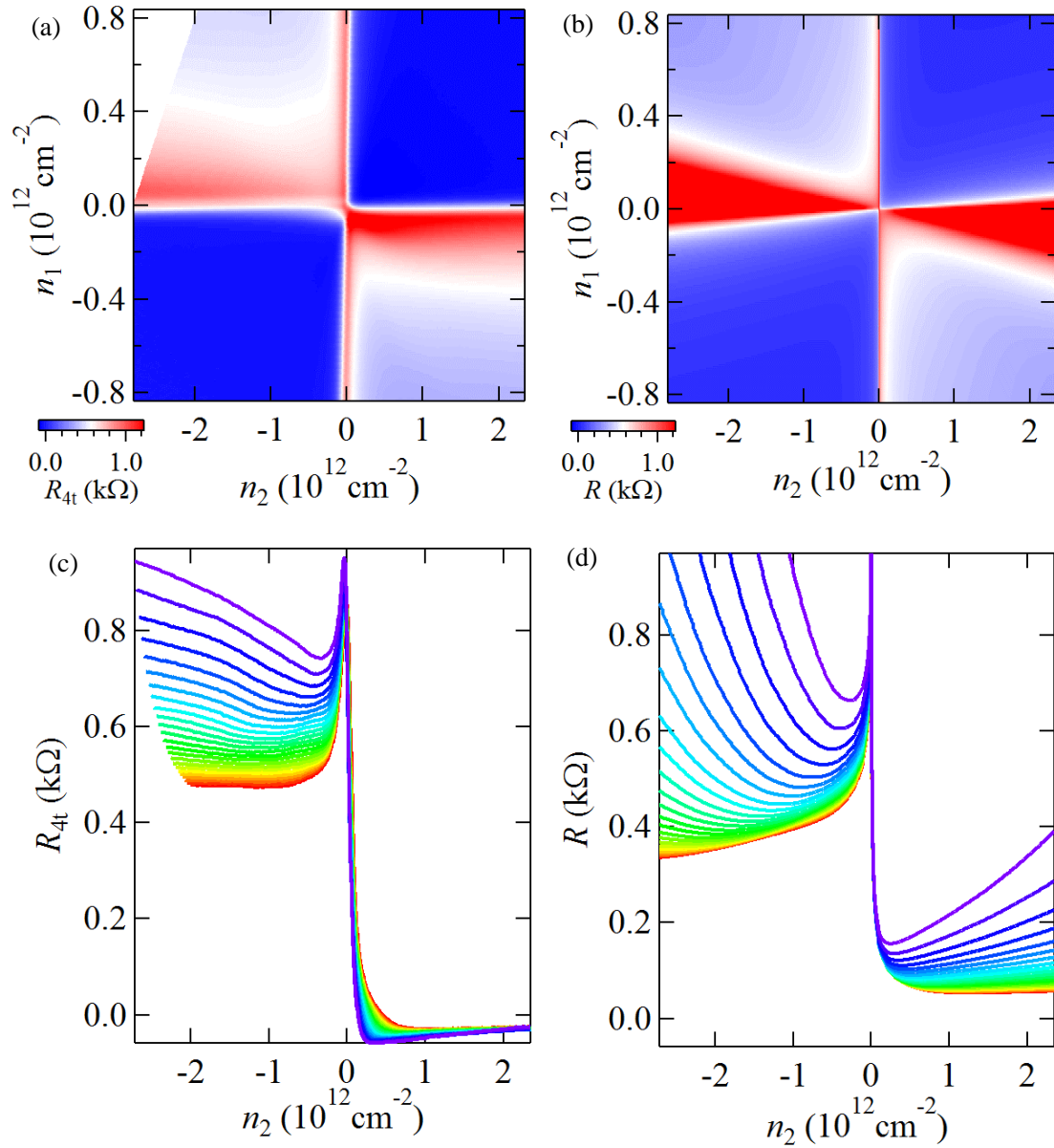


Fig. 3-8  $T = 120 \text{ K}$  における (a)  $R_{4t}$  の ( $V_{tg}$ ,  $V_{bg}$ ) 依存の実験結果 (b) 計算結果 Fig. 3-4 の再掲  
(c)(d) (a),(b) の  $n_1 = 0.9, 1.2, \dots, 4.2 \times 10^{11} \text{ cm}^{-2}$  における  $n_2$  方向の line cut (top to bottom)

また定量的な評価として、抵抗が増大し始める  $n_2$  の場所、つまり Fig. 3-8(c),(d) の dip の場所に注目する。Fig. 3-9 に実験・理論両方の結果に関して dip の場所を ( $n_1$ ,  $n_2$ ) 平面内でプロットした結果を示す。黒丸が実験結果、赤線が計算結果の dip の場所を示しており、二つの場所は良い一致を示していることが分かる。この実験と計算の一致も、理論的に想定されているようなバリスティック伝導の制御が実験的に実現されていることの証拠となる。

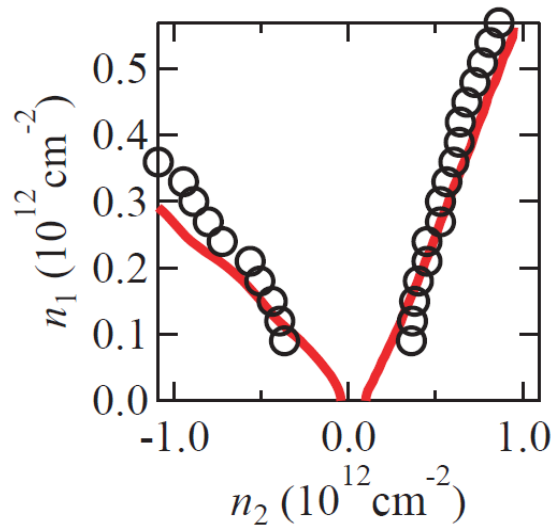


Fig. 3-9 Fig. 3-8(c)(d)から計算される  $R$ - $n_2$  カーブの dip の位置の  $(n_1, n_2)$  依存性(黒丸：実験、赤線：計算)

### 3.3.3 再現性確認と参照用試料との比較

前項で観測された抵抗値の増大が、作製した zigzag 構造に確かに起因していることを確認するために、再現性の確認と参照用試料との比較を行った結果が Fig. 3-10 である。(a)が Fig. 3-8 の結果を再掲したものであり、(b)が同様に角度 20 度の zigzag 構造を有する素子を作製して得た結果である。一方(c)は、参照用として(b)のデバイスと同一グラフェンフレークを利用して同一基板内に作製し同一のタイミングで測定した二つの界面が平行な接合を有する素子における結果である。

(b),(c)に関しては h-BN ゲート絶縁層の安定性が(a)のデバイスよりも低かったため、 $V_{\text{tg}}$  を十分に印加することができず、 $n_2$  の掃引範囲が狭くなっているが、この範囲に関して言えば、(a),(b)はどちらもほぼ同じ傾きで  $R_{\text{ti}}$  が上がっており、(a)で観測された結果の再現性を得ることができたと言える。また(c)ではこの抵抗増大は観測されておらず、逆にキャリア密度の増加とともに抵抗は減少している。特に(b)と比べると同じ条件下でゲート構造だけを変化させた結果であることから、確かにこの(b)で見られた抵抗増大は zigzag 構造に起因したものであると結論付けることができる。



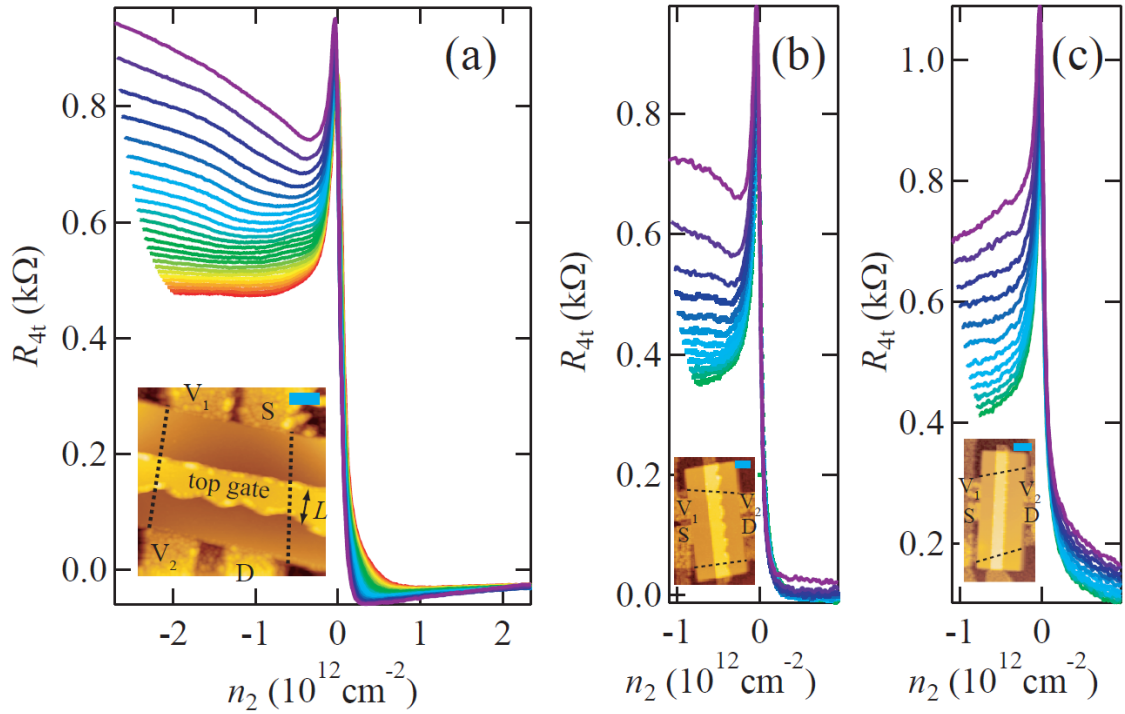


Fig. 3-10 (a) Fig. 3-8(c)再掲 (b) 再現性確認用試料 および (c) 参照用試料 における  $n_1 = 0.9, 1.2, \dots, 4.2 \times 10^{11} \text{ cm}^{-2}$  での  $R_{4t}$  の  $n_2$  依存性(top to bottom) Inset : それぞれの試料の AFM 像

### 3.3.4 温度依存性

今回の抵抗増大の温度依存性を確認するために、 $V_{bg} = 1.5 \text{ V}$  で固定して  $V_g$  を変化したデータの温度依存性が Fig. 3-11(a)である。抵抗増大自体の温度依存性を明らかにするために、 $\Delta R = R_{4t}(V_{tg} = -8 \text{ V}) - R_{4t}(V_{tg} = -4 \text{ V})$  を温度の関数としてプロットしたものが Fig. 3-11(b)である。6 K から温度を上げていくと、150 K 付近まではほとんど同程度の  $\Delta R$  を示しており、そこから温度上昇とともに  $\Delta R$  が小さくなっていく。最終的には 280 K 付近で抵抗の増大が見えなくなることが分かる。

この結果に対して平均自由行程とサンプルサイズの関係から説明を試みる。平均自由行程の見積もりには(1.1)(1.2)式から分かるように移動度の算出が必要であるが、本デバイスの電極配置は移動度の見積もりには不適切である。そこで、本デバイスと同様の方法で作製された Wang らのデバイスの移動度<sup>102</sup>を用いることで平均自由行程を算出した。平均自由行程  $L_{mfp}$  と top gate の長さ  $L$  の比を温度の関数としてプロットしたのが Fig. 3-11(c)である。 $\Delta R$  が最低温とほとんど同じ  $T = 150 \text{ K}$  においては  $L_{mfp}/L$  が 6 程度であることが分かり、十分に平均自由行程が top gate のサイズよりも大きいことから、これ以下の低温になり平均自由行程が伸びても抵抗増大に寄与しないと考えることができる。一方で  $\Delta R$  がほぼ 0 になる 280 K においては  $L_{mfp}/L$  の値が 2 に近づいている。本デバイスの機能が実現するには、バ



リスティックなキャリアが界面での後方散乱をうけてソース側に戻ってくる必要があるため、 $L_{\text{mfp}}$  が最低でも  $2L$  より大きくならないとデバイスが機能しないと考えられるが、実際にこの温度領域で抵抗増大が見られなくなるという実験結果と整合している。

1.3.2 において、グラフェンは高温においてもバリスティック伝導を示し、バリスティックデバイスとして機能するということが、従来の半導体二次元電子系のバリスティックデバイスとの大きな違いであることは述べたが、今回の実験結果は  $280 \text{ K}$  という室温領域まで抵抗の増大が観測されていることから、この特性を生かした素子となっていることが分かる。室温において、より顕著な抵抗増大を確認するためには  $L$  の大きさを小さくすることで  $L_{\text{mfp}}/L$  を大きくすればよいだろう。例えば  $L$  の値を  $1/3$  小さく(それでも  $L > 100 \text{ nm}$  であり、フェルミ波数より長いことで回折効果の影響を無視することができ<sup>80</sup>、技術的にも十分に微細加工で作製可能な範囲である)するだけで、室温においても  $L_{\text{mfp}}/L$  は  $6$  程度となることから、Fig. 3-11(b)における  $\Delta R$  飽和領域を実現することができ、十分な抵抗増大が観測可能になると言える。

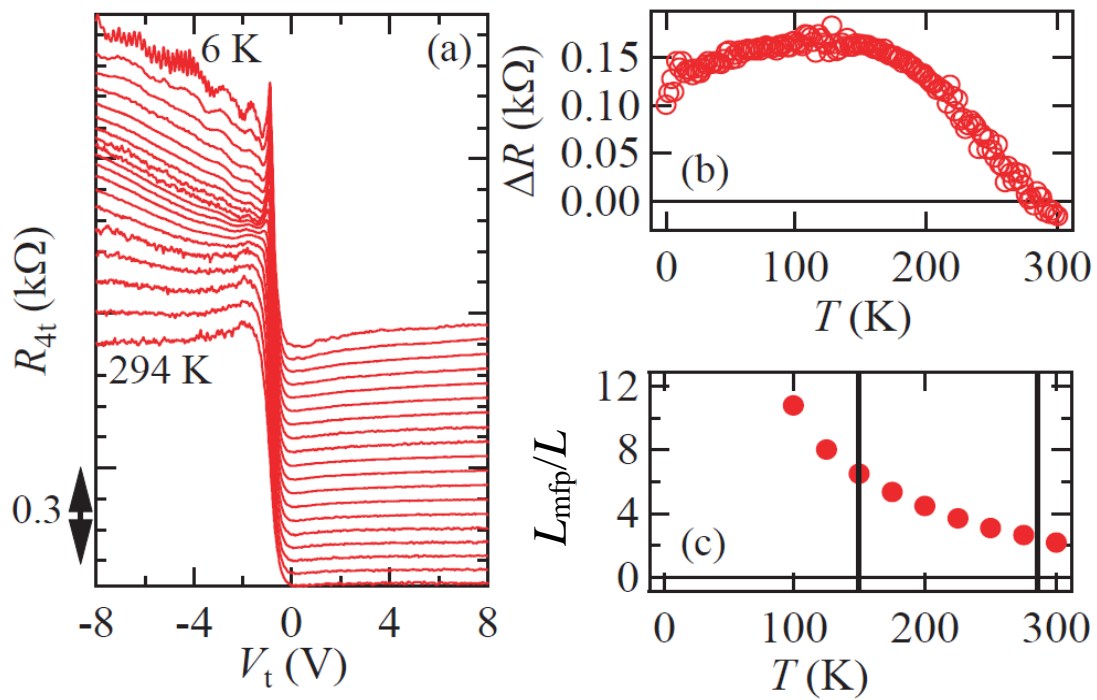


Fig. 3-11 (a)  $1.6 \sim 300 \text{ K}$  における  $V_{\text{bg}} = 1.5 \text{ V}$  での  $R_{4t}$  の  $V_{\text{tg}}$  依存性 (b)  $\Delta R = R_{4t}(V_{\text{tg}} = -8 \text{ V}) - R_{4t}(V_{\text{tg}} = -4 \text{ V})$  の温度依存性 (c)  $L_{\text{mfp}}/L$  の温度依存性(縦黒線は(b)において  $\Delta R$  が  $\sim 0.15 \text{ k}\Omega$  を取る中で最大の温度  $150 \text{ K}$  と  $\Delta R$  が  $\sim 0 \text{ k}\Omega$  となる温度  $280 \text{ K}$  を示している)

### 3.3.5 傾斜角依存性と端散乱の寄与

今回見られた抵抗増大は抵抗の増大幅が $\sim 0.15 \text{ k}\Omega$ , ON/OFF 比を計算すると 1.3 というこ  
とで、例えばトランジスタ応用などを見据えると抵抗増大は非常に小さな程度に留まっ  
ている。より顕著な抵抗増大を実現するためには、今後いくつかの点を改善していく必要があ  
る。一つ大きく変更できる点として、傾斜角 $\alpha$ を変更することが挙げられる。実際、Quentin  
らは、 $\alpha$ を変更しながら透過率を計算し、45 度が最適な角度であるということを見出した  
[Fig. 3-12(a)]<sup>80</sup>。この結果を参考にして $\alpha \sim 45$  度の zigzag 型の接合をここまで示してきたデ  
バイスと同じ方法で作製し、Fig. 3-10 と同様の実験を行った結果を Fig. 3-12(b)に示す。期待  
された大きな抵抗増大は予想と反して観測することができず、20 度の場合に見られていた  
小さな抵抗増大も観測されていないことが分かる。

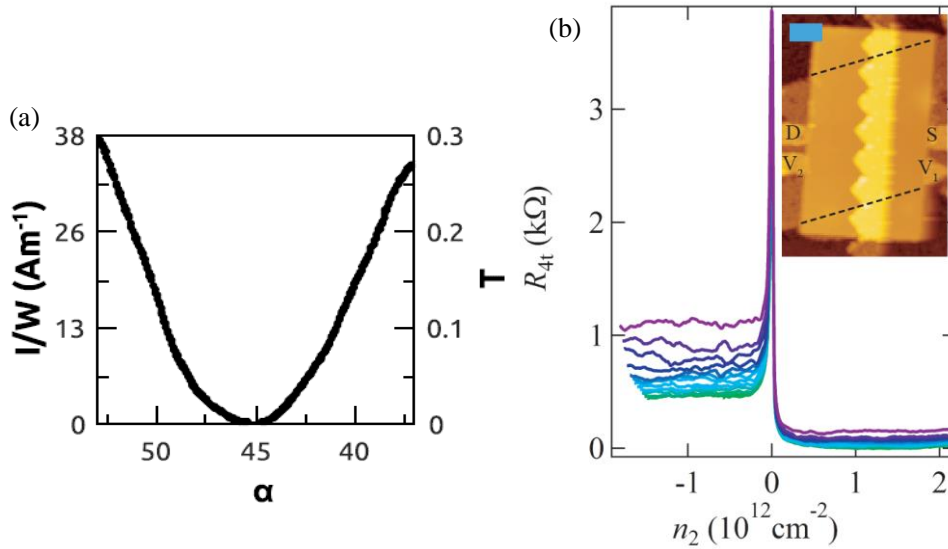


Fig. 3-12 (a) Quentin らが計算した接合を流れる電流の傾斜角依存性<sup>80</sup> (b)  $\alpha \sim 45$  度で作製した試料での  $n_1 = 0.9, 1.2, \dots, 4.5 \times 10^{11} \text{ cm}^{-2}$  における  $R_{\text{dif}}$  の  $n_2$  依存性(top to bottom) Inset : 試料 AFM 像

この角度依存性の理論と実験との相違は現在も完全な理解には至っていないが、試料端での散乱の効果が影響している可能性がある。Quentin らの計算結果では試料端での散乱は考慮されていないが、Sajjad らは、少し試料の構造が異なる計算結果になるが、試料端散乱も考慮した以下のような計算結果を報告している<sup>77</sup>。まず彼らは、Fig. 3-13(a)において試料端散乱を考慮しない場合の角度 0 のデバイス(紫)と角度 45 度のデバイス(黒)の結果を比較している。45 度のデバイスの方が抵抗が増大していることが分かり、Fig. 3-12(a)の Quentin の結果と一致している。一方で試料端散乱を考慮すると角度 0 のデバイス(橙)の方が角度 45 度のデバイス(赤)よりも抵抗が高いことが分かる。これは Fig. 3-13(b)に示されているように、一旦傾斜角を持った界面に入射し反射された電子が、試料端に何度か反射されることによ

って、今度は透過しやすい入射角で界面に入射し、最終的に透過できるようになるために、45 度のデバイスの方が最終的には抵抗が小さくなると説明されている。実際、彼らは Fig. 3-13(c)のように試料端散乱も考慮した上で透過率の傾斜角依存性を計算しており、45 度は抵抗増大に適した角度ではないと結論付けている。

この結果は、試料端での散乱を考慮すると、考慮しないときに比べて結果が大きく異なりうることを示している。この相違が、Fig. 3-8 において実験結果と計算結果で定量的に抵抗増大の度合いが違う理由や、Fig. 3-12 の 45 度において抵抗増大が見られない理由に繋がっていると考えることもでき、より一層の実験・計算からのアプローチが今後必要である。

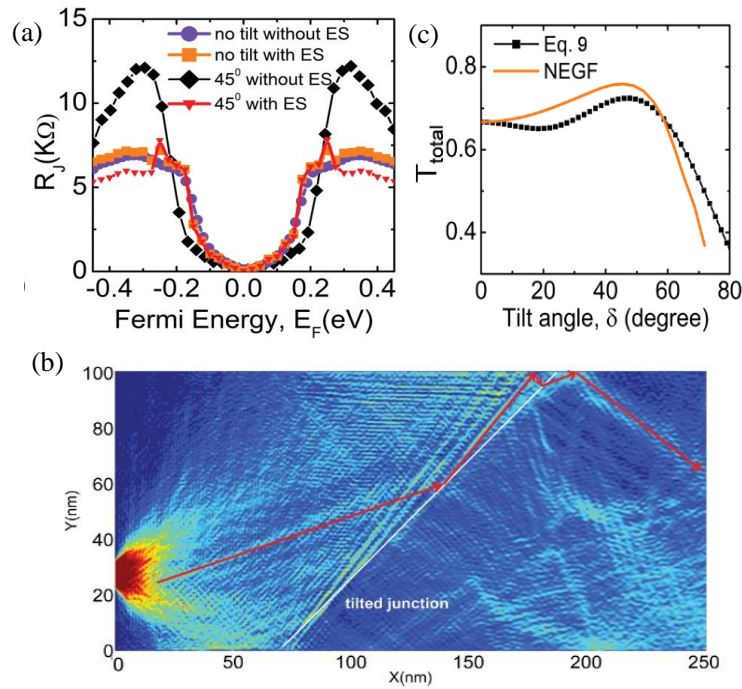


Fig. 3-13 (a) Sajjad らが計算した接合抵抗(紫・黒：試料端散乱を考慮しなかった場合の傾斜なしと傾斜 45 度、橙・赤：試料端散乱を考慮した場合の傾斜なしと傾斜 45 度) (b) 試料端散乱によって接合透過が促進される様子を示した計算結果 (c) 試料端散乱を考慮することで Sajjad らが計算した接合透過率の傾斜角依存性<sup>77</sup>

### 3.3.6 その他の改善点

デバイス特性の向上に向けて、試料端散乱の考慮が必要であるという点については前項で述べた通りだが、その他改善すべき点について列挙しておく。

まず top gate 構造のリソグラフィー精度を向上させる必要があると考えられる。3.3.1 で示したように  $\alpha = 20$  度で作製したにも関わらず、AFM 像から計算される  $\alpha$  の値は 15-25 度とばらつきを持ってしまっている。このような角度の不均一性は、光学デバイスにおいても問題とされるような、スプリアス反射や光学収差の原因となりえ、デバイス特性の理論値と

実験値との乖離を生むだろう。

また、 $d$  の大小で特徴づけられる pn 界面におけるキャリア密度変化の傾きは、デバイス特性に大きく影響する。なぜなら、Fig. 3-2 で議論したように、 $d$  の値に応じて pn 界面における電子の透過確率の入射角度依存性が顕著に変化するからである。そのため、例えばゲインの高いようなデバイスを作製したい時は、ON 電流を高め設定する必要がある、その場合はキャリア密度分布の傾きを急峻にする必要がある。今回のデバイスにおいては、ゲート絶縁膜として利用している h-BN の厚さを調整することでこの密度分布の傾きを変化させることができ、例えば h-BN の厚さを薄くすれば ON 電流を大きくできると言える。逆に、OFF 電流を可能な限り抑制したい場合は、分布の傾きを緩やかにする必要があるために、h-BN の厚さを厚くすればよいと言える。

### 3.3.7 抵抗増大の観測まとめ

Zigzag 型のグラフェン npn 接合を作製し、p 型部のキャリア密度を増大させることで接合内での電子波のコリメーションと全反射の効果を増大させ、透過率の抑制を実現した。3.2.3 でも議論したように、この結果は、Dirac fermion optics の実現可能性を示したという点で重要であると同時に、抵抗増大が難しい系として知られるグラフェンにおいて、高移動度高キャリア密度を保ったまま抵抗増大に成功したことも意味する。室温動作という特徴と合わせて、グラフェンバリスティック伝導のデバイス応用としての可能性を切り拓く結果であるとも言える。

## 3.4 磁気抵抗符号の変化

ここまで報告した抵抗増大は全てゼロ磁場下で観測された現象であるが、磁場を加えた際の磁気抵抗の符号にも、3.2.2 で予想したような系統的な変化が、ゲートの幾何学構造に依存して見られると予測できる。本節ではこの実験結果について報告する。

### 3.4.1 素子構造・基礎伝導特性

Fig. 3-5 で予測したような磁気抵抗の系統的な変化を観測するために、3.3.1 と同様の方法で flat な接合と zigzag な接合を同一グラフェンフレーク内に作製し、同一タイミングで測定を行った。二つ目の界面の一つ目の界面に対する角度  $\alpha$  は  $\sim 45$  度に設計している。3.3.1 のような  $\alpha = 20$  度の素子においても定性的には以下で示すような結果が確認されているが、今回の磁気抵抗の符号変化という現象に関しては、角度が急な接合の方が flat 接合との相違がより明瞭に観測されているために、本節で紹介する結果については  $\alpha \sim 45$  度の素子を利用している。以降は左の flat 型の接合を素子 F、zigzag 型の接合を素子 Z と呼ぶ。

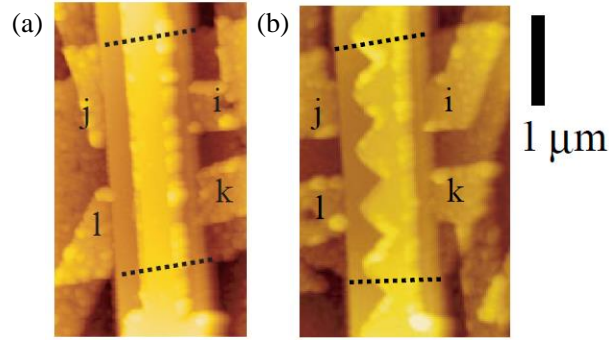


Fig. 3-14 素子 F(a)および素子 Z(b)の AFM 像(黒点線がグラフェンチャンネルの端)

まず基本的なこのデバイスの特性を知るために、四端子抵抗(電流端子  $k, l$ ・電圧端子  $i, j$ )の  $T = 1.6 \text{ K}$  における  $V_{\text{tg}}$ ,  $V_{\text{bg}}$  依存性のカラープロットを Fig. 3-15(a),(b)に示す。top gate 直下のキャリア密度がゼロとなる領域に対応する  $V_{\text{tg}}$ ,  $V_{\text{bg}}$  平面上で傾きが一定となる抵抗が高い領域が、黒点線で示されるように観測されている。一方でここまで紹介してきた他のデバイスと異なり、 $V_{\text{bg}} = 0 \text{ V}$ 、つまり top gate 外の部分の抵抗が高い領域は明瞭には観測されていない。この理由は Fig. 3-14 の AFM 像から分かるように、top gate 外の領域が非常に小さいことが原因であると考えられる。また、Fig. 3-7 の時と同様に  $V_{\text{tg}}$ ,  $V_{\text{bg}}$  方向どちらにも明瞭な抵抗値の振動構造が観測されており、干渉効果が観測できるような高品質な接合が作製できていることが分かる。特に、素子 F の二端子抵抗(端子  $i, j$  間)においては、Fig. 3-15(c)にも示しているように、磁場を加えたときの Fabry-Perot 干渉の位相シフトも観測されており、2.5.5 で紹介したような Klein tunneling の影響が見られていることも分かる。

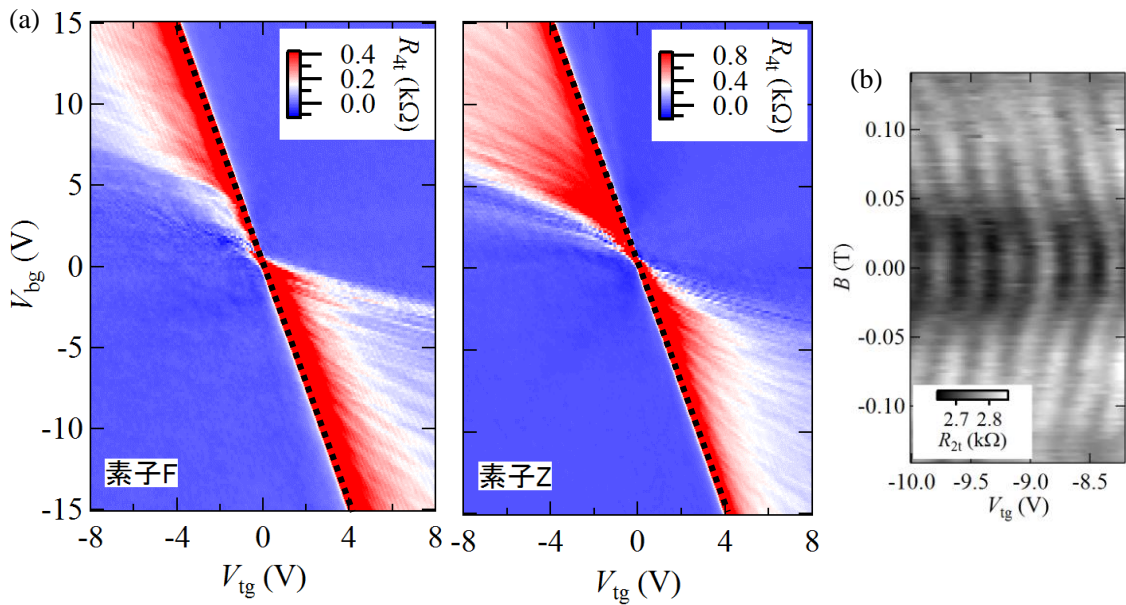


Fig. 3-15  $T = 1.6 \text{ K}$  における(a)  $R_{4t}$  の( $V_{\text{tg}}$ ,  $V_{\text{bg}}$ )依存 (b) 素子 F の  $V_{\text{bg}} = 15 \text{ V}$  における  $R_{2t}$  の( $V_{\text{tg}}$ ,  $B$ )平面へのカラープロット

### 3.4.2 磁気抵抗符号の変化

Fig. 3-16 は  $V_{bg} = 15 \text{ V}$ ,  $T = 1.6 \text{ K}$  に固定して  $V_{tg} = -9.87, -9.61, \dots, -5.45 \text{ V}$  において二端子抵抗の磁気抵抗を(a)素子 F および(b)素子 Z に関して測定した結果である。なお、比較を容易にするために  $V_{tg}$  の異なるデータは  $y$  軸方向に一定量だけシフトさせて表示している。Onsager の定理より、二端子抵抗(端子  $i, j$  間)は正磁場と負磁場において同じ値を取ることから<sup>141</sup>、正磁場領域のみ広範囲領域で測定を行っている。

まず定性的には、(a)の結果において、ゼロ磁場付近では正の磁気抵抗を示しており、 $0.1 \text{ T}$  付近を超えてからプラトー構造を取ったのち、 $0.2 \text{ T}$  付近を超えてからまた抵抗値の増大が観測されている。一方(b)の結果においてはゼロ磁場付近で負の磁気抵抗を示しており、 $0.1 \text{ T}$  付近で極小を取ったのち一度抵抗は増大し、 $0.2 \text{ T}$  付近でプラトー構造を取り、再度  $0.3 \text{ T}$  付近で抵抗の増大が始まっている。なお、(a)において  $0.01 \text{ T}$  付近に抵抗値の小さなピーク構造が観測されているが、これは半値幅のオーダーと先行研究との比較から<sup>142-144</sup>、1.1.3 でも紹介した弱局在効果がグラフェンにおいて観測されていると考えられる。

これらの定性的な振る舞い、特にゼロ磁場付近における磁気抵抗符号の違いは、Fig. 3-5 で予想したものと一致している。具体的には、flat な接合においては、Fig. 3-5 において(a)から(b)では抵抗が上がり(c)からまた抵抗が上がると予想できるため Fig. 3-16(c)で示すような磁気抵抗が、zigzag な接合においては、Fig. 3-5 において(d)から(e)で抵抗が下がり(f)からまた抵抗が上がると予想できるため Fig. 3-16(d)で示すような磁気抵抗が観測されると予測できる。確かに Fig. 3-16 (a),(b)で実験的に観測されている結果は、この定性的な予測を再現している。磁場下でのバリスティックキャリアの動きがゲート構造に依存して変化し、それが電気伝導に影響を与えていることが確かに観測されていると言える。



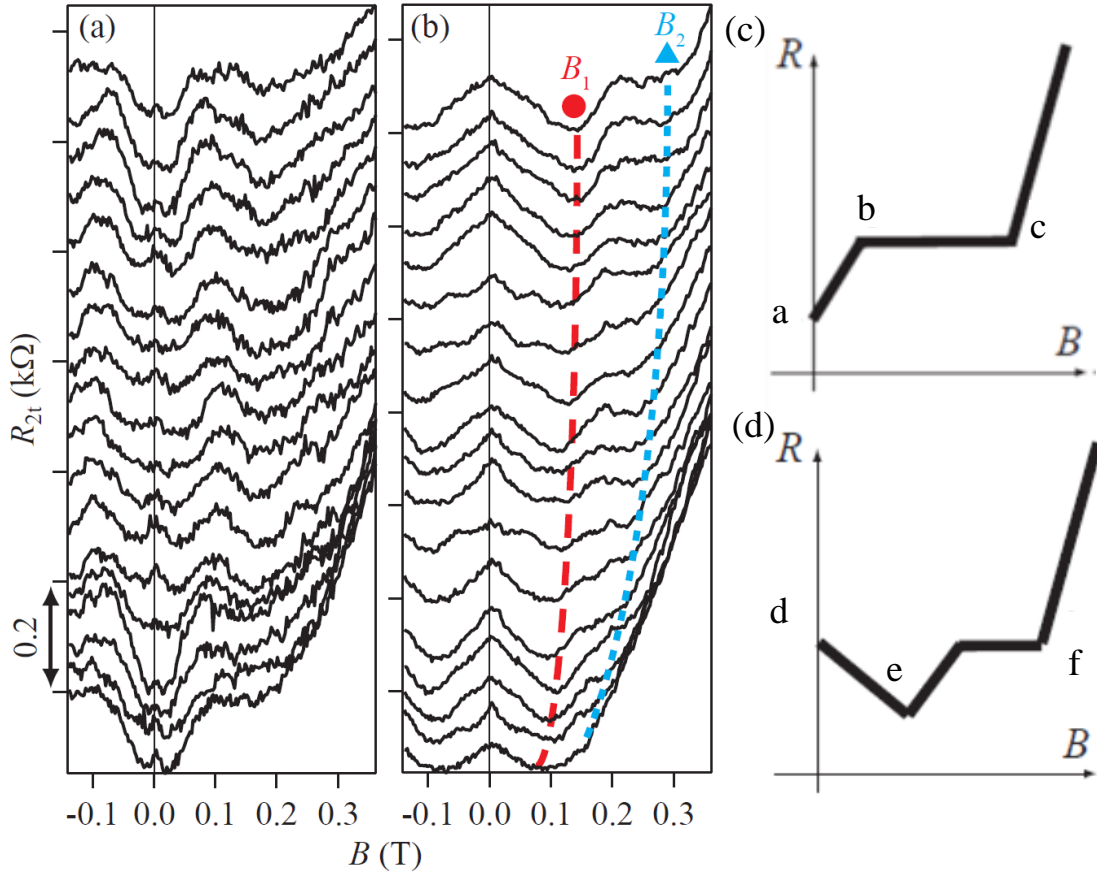


Fig. 3-16 (a),(b) 素子 F(a)および素子 Z(b)の  $T = 1.6$  K,  $V_{bg} = 15$  V における  $R_{2t}$  の磁場依存性 (上から  $V_{tg} = -9.87, -9.61, \dots, -5.45$  V におけるデータを  $0.08$  kΩ ずつオフセットを付けてプロット,  $V_{tg} = -5.45$  V におけるプロットの  $B = 0$  T での  $R_{2t}$  がそれぞれ  $2.88$ (a),  $2.48$ (b) kΩ) (c),(d) 素子 F(c)および素子 Z(d)で観測されている磁気抵抗の定性的傾向

ここで(a)においてゼロ磁場付近の磁気抵抗の増加分が  $V_{tg}$  の関数として増えたり減ったりしていることに気付ける。この結果は、前項において紹介した Fabry-Perot 干渉と Klein tunneling による位相シフトの影響によるものである。具体的には、ゼロ磁場において Fabry-Perot 干渉の抵抗極小をとる  $V_{tg}$  においては、Klein tunneling によって磁場を加えると抵抗極大をとるようになる。この場合極小から極大への変化(Fig. 3-17 赤矢印)となるため、抵抗の増大は大きくなる。一方で逆のケースでは、極大から極小に磁場を加えると遷移するために (Fig. 3-17 青矢印)、磁気抵抗増分は小さくなる。これら二つの状況が  $V_{tg}$  に対して周期的に起こることが、抵抗値の増分が  $V_{tg}$  に対して単調には変化していない理由と考察することができる。



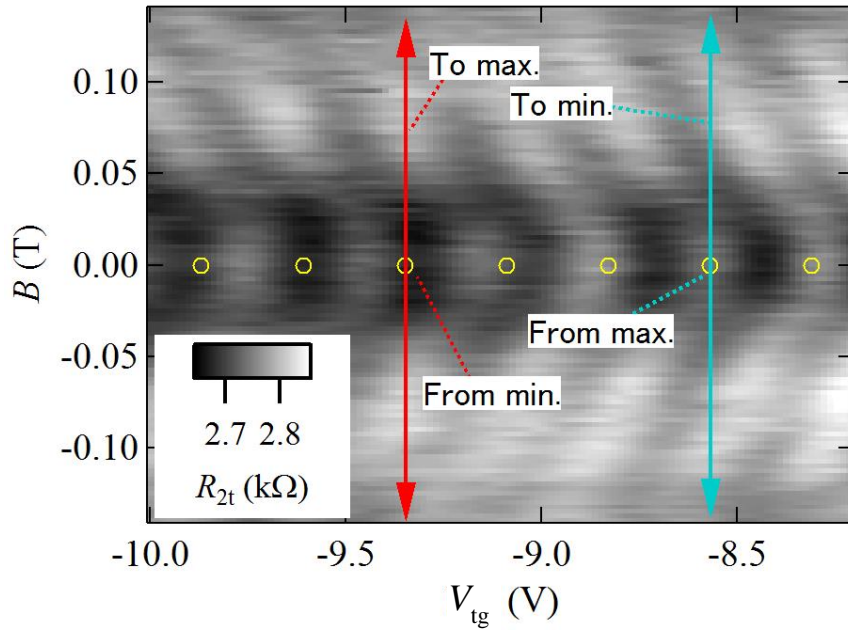


Fig. 3-17 Fig. 3-15(b)再掲(黄丸は Fig. 3-16 で用いた  $V_{tg}$ )

更に定量的にこのデータを解析するために、Fig. 3-16(b)において観測されている抵抗極小時の磁場( $B = B_1$ )と 0.2 ~ 0.3 T 付近で観測されているプラトー構造から抵抗増大への遷移磁場( $B = B_2$ )に注目する。この二つの磁場は  $V_{tg}$  が小さくなるにつれて、より高磁場側に移動する様子が Fig. 3-16(b)赤破線・青点線で示すように観測されている。

この結果はまず定性的に以下のように説明することができる。ここまでの議論から、 $B = B_1$  においては Fig. 3-5(e)の状況が、 $B = B_2$  においては Fig. 3-5(f)の状況が実現していると考えられる。これらの状況が実現するためには、サイクロトロン半径  $R_c$  が一定になる必要があるが、 $R_c$  の立式が(2.9)のように書かれることから、 $V_{tg}$  を変化させた時  $R_c$  が一定になるには  $B$  も変化する必要があるために、 $B_1, B_2$  の値が変化していると考えることができる。

より定量的に調べるために、 $B_1, B_2$  を( $V_{tg}, B$ )平面上にプロットしたものが Fig. 3-18(a)である。実際の AFM 像を利用して、 $B_1, B_2$  において  $R_c$  がどのような値になればよいかを計算すると Fig. 3-18(b),(c)のようになり、 $B_1$  においては 630-1050 nm の間、 $B_2$  においては 420 nm となる。式(2.9)を利用して、このような  $R_c$  が実現する領域が( $V_{tg}, B$ )平面内においてどこに存在するかをプロットすると  $B_1$  が(a)の斜線領域、 $B_2$  が(a)の点線上であることが分かる。これらの結果は  $B_1$  や  $B_2$  の実験結果とよく一致しており、定量的にもバリスティックキャリアの動きが 3.2.2 で予想したようになっていることを示している。

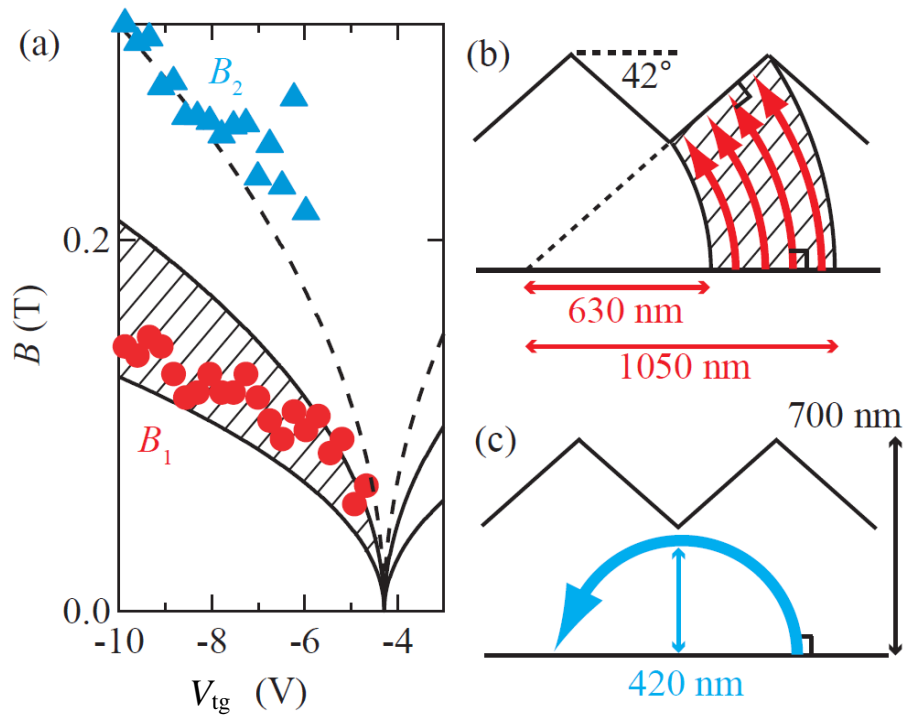


Fig. 3-18 (a) Fig. 3-16(b)における磁気抵抗の極小磁場( $B_1$ )と高磁場領域で抵抗増大が見え始める磁場( $B_2$ )の( $V_{tg}$ ,  $B$ )平面へのカラープロット (b),(c)  $B = B_1, B_2$ において実現していると考えられるバリスティックキャリアの軌道((a)にこれらが実現すべき領域も斜線および点線領域で示す)

### 3.4.3 再現性の確認

この磁気抵抗符号の変化が確かに他のサンプルでも再現性良く実現されることを確認するために Fig. 3-19(a),(b)のような $\alpha \sim 45$ 度のデバイスを再度同様の方法で作製し、同様の測定を行った。 $T = 1.6$  Kにおける結果を Fig. 3-19(c),(d)に示す。Fig. 3-16 同様に、ゼロ磁場付近の磁気抵抗符号は、flat な接合においては正に、zigzag な接合においては負になっていることが分かり、確かに、接合の構造を変化させることによってバリスティックキャリアの軌道を制御して磁気抵抗を変化させることが、再現性良く実現できることが分かった。

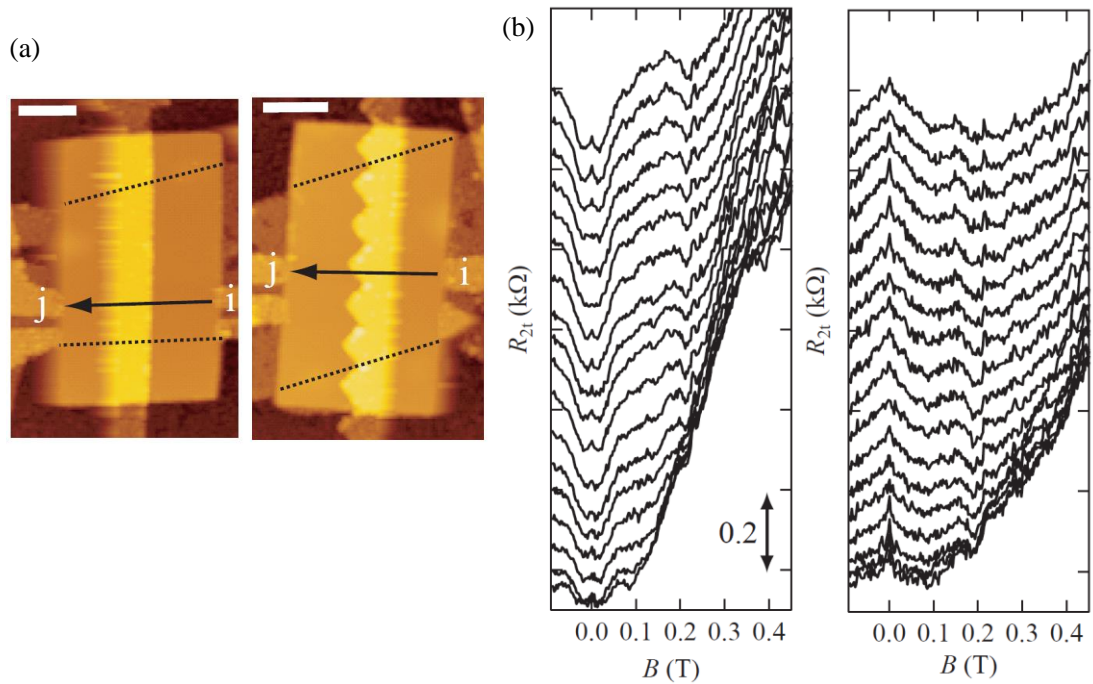


Fig. 3-19 再現性確認用試料の(a) AFM 像(白色スケールバー : 1  $\mu\text{m}$ ) および (b)  $T = 1.6 \text{ K}$ ,  $V_{\text{bg}} = 15 \text{ V}$  における  $R_{2i}$  の磁場依存性(上から  $V_{\text{tg}} = -8.0, -7.8, \dots, -4.6 \text{ V}$  におけるデータをオフセットを付けてプロット)

#### 3.4.4 Klein collimation の寄与 $\sim \text{nnp vs nn'n} \sim$

ここまで全て npn 接合における結果を述べてきたが、nn'n 接合との比較を行った結果を下図に示す。磁気抵抗の符号を明確にするために、 $T = 1.6 \text{ K}$  における二端子抵抗を磁場方向に微分した  $dR_{2i}/dB$  を  $(V_{\text{tg}}, B)$  平面に二次元プロットしている。(a)が素子Fの結果、(b)が素子Zの結果となっているが、nnp 領域においては、ここまで説明してきた通り、磁気抵抗の符号が変化していることからゼロ磁場付近で明らかにカラープロットの色が異なっている。一方で、nn'n 領域においては、ほとんど色に変化がなく、 $dR_{2i}/dB$  の値がゼロに近いことが分かる。

ここで、3.2.2 のモデルにおいては、Klein tunneling を起こした電子の動きについてのみ考え、他の入射角で入射した電子の寄与は無視していたことに注目する。この仮定は pn 接合においては確からしいと言える。なぜなら、Fig. 3-2(d)から分かるように pn 接合においては Klein collimation によって透過率の入射角依存性が急峻になることから、垂直入射の成分のみ(つまり Klein tunneling のみ)考慮することが良い近似となるからだ。一方で nn'接合においては、Fig. 3-2(b)から分かるように、全反射臨界角より小さな入射角であれば、ほとんど透過率は 1 となっていることから、垂直入射の成分以外も伝導に大きく関与するようになる。このような状況では 3.2.2 のような単純なモデルは適用することができず、磁気抵抗符

号にゲート構造に依存した顕著な変化は見られなくなると予測することができる。

この npn 接合と nn'n 接合の比較は、今回観測された磁気抵抗符号の変化が pn 界面における Klein collimation の効果が表れたものであることを示している。更に言えば、npn 接合の方が、Klein collimation の存在によって接合内の電子が垂直入射・出射に制限されるようになり、電子軌道の理解や制御が容易になる、と結論付けることもできる。

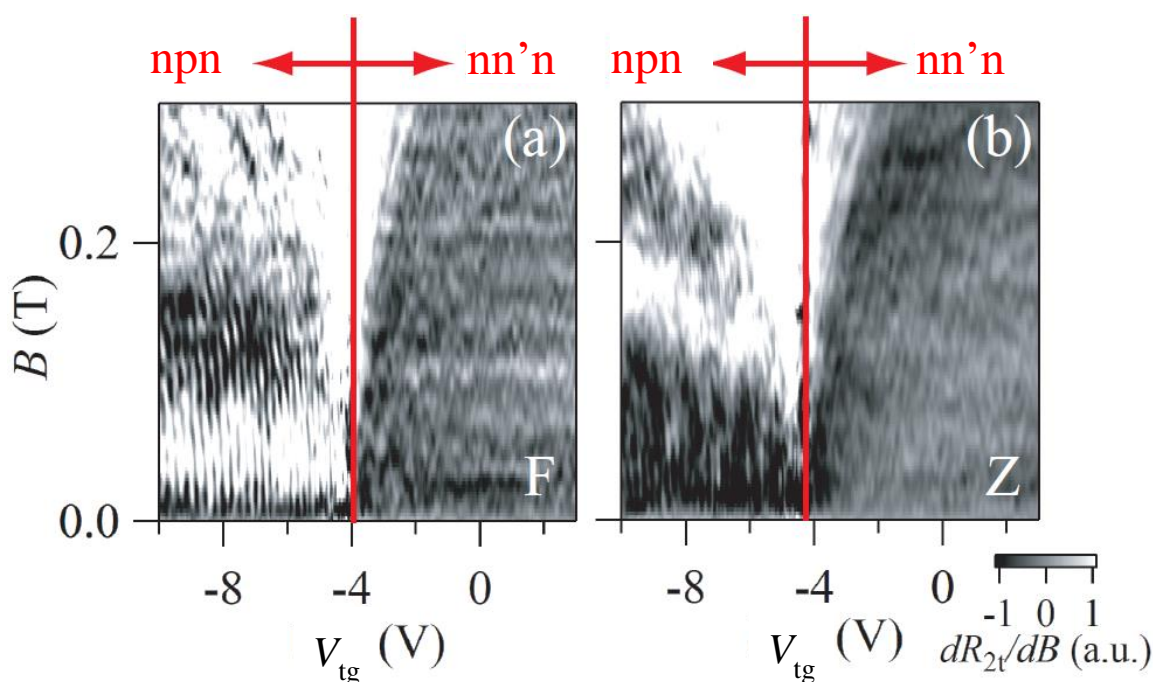


Fig. 3-20 素子 F(a)および素子 Z(b)の 1.6 K における  $R_{2l}$  磁場方向微分の  $(V_{tg}, B)$  平面へのカラープロット

### 3.4.5 Snake state の形成

最後に、ここまで扱ってきた磁場領域よりも更に高磁場領域 ( $\sim 0.5$  T) における結果について報告する。3.2.2 で論じたように磁場が大きくなりサイクロトロン半径が top gate の幅よりも小さくなると、一つ目の界面を通過したキャリアは二つ目の界面に到達できなくなり、界面をスキッピング運動するようになる。特にこの界面が pn 界面であり、p 型領域でのサイクロトロン運動と n 型領域でのサイクロトロン運動の向きが逆であることから、キャリアは逆回転のサイクロトロン運動を組み合わせながら、Fig. 3-21(a) のように界面に何度も入射を繰り返しながら伝搬するようになる。このような伝導機構は、キャリアのがとる蛇のような動きから “snake state” と呼ばれている。Snake state は低移動度グラフェンにおいて Williams らがその兆候を観測していたが<sup>119</sup>、高移動度グラフェンの実現によって磁気抵抗の振動現象として明瞭に観測されることが二つのグループから同時に報告されている(詳細は 5.5.6 で議論する)<sup>145,146</sup>。

Fig. 3-21(b)に今回用いたデバイス Z の高磁場領域での結果を載せる。振動構造が分かりやすいように二端子抵抗( $T = 1.6$  K)をゲート電圧で微分した  $dR_{2t}/dV_{tg}$  を( $V_{tg}$ ,  $B$ )平面内にカラープロットしたものである。0.5 - 0.8 T 付近(赤枠内)に明瞭な磁気抵抗の振動現象が観測されていることが分かる。この振動の様子は、Taychatanapat らが報告した snake state による磁気抵抗振動現象<sup>146</sup>と酷似しており、確かに 3.2.2 で論じた磁場領域より更に高磁場領域では、キャリアは界面をスキッピング運動するようになり、snake state を形成していることが示唆される。

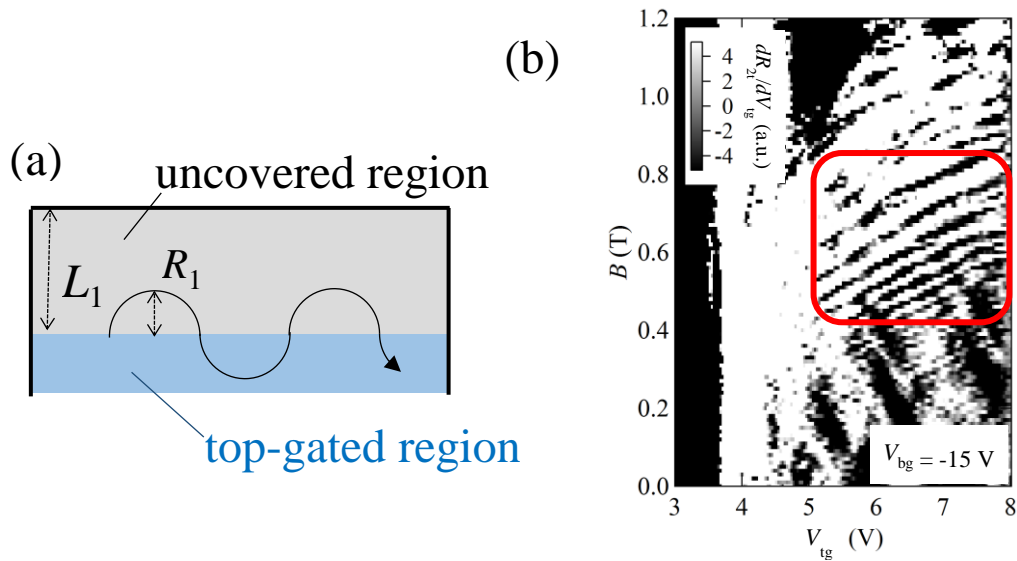


Fig. 3-21 (a) snake state 模式図 (b) 素子 Z の  $T=1.6$  K,  $V_{bg} = -15$  V における  $dR_{2t}/dV_{tg}$  の( $V_{tg}$ ,  $B$ ) 平面へのカラープロット

### 3.4.6 磁気抵抗符号の比較まとめ

flat 型の npn 接合と zigzag 型の npn 接合の磁気抵抗を比較することによって両者でゼロ磁場周りの磁気抵抗の符号が逆であることを明らかにした。Klein tunneling および Klein collimation によって垂直入射・出射が支配的になり、flat な接合ではゼロ磁場において、zigzag な接合ではサイクロトロン半径とゲート構造のスケールが整合した磁場において、バリスティックなキャリアが接合を最も透過しやすくなり、磁気抵抗の違いが生じたと説明することができる。

## 3.5 本章のまとめ

二つ目の界面が一つ目の界面に対してある角度を持つような zigzag 型の接合を作ることによって、接合内のバリスティックキャリアの軌道を制御し、抵抗増大の観測や磁気抵抗符号の違いが生じることを確認した。ゲート構造の形を変化することによってバリスティッ

クキャリアの屈折や反射を操りながらキャリアの軌道を制御することを実証した結果であり、**Dirac fermion optics** の実現に向けて重要な一歩となる結果と言える。

また特に、3.3 で紹介した抵抗増大現象に関しては、高移動度高キャリア密度を維持しながら抵抗を増大することができたと言え、抵抗増大が難しいと言われているグラフェンという系においても、**Dirac fermion optics** という概念を利用することで、将来的にはトランジスタなど実用に資するデバイス応用の可能性を示唆した結果であるとも言える。



## 第4章 局所ポテンシャル変調を用いた電子軌道制御

前章では、nnp 接合を用いることで、バリステックなキャリアの屈折・透過を制御することに成功した結果について報告した。本章では、これをより発展させ、局所的なバリステックキャリアの軌道制御を試みた結果について報告する。

なお本章で述べる結果については、

“Imaging ballistic carrier trajectories in graphene using scanning gate microscopy”

S. Morikawa, Z. Dou, S. -W. Wang, C. G. Smith, K. Watanabe, T. Taniguchi, S. Masubuchi, T. Machida, and M. R. Connolly

Applied Physics Letters **107**, 243102 (2015).

にて発表している。

### 4.1 本章のねらい

前章では、 $\mu\text{m}$  スケールの巨視的な局所ゲート構造を用いて、バリステック伝導の制御を行った。またゲートは蒸着法により作製したものであることから、一つのデバイスはその機能だけを有することが基本となる。

一方で、本章では、scanning gate microscopy (SGM)という局所プロービング技術を利用することで、10 - 100 nm スケールの極めて局所的かつ位置制御可能なポテンシャル変調を用いてバリステックキャリアを制御する。概念図を Fig. 4-1 に示す。

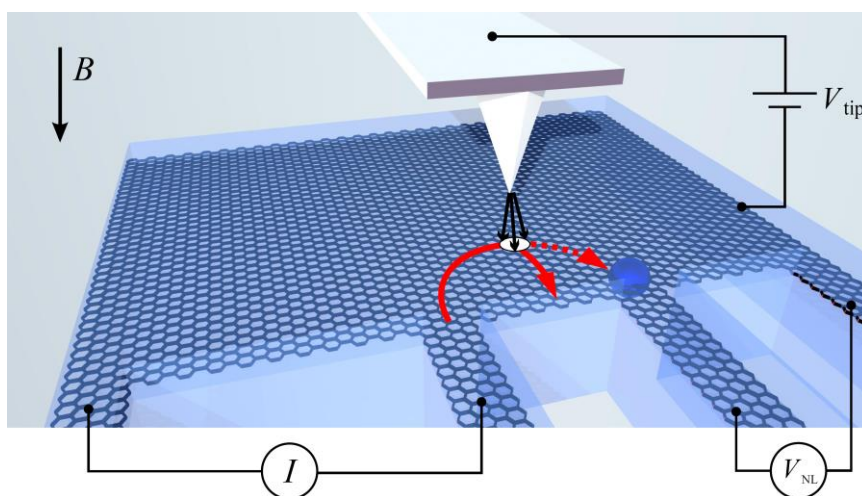


Fig. 4-1 Scanning gate microscopy によるバリステック伝導制御



グラフェンから 50 nm 程度の高さの部分、100 nm スケールの鋭い曲率半径を持つ AFM チップを電圧を加えながら走査する。すると、チップが作る局所的にポテンシャルの異なる領域によってこのグラフェン中をバリスティックに伝導しているキャリアが反射されると予測できる。この反射を利用することで、固定のゲート構造を利用するよりも、より小さなスケールでかつ位置的自由度の高い制御がバリスティックキャリアに対して可能になると言える。

## 4.2 測定方法とデバイス構造

### 4.2.1 Scanning gate microscopy

このような実験を行うには、高移動度試料の作製に加えて、scanning gate microscopy (SGM) 測定を行う環境が必要となる。この技術は低温において電気伝導測定を行いながら、電圧を印可した AFM チップを試料最表面で走査する(実際にはチップの位置は固定し、試料が乗っているステージの  $x, y$  座標を変化させる)という極めて精密な測定が必要である。そこで本研究では、2.3.2 の方法を用いて東京大学町田研究室で作製した高移動度試料を、英ケンブリッジ大学 M. R. Connolly 博士・C. G. Smith 教授のグループが有する SGM 測定装置で測定した(筆者が作製から測定まで全ての実験に従事した)。彼らは世界でも数少ないこの測定系を利用することで、10 年以上前から GaAs 系を用いたメゾスコピック系の量子伝導の局所制御や観察について精力的に研究を行い<sup>147-149</sup>、近年ではグラフェンにおいてもこの概念を導入した実験を多数報告<sup>150-154</sup>していた。一方で、高移動度グラフェンを作製する技術は有していなかったため、今回初めて、筆者の作製した高移動度グラフェンに対して SGM 測定を行うことで、バリスティック伝導の可視化と制御を行うことを目指し、共同研究を行った。

### 4.2.2 測定準備

使用した測定系の写真を Fig. 4-2(a),(b)に示す。試料をボンディングした LCC パッケージをピエゾによって  $x, y, z$  方向に可動できるステージの上にマウントする。このステージには LCC パッケージと外部の測定系との接続が取れるような配線が施されており、試料の電気伝導特性を測定できる。このステージに上部から曲率半径 100-200 nm 程度の先端を有するダイヤモンドチップ(Nano World POINTPROBE-CDT-FMR-10)を近づける。チップはカンチレバーの先端に取り付けられており、カンチレバーはピエゾ素子によって  $z$  方向に移動・加振することができる。この位置および振幅は、上部から光ファイバーによって照射されるレーザー光がカンチレバーに反射することによって生じる Fabry-Perot 干渉の振幅[Fig. 4-2(c)]によって見積もることができる。

サンプルをボンディングする際の注意点としては、

・カンチレバーや光ファイバーがボンディングに用いる金線にぶつからないように、カンチレバーが走査する試料周辺は、ボンディングパッドよりも 1.5 mm 程度離れている必要がある。

・可動ステージの最大可動幅は 1 mm 強であるため、試料周辺はステージ中心部よりも 1 mm 以内になければいけない。

・LCC パッケージに入るように基板を 5 mm × 5 mm より小さく劈開する必要がある等が挙げられる[Fig. 4-2(d)]。

低温における SGM 測定を行う前に必要な手順は以下の通りである。

- ① まず室温・大気環境下で外部から光学顕微鏡などを覗きながら、チップと試料のおおよその位置を可動ステージをピエゾ制御で動かしながら合わせる。
- ② 試料表面をチップにアプローチしていく。Fabry-Perot 干渉の振幅を測定しながら、少しずつ  $z$  方向に近づけていき、振幅が急激に減少した(チップが表面に触れた)ところでアプローチをやめる。
- ③ 通常の AFM タッピングモードを用いて表面トポロジー像を取り、予め撮影しておいた試料の光学顕微鏡像や設計図を参考にしながら、現在の正確なチップの場所を確認する。それを基に再度試料の  $x, y$  位置を調整する。
- ④ これらを冷凍機に dipping する準備として、光ファイバーや測定用の配線をまとめた後に、インジウムシールを用いることで真空封止する。
- ⑤ 熱交換ガスとして He ガスを少量封入した後、冷凍機に dipping していく。その際、ピエゾが温度変化に応じて一定方向に一定量だけドリフトすることが知られており、予めそのドリフトを見越して、ステージを逆方向に移動させておく。また温度変化が急激だとピエゾが固まって動かなくなるため、数時間かけてゆっくり dip するとともに、定期的にピエゾをプラス方向とマイナス方向に  $x, y, z$  三方向全てに対して振動させて、ピエゾが動かなくなるようにする。
- ⑥ 低温で再度チップと試料の位置合わせを行う。低温においてはカンチレバーの共振  $Q$  値が高くなるために、振動振幅を一定にするような PID 制御が不安定になり、タッピングモードを行うことが困難になる。そのため、カンチレバーの共振周波数のシフトを空間マッピングすることで、試料のトポグラフィーを確認する方法を取る。具体的には、back gate に電圧を加えながらチップを試料表面で走査すると、チップがコンタクトやグラフェンの直上にあるかないかでチップが back gate による電界から力を受けないか受けるかが決まり、カンチレバーの共振周波数が変化する。この共振周波数をマッピングすることで試料のトポグラフィーを間接的に知ることができる。
- ⑦ ②と同様に試料をアプローチし、試料表面とチップがぶつかったところから所望の高さ  $z = z_{\text{tip}}$  だけチップと試料を離す。その  $z$  位置を維持しながらチップにバイアスを加えて SGM 測定を行うが、その前に、ゼロバイアスで試料表面を走査しチップが表面の凹凸やゴミなどにぶつからないか確認しておく。

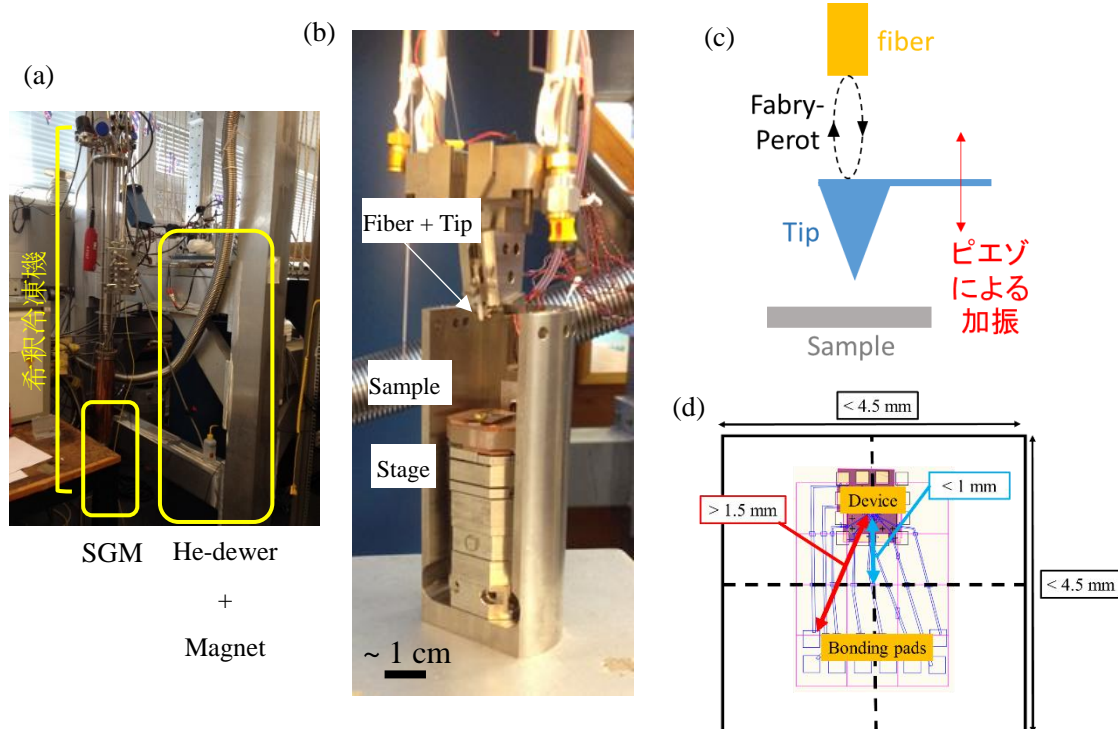


Fig. 4-2 (a) 測定装置外観 (b) 試料部と tip 部の拡大図 (c) tip 周辺模式図 (d) 電極配置

### 4.2.3 素子構造

本実験で利用した素子の光学顕微鏡写真を Fig. 4-3 に示す。まず、(a)が h-BN/グラフェン/h-BN 構造を 2.3.2 スタンピング法で作製した後の顕微鏡写真である。点線内がグラフェンが h-BN に挟まれて存在する領域である。この領域のうち、バブル構造がない部分を選んでホールバー型の試料構造を設計し、エッチングと電極蒸着を行った後の顕微鏡写真が(b)である。試料幅  $2\ \mu\text{m}$ 、試料長さ  $7.5\ \mu\text{m}$  の長方形チャンネルに対して幅  $200\ \text{nm}$  程度のアームが伸びた構造となっている。h-BN 層の厚みは上層・下層ともに  $50\ \text{nm}$  程度である。

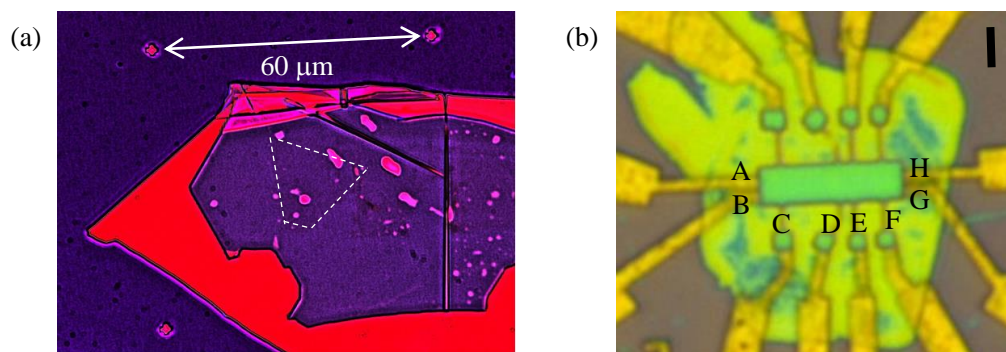


Fig. 4-3 (a) エッチング前の h-BN/グラフェン/h-BN 構造の光学顕微鏡像(白点線がグラフェンが h-BN に挟まれている部分) (b) 素子光学顕微鏡像(黒スケールバー:  $2\ \mu\text{m}$ )

## 4.3 基礎特性評価

### 4.3.1 電気伝導による評価

試料特性を確認するために、縦抵抗  $R_{xx}$  のバックゲート電圧依存性を  $T = 4 \text{ K}$  において測定した結果が Fig. 4-4(a)である(電流端子 B,G・電圧端子 A,H)。抵抗が最大になる Dirac 点が  $0 \text{ V}$  付近にあることから、不純物濃度が小さい清浄な系が実現しており、この両極性電界効果から計算される移動度は  $60,000\text{--}80,000 \text{ cm}^2/\text{Vs}$  程度で、十分にバリスティック伝導を示しうる高移動度な系が実現している。

また、 $B = 5 \text{ T}$  に固定して縦抵抗のバックゲート電圧依存性を測定した結果も Fig. 4-4(b)に示す(赤青の違いは gate 電圧の掃引方向の違い)。縦抵抗の極小構造が周期的に観測されていることが分かり、フィリング  $\nu = \dots, -10, -6, -2, 2, 2, 6, 10, \dots$  とアサインできることから、確かに単層グラフェン子を作製できていることが分かる。また 2.4.3 のコンセプトを利用することでゲートキャパシタンスを見積もることもできる。今回、 $\nu = 10$  と  $\nu = -10$  の間( $\Delta\nu = 20$ )で  $V_{bg}$  の違い( $\Delta V_{bg}$ )が  $46.8 \text{ V}$  あることと(2.7)式から、

$$C_{bg} = \frac{e^2 B \Delta\nu}{h \Delta V_{bg}} = 8.3 \times 10^{-5} \text{ cm}^{-2} \quad (4.1)$$

と計算できる。

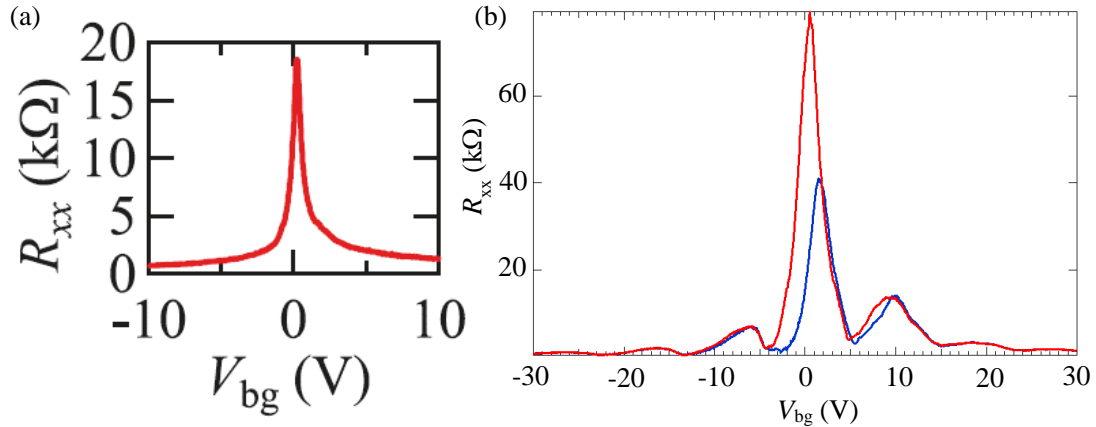


Fig. 4-4  $T = 4 \text{ K}$ ,  $B = 0 \text{ T}$ (a),  $5 \text{ T}$ (b)における縦抵抗  $R_{xx}$  のバックゲート電圧依存性

### 4.3.2 SGM による評価

量子ホール遷移領域においてSGM測定を行うことでチャネル中のポテンシャル揺らぎを評価することができる。Fig. 4-4(b)で縦抵抗がゼロになっていない領域、つまり量子ホール遷移領域にゲート電圧を固定し、バイアス( $V_{tip}$ )を加えたAFMチップを  $z_{tip} = 50 \text{ nm}$  の試料表

面で走査した時に  $R_{xx}$  がチップの位置の関数としてどのように変化するかを測定した結果 ( $T = 4 \text{ K}$ ) を Fig. 4-5 に示す。全てのゲート電圧において、場所によって  $R_{xx}$  が増加したり減少したりする様子が斑模様を観測されている。またこの斑模様の周期は数  $\mu\text{m}$  程度になっていることも分かる。

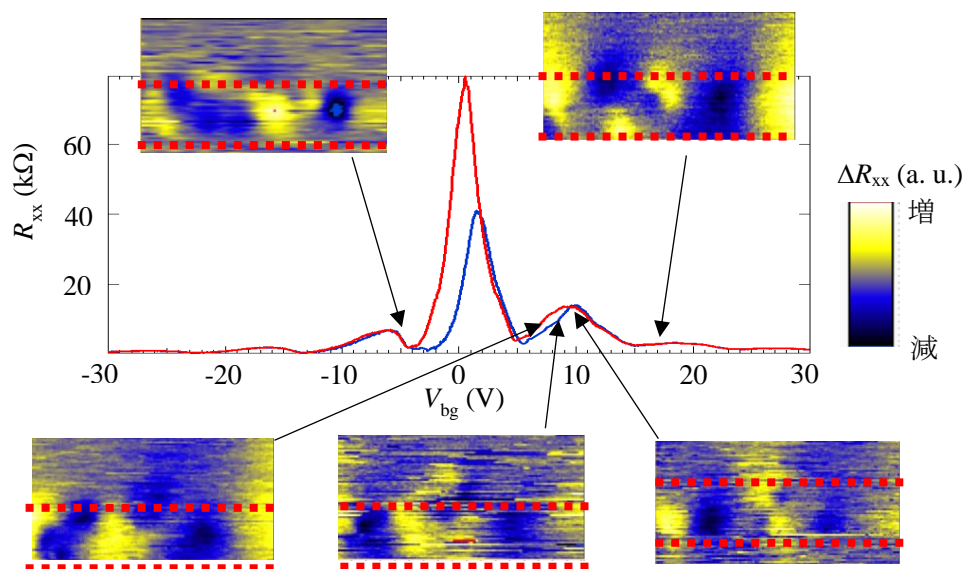


Fig. 4-5 Fig. 4-4(b)再掲と、矢印の  $V_{bg}(= -6, 8, 9, 10, 17 \text{ V})$  における  $\Delta R_{xx}$  変化の SGM 像(赤点線は試料端、幅が  $2 \mu\text{m}$ )

このような結果は、Fig. 4-6(a)のように、定性的には Connolly らによって既に  $\text{SiO}_2$  上グラフェンでも観測されており<sup>153</sup>、以下のように説明することができる。量子ホール遷移状態においては、エッジ状態とバルク状態が複雑なネットワークを形成しており、ある端子から出た電子がどの端子に透過するかは、このネットワーク形状を決定する系のポテンシャル揺らぎに依存している。このポテンシャルが Fig. 4-6(b)赤点線枠内のように鞍点を有すると、そこに小さな摂動が加わった場合、キャリアの伝導経路のトポロジーが変化してキャリアの到達先の端子が変わり、伝導度に大きな変化が生じると考えることができる<sup>155</sup>。このことから、SGM 像において急峻な伝導度の増減が観測されている場所は、ポテンシャル形状の鞍点であると考えることができる。

Connolly らはこのパターンの周期から、 $\text{SiO}_2$  上グラフェンのポテンシャル揺らぎの周期が  $100 \text{ nm}$  オーダーであると報告しているが<sup>153</sup>、今回観測された Fig. 4-5 のデータから、我々の用いた  $\text{h-BN}/\text{グラフェン}/\text{h-BN}$  構造においてはこの周期が数  $\mu\text{m}$  オーダーと一桁以上大きくなっていることが分かる。この結果は、 $\text{SiO}_2$  由来の不純物によるグラフェンへのドーピングが抑制され、より均一な系が形成されたことを示しており、Fig. 4-4 で急峻な両極性電界効果を観測できた理由を可視化によっても裏付けたと言える。



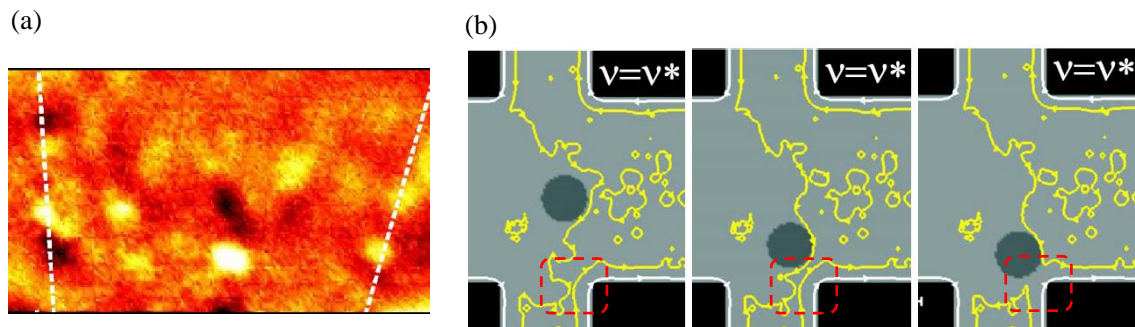


Fig. 4-6 (a) Connolly らが観測した SiO<sub>2</sub> 上グラフェンにおける SGM 像<sup>153</sup> (b) 鞍点に SGM による摂動を加えたときの電子の伝導経路の変化<sup>155</sup>

## 4.4 電子フォーカシング効果

本研究では電子フォーカシング効果と呼ばれるバリスティック伝導現象を利用して、バリスティック伝導の SGM を用いた局所制御が可能であることを実証する。まず本節では、SGM を用いない電気伝導測定のみでは、電子フォーカシング効果がどのように観測されるのかを紹介する。

### 4.4.1 電子フォーカシング効果の観測

測定配置は、電流を D,C 間に 100 nA 流しながら電圧を E,F 間で測る非局所配置を用いる。

1.1.2 の負の曲げ抵抗の際にも議論したように、拡散的な伝導が実現している場合は電圧端子が電流経路から離れていることから、電圧シグナルは観測されないはずである。しかし、磁場を印加していくと、低磁場においてこの非局所電圧に周期的なシグナルが見られる。Fig. 4-7(a)が、今回のサンプルで得られた  $T=4\text{ K}$  における非局所電圧の結果である。上から back gate 電圧が 25, 15, 10 V における結果を示している。赤矢印と青矢印で示されるように正の非局所電圧が観測されている。ここで、青矢印部のシグナルはちょうど赤矢印の二倍の磁場において観測されていることに注意したい。また back gate 電圧を大きくしていくと、このシグナルの場所はより高磁場側に移動していることも分かる。このシグナルの由来は以下のように説明できる。

ゼロ磁場下でソース(injector)から出てきた電子は、電圧端子(collector)がドレイン側とは逆側にあるため、電圧端子側には向かわず、シグナルは生じない。しかし磁場が加わると、キャリアはサイクロトロン運動をするため、ちょうど(2.9)で計算されるサイクロトロン半径の 2 倍(サイクロトロン直径)がソース端子と電圧端子間の距離  $W_{ic} = 750\text{ nm}$  と同じになる時に、ソースから出た電子が直接電圧端子に飛び込むようになる[Fig. 4-7(b)]。これによって非局所電圧にシグナルが出る、と説明することができる。一方その二倍の磁場においては、サイクロトロン半径は半分になるので、一度試料の端に反射した電子が再度サイクロトロン

運動することで電圧端子に飛び込みシグナルが出る、と考えることができる[Fig. 4-7(c)]。更に、(2.9)式から分かるように、back gate 電圧を大きくすると(キャリア密度を大きくすると)、サイクロトロン半径は大きくなることから、Fig. 4-7(b)や(c)の状況を実現するには(サイクロトロン半径を維持するためには)、磁場も大きくなければいけない。そのため、back gate 電圧を大きくしていくとピーク磁場も大きくなっていく[Fig. 4-7(a)]、と定性的に解釈することができる。この現象は電子フォーカシング効果と呼ばれており、半導体二次元電子系においては古くから<sup>13-15</sup>、グラフェンにおいても2013年に Taychatanapat らによって h-BN 上グラフェンにおいて<sup>156</sup>観測されている。

より定量的にこの議論が正しいかを確認するために、(2.9)式からサイクロトロン半径が  $W_{IC}/2$  と  $W_{IC}/4$  になるためには back gate 電圧と磁場の間にどのような関係が成立すべきかをプロットしたものが Fig. 4-7(d)の赤線と青線である。なお  $C_{bg}$  は(4.1)で計算した値を利用した。赤丸と青丸が Fig. 4-7(a)にてマークされているピーク磁場に対応するが、実験結果と計算結果が定量的に非常に良い一致を見せていることが分かる。この結果からも、今回作製したデバイスにおいては、確かにバリスティックな電子がフォーカシング効果を発現していると言える。

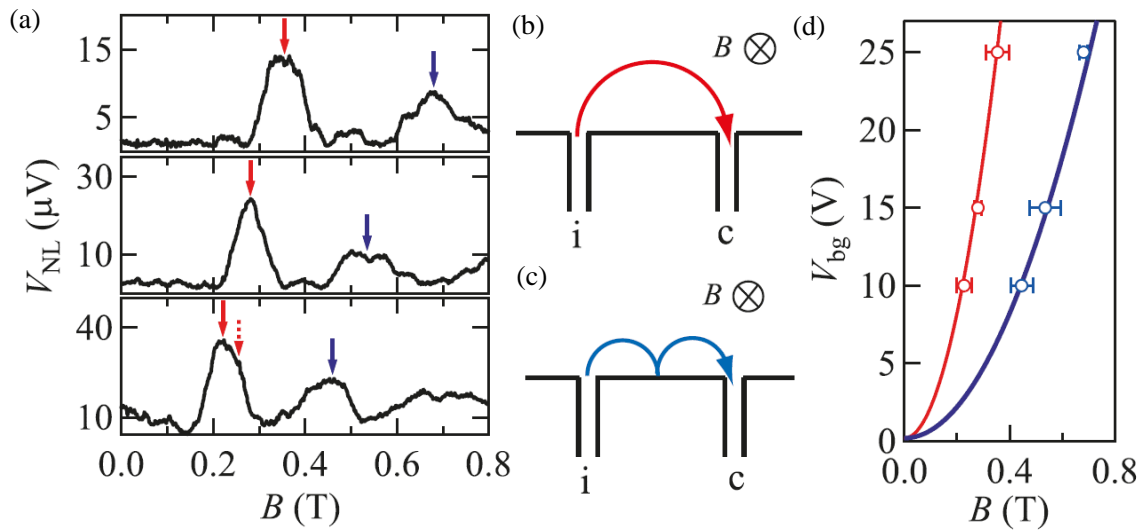


Fig. 4-7 (a) 4 K における非局所抵抗の磁場依存性(上から  $V_{bg} = 25, 15, 10$  V) (b),(c)  $2R_c = W_{IC}$ (b)および  $4R_c = W_{IC}$ (c)において予想されるバリスティックキャリアの軌道((a)における赤矢印と青矢印の状況に対応) (d) (a)における一つ目(赤)と二つ目(青)のピーク位置の( $V_{bg}, B$ )平面へのプロット(赤・青曲線は(b)および(c)が成立する領域の計算結果)

#### 4.4.2 試料端反射の鏡面性

また、Fig. 4-7(c)においてバリスティックなキャリアは試料端において鏡面的に(入射角=反射角で)反射することを仮定しているが、実際の系においては、エッチングによって試料



の端はナノスケールでラフネスを有しているはずであり、この仮定は自明ではない。どの程度の電子が試料の端において鏡面的に反射できるかという”specularity(鏡面性)”と呼ばれる指標は、赤矢印(試料端散乱が必要でないフォーカシング効果)と青矢印(一回試料端で反射する必要があるフォーカシング効果)の二つのピークの強度比から計算できることが知られており<sup>156,157</sup>、今回の場合この値は 0.45 - 0.65 と見積もることができる。

## 4.5 電子波の反射による電子軌道のイメージング

前節の結果から、確かに今回の試料においてはバリスティックな伝導が実現しており、このバリスティックな電子が、磁場下でのサイクロトロン運動によって電圧端子に直接飛び込む電子フォーカシング効果が観測できていることが分かる。今回はまず、このバリスティックな軌道を、SGM チップが及ぼす局所的にポテンシャルが変調された領域を利用して反射できることを実証する。この結果は、単にバリスティックキャリアの軌道を変調させたということに留まらず、もともとバリスティックキャリアの軌道をグラフェンにおいて初めて可視化したということも意味する。

### 4.5.1 電子軌道のイメージング

$V_{bg} = 10 \text{ V}$ ,  $T = 4 \text{ K}$  に設定し、磁場を一つのピーク磁場  $B = 0.22 \text{ T}$  に固定することで(Fig. 4-7(a)赤矢印)、バリスティックなキャリアが直接電圧端子に飛び込む状況を実現しておく。この状況で、チップにバイアスを加え ( $V_{tip} = -20 \text{ V}$ ) 試料表面を走査しながら非局所電圧  $V_{NL}$  を測定し、そのチップ位置依存性を測定する。

$z_{tip} = 70 \text{ nm}$  でチップを走査した結果が、Fig. 4-8(a)である。Injector と collector の間をアーチ状に  $V_{NL}$  が抑制された領域が見られていることが分かる。この近傍に走査領域を拡大し、 $z_{tip} = 10 \text{ nm}$  に設定して再度  $V_{NL}$  をマッピングした結果が Fig. 4-8(b)である( $z_{tip}$  が小さいために、チップが表面の凸凹等に衝突するリスクがあることから、広いエリアをスキャンすることはできない)。Fig. 4-8(a)同様にアーチ状に  $V_{NL}$  が抑制された領域が見られる。

この結果は以下のように説明することができる。この磁場においては、もともとバリスティックなキャリアはサイクロトロン運動をすることで collector に直接飛び込むことができていたが、チップがその軌道の真上に来た時のみ、チップの及ぼす局所的にポテンシャルの異なる領域の影響で、バリスティックなキャリアの進路が曲げられてキャリアは collector に飛び込めなくなる。そのため、 $V_{NL}$  が抑制されると説明できる。逆に、この  $V_{NL}$  抑制領域によって、もともとバリスティックなキャリアが伝導していた軌道をイメージングできたとも言える。グラフェン中のバリスティック伝導を可視化した初めての実験的報告である(筆者のこの報告と同時期に Harvard 大学のグループも同様の報告を行っている<sup>158</sup>)。

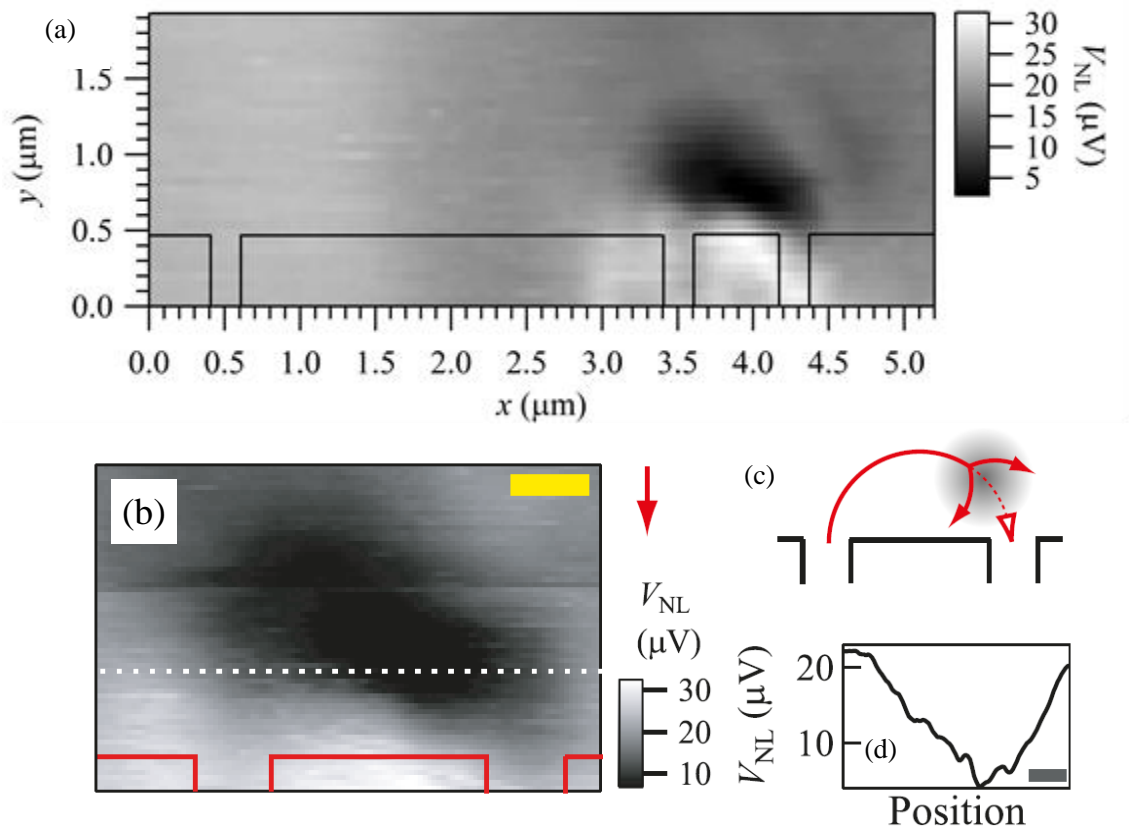


Fig. 4-8  $T = 4$  K,  $V_{bg} = 10$  V,  $B = 0.22$  T,  $V_{tip} = -20$  V における  $V_{NL}$  の (a) 広域 SGM 像( $z_{tip} = 70$  nm) (b) 拡大 SGM 像( $z_{tip} = 10$  nm, スケールバー : 200 nm) (c) SGM によるバリステイックキャリアの反射模式図 (d) (b)の白点線上の line cut(スケールバー : 200 nm)

更に、同様の状況で、磁場を  $B = 0.46$  T(Fig. 4-7(a)における青矢印)に変更し、同様の  $V_{NL}$  のマッピングを測定した結果が Fig. 4-9(a)である( $T = 4$  K)。この磁場においては、Fig. 4-7(c)のように injector からでたバリステイックな電子は、一度試料端で反射されてから collector に飛び込むが、確かに SGM の結果も二つのアーチ型の  $V_{NL}$  抑制領域が見られており、予測通りのバリステイックキャリアの軌道をイメージングできていることが分かる。Fig. 4-8 との比較のために、 $V_{NL}$  測定結果の白点線における輪切りを Fig. 4-8(d)および Fig. 4-9(c)に記載する。Fig. 4-8(d)においては dip 構造が一つであるが、Fig. 4-9(c)においては三つの dip 構造が見られており、電流抑制領域の構造が変化していることが確かに分かる。

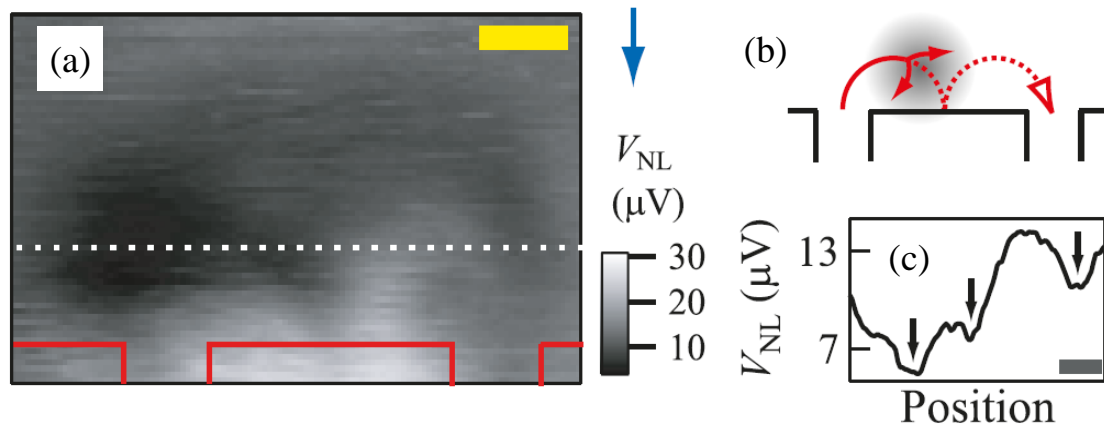


Fig. 4-9  $T = 4$  K,  $V_{bg} = 10$  V,  $B = 0.46$  T,  $V_{tip} = -20$  V における (a)  $V_{NL}$  の SGM 像 ( $z_{tip} = 10$  nm, スケールバー：200 nm) (b) SGM によるバリステックキャリアの反射模式図 (c) (b)の白点線上の line cut(スケールバー：200 nm)

#### 4.5.2 Injector/collector の有限太さと不完全な collimation の影響

ここまでの SGM 像から分かるように、 $V_{NL}$  の抑制領域は、数百 nm オーダーで広がりを見せている。この原因として、injector と collector が有限の太さ(200 nm)を持っていることから、キャリアがこの太さの中で任意の場所から出射し任意の場所に飛び込むことで、複数の軌道を取りうるということが挙げられる。また、Fig. 4-8(c)や Fig. 4-9(b)では、injector から垂直に出射した(collimate された)電子のみ考えていたが、実際には、出射方向も角度分布を持つと考えられるため、この影響も考慮しなければならない。

今回のようなナノリボン上の injector から出る電子の角度依存性に関しては、Hornsey らが既に計算を行っており<sup>159</sup>、injector の幅と長さの比と injector の physical edge の鏡面性に依存している。例えば今回のような幅 200 nm 長さ 1000 nm の injector を用いた系で、4.4.2 で議論したように鏡面性が 0.5 程度であることを考慮すると、約 40 度程度電子は injector から広がりながら入射すると見積もることができる。

そこで、Fig. 4-8 の場合、つまり  $R_c = W_{ic}/2 = 375$  nm が成立するような電子のサイクロロン軌道のうち、injector と collector を結ぶことができ、かつ injector からの入射角度が 40 度以内のものを全て書き出した結果を、Fig. 4-10 に示す。この結果から、確かに取りうる電子の軌道の範囲は 500 nm オーダーで広がっていることが分かり、実際に実験で得られた SGM 像の広がりとは定量的にも一致していることが分かる。

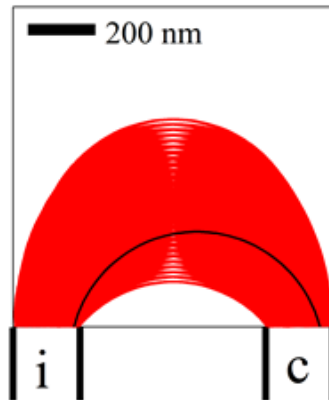


Fig. 4-10 injector と collector の太さと collimation の不完全さを考慮した場合に、存在しうる電子軌道を全て描いた計算結果(黒曲線はそのうちの一つを例のため強調したもの)

### 4.5.3 逆チップバイアスの結果

一方で、Fig. 4-8 の状況で  $V_{\text{tip}}$  を正の値 6 V に設定して同様の  $T = 4 \text{ K}$  における SGM 測定を行った結果が Fig. 4-11 である。この場合も Fig. 4-8 同様に、一つのアーチ型の  $V_{\text{NL}}$  抑制領域が観測されていることが分かる。Fig. 4-8 ではチップバイアスが負であることから、チップの下では局所的に  $\text{nn}\cdot\text{n}$  (もしくは  $\text{nnpn}$ ) 接合が形成されていることになるが、Fig. 4-11 においてはその逆の  $\text{nn}^+\text{n}$  接合が実現しているはずである。しかし、定性的にはこの二つの結果の間に差が見られていないことから、チップバイアスの符号差はバリスティックキャリアの反射に大きな変化を与えていないことが分かり、ポテンシャルが局所的に変調されてポテンシャルに「傾斜」が生じていること自体が、キャリアの反射を誘起していると考えることができる。

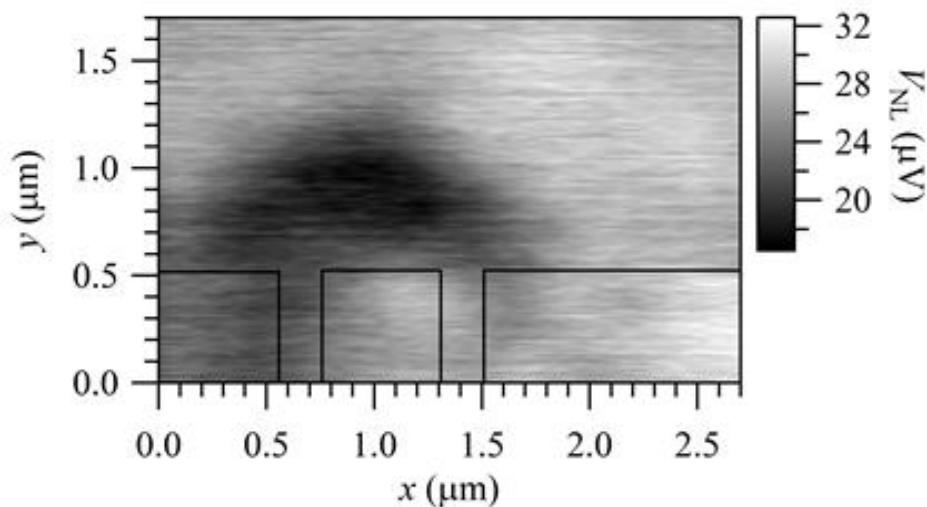


Fig. 4-11  $T = 4 \text{ K}$ ,  $V_{\text{bg}} = 10 \text{ V}$ ,  $B = 0.22 \text{ T}$ ,  $V_{\text{tip}} = 6 \text{ V}$  における  $V_{\text{NL}}$  の SGM 像( $z_{\text{tip}} = 10 \text{ nm}$ )

#### 4.5.4 Global な gating 効果の影響

ここまでゲート電圧と磁場を固定することで、バリスティックな軌道が Fig. 4-7(b)(c)の状況を維持していると仮定して、SGM 測定を行ってきた。しかし、Connolly らが報告しているように、チップにバイアスを加えると、チップ直下での local なポテンシャル変調だけでなく、チップから遠く離れた global な領域においても一定量のキャリア密度の変化が生じることが知られている<sup>152</sup>。このことから、SGM 測定を行っている際に、実効的にはあたかも設定した  $V_{bg}$  とは異なる  $V_{bg}$  が印加されたような状況が実現している可能性がある。以下ではこの global な gating 効果の影響について論ずる。

まず、先ほどまで利用していたサンプル[Fig. 4-3]と同様の構造のサンプルを作製し[Fig. 4-12(a)]、チップを赤×印の上に  $z_{tip} = 80 \text{ nm}$  で走査せずに固定した上で  $T = 4 \text{ K}$  における伝導測定を行った。具体的には、黒矢印で示した二端子間で二端子抵抗のバックゲート電圧依存性を  $V_{tip}$  を変えながら測定した。すると、Fig. 4-12(b)から分かるように、両極性電荷のピークである Dirac 点が  $V_{tip}$  の大きさに応じてシフトする様子が観測された。この結果はチップの影響によりキャリア密度が変調され実効的に  $V_{bg}$  がかかっているような状況が実現し、それが Dirac 点のシフトという形で観測されていることを意味する。例えばここまで SGM 像を得る際に使ってきた条件である  $V_{tip} = -20 \text{ V}$  においては、 $V_{tip} = 0 \text{ V}$  に比べて、実効的に  $V_{bg} = -0.3 \text{ V}$  程度が印加されていることになる。 $V_{bg} = -0.3 \text{ V}$  の変化はたとえば  $B = 0.22 \text{ T}$  においてはサイクロトロン半径の変化にして  $6 \text{ nm}$  程度の違いであることが分かり、今回の実験の精度の範囲(たとえば injector や collector の幅が  $200 \text{ nm}$ )では無視できる変化と言える。ここで、 $z_{tip} = 80 \text{ nm}$  は実際に利用した  $z_{tip} = 10 \text{ nm}$  よりも大きいですが、4.7.1 で議論するような電界シミュレーションによって、チップからの距離  $500 \text{ nm}$  より遠く離れた領域、つまり本項で議論している global な gating 領域においては、ほとんど  $z_{tip} = 10 \text{ nm}$  と  $80 \text{ nm}$  とで影響が変わらないことが分かり[Fig. 4-12(c)]、今回の評価が正当なものであると言える。

このことから、global な gating 効果によって系の状態(実効的に印加されている  $V_{bg}$ )が大きく変化を受けている、という影響は考慮する必要がないと結論付けられる。

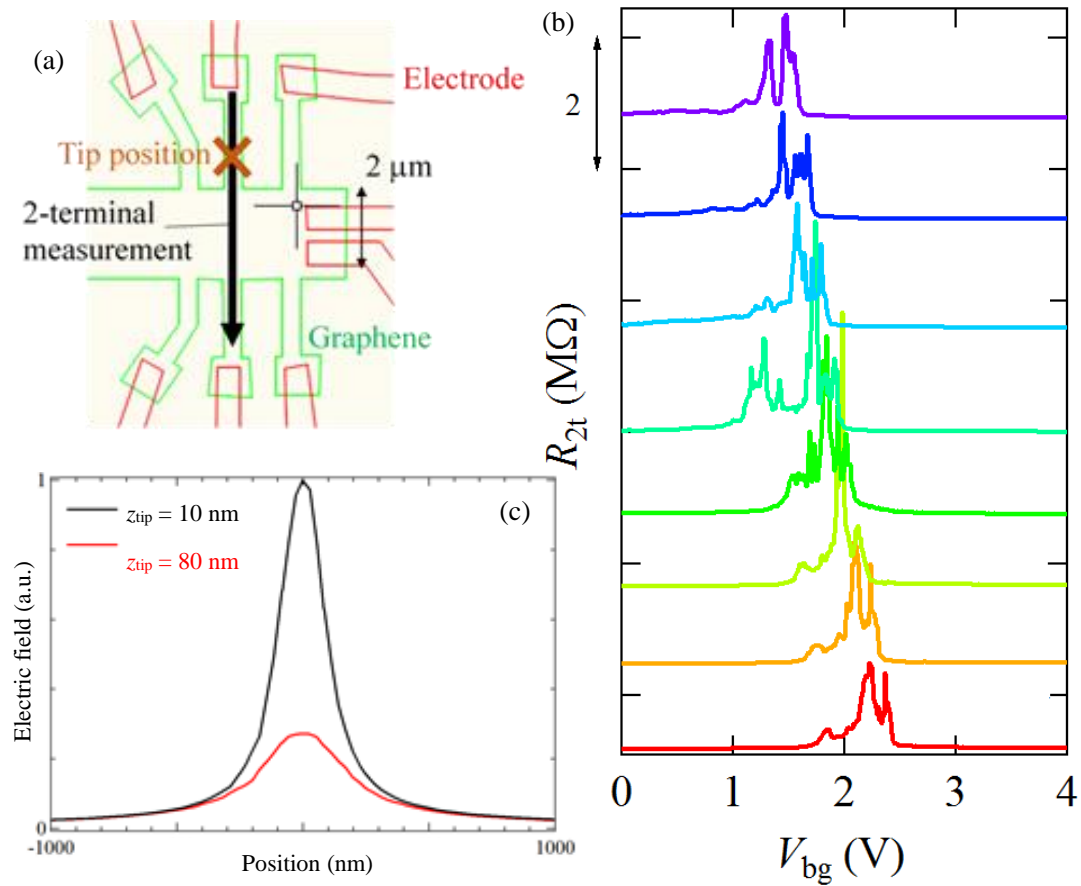


Fig. 4-12 (a) 測定配置 (b)  $T = 4$  K,  $B = 0$  T,  $V_{\text{tip}} = -20, -15, \dots, 15$  V (bottom to top)における  $R_{2t}$  の  $V_{\text{bg}}$  依存性(y 軸方向にオフセットを加えている) (c)  $z_{\text{tip}} = 10, 80$  nm における電界分布のシミュレーション結果

## 4.6 電子波の反射による電子軌道の制御

次に磁場を  $B = 0.24$  T(Fig. 4-7(a)における赤点線矢印)に固定して同様の SGM 測定を  $T = 4$  K において行った結果を Fig. 4-13(a)に示す。今まで同様に  $V_{\text{NL}}$  が変化している領域がアーチ状に見られるが、シグナル領域において  $V_{\text{NL}}$  が増大していることが今までと異なる特徴である。Fig. 4-13(c)に白点線における  $V_{\text{NL}}$  の輪切りデータを掲載するが、確かに Fig. 4-8(d)や Fig. 4-9(c)と違い  $V_{\text{NL}}$  が増大してピーク構造を取っていることが分かる。この結果は以下のように解釈することができる。

もともとこの磁場はフォーカシングのシグナルが見られるピーク磁場よりも少し高磁場側であることから、サイクロトロン半径が  $W_{\text{IC}}/2$  よりも小さく、バリスティックなキャリアは collector に完全には飛び込むことができていない。この状況でバイアスをかけられたチップが試料表面を走査すると、このチップが作る局所的にポテンシャルの異なる領域によってバリスティックなキャリアが反射を受けて進行方向を変えて、一部のキャリアが

collector に直接飛び込むことができるようになる予測できる[Fig. 4-13(b)]。これによって、もともと極大値はとっていなかった  $V_{NL}$  が増加したと解釈することができるのだ。

この結果は、もともと collector に飛び込むことができていなかったバリステックキャリアの軌道を、あたかもチップを使って「狙って」collector に飛び込ませた、と捉えることもできる。つまりチップが作る局所的にポテンシャルが異なる領域を用いることで、バリステックキャリアの軌道の制御を能動的に実現できることを示唆した実験結果である。第3章においては、 $\mu\text{m}$  スケールの巨視的なトップゲート構造を利用することでバリステックキャリアの進路の制御を行ったが、今回 100 nm のスケールでこの制御が可能になること、また、ゲート構造と異なりその場で自在にポテンシャル変調の場所を変化させながら軌道制御を実装できることを意味する。

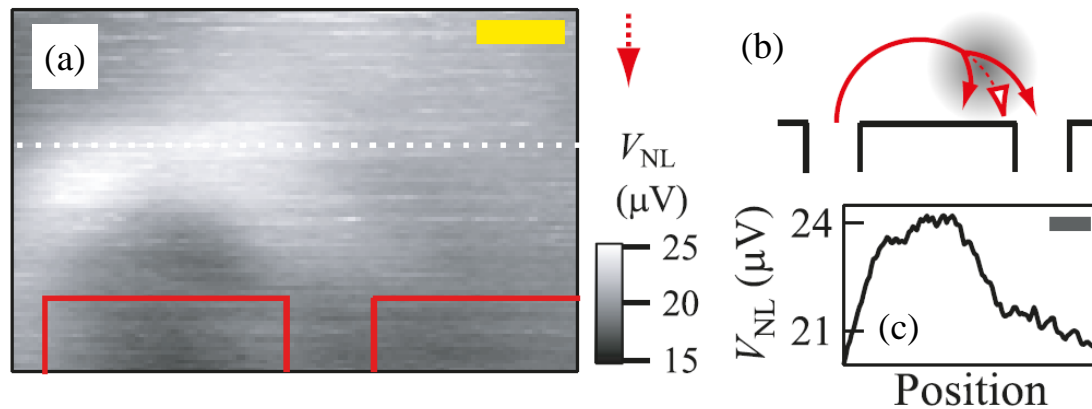


Fig. 4-13  $T = 4\text{ K}$ ,  $V_{bg} = 10\text{ V}$ ,  $B = 0.26\text{ T}$ ,  $V_{tip} = 10\text{ V}$  における (a)  $V_{NL}$  の SGM 像 ( $z_{tip} = 10\text{ nm}$ , スケールバー: 200 nm) (b) SGM によるバリステックキャリアの反射模式図 (c) (b)の白点線上の line cut (スケールバー: 200 nm)

## 4.7 課題と展望

以上の結果は、グラフェンを用いた初めてのバリステックキャリアのイメージングと、チップによるナノスケールのバリステックキャリアの制御を示した結果である。一方で、従来の半導体二次元電子系の領域においては、サイクロトロン運動の可視化<sup>147</sup>やコヒーレント電子フォーカシング効果の観測<sup>26</sup>など、同様の実験は既に行われている。本節では、今後の実験の発展として、より「グラフェンらしさ」が露わになるような実験の提案とそれに向けた現状の課題・解決法などを概観する。



#### 4.7.1 空間解像度の向上

今回使用したチップが実際にどの程度の長さスケールのポテンシャルが異なる領域を形成しているかを見積もるために、Infolytica 社の ElecNet という有限要素法パッケージソフトを利用して、電界分布を計算した。実際の実験の状況を再現するために、Fig. 4-14(a)に示すように、曲率半径 150 nm の先端を持つチップが厚さ 50 nm の h-BN 層(2.5.2 の実験結果から、誘電率 3.2 に設定)に対して 10 nm の高さで存在する状況を考えて、h-BN の直下にあるグラフェンにどのような電界分布が生じるかを計算した。計算結果は Fig. 4-14(b)となっており、電界分布の半値全幅が 200 nm 程度となっていることが分かる。今回の実験においてシグナルが見られている(かつ見られるべき)領域は 4.5.2 でも議論したように 500 nm 程度であることから、今回の実験のように単にバリスティックキャリアの軌道を見るためだけならば、用いたチップ配置は十分な空間解像度を有していると考えることができる。

一方で、より詳細な構造をイメージングするためには(例えば電子波の波面を見てコヒーレント性を調べる等)、より高い空間解像度を有する測定が必要になるとも言える。そのためには電界分布をよりチップ直下のみに集中させる必要があるが、まず改善できる部分は、チップの先端を鋭くすることである。例えば曲率半径 10 nm 程度のチップは市販されているために、扱いは技術的に困難になるが(先端を傷つけないようにタッピングモードの回数を最小限に留めるなどの工夫が必要である)、これを使用することは原理的には可能である。また今回は、2.3.2 で紹介したスタンピング法によって試料を作製しており、グラフェンの上部は厚さ 50 nm 程度の h-BN 層でキャップされているが、この h-BN 層の厚さを薄くする(もしくはキャップ層をなくしてグラフェンを表面に露出する)ことによって、チップをチャネルであるグラフェンに極めて近づけることができ、チップからの電界の広がりを抑えることができる。今回、理想的な状況として、チップの曲率半径 10 nm・チップからチャネルの距離 10 nm(h-BN 層なし)の系でグラフェンにおける電界分布がどの程度かを計算した結果を Fig. 4-14(c)に示す。電界分布の半値全幅が 50 nm 程度となっており、先ほどよりも電界を集中させることによって 4 倍程度空間解像度を向上できることが分かる。

通常の半導体二次元電子系においては、二次元電子層の上には必ずキャップ層が必要になるため、その厚さによってチップとチャネルの距離の最小値がリミットされていたが、グラフェンは原理的には二次元系を露出することができるため、チップをチャネルに可能な限り近づけることができる。この点は、空間分解能という点でグラフェンが通常の半導体二次元電子系よりも詳細なイメージングが可能になることを示しており、グラフェンがこのようなイメージング測定にとって優れた物質であると言える。

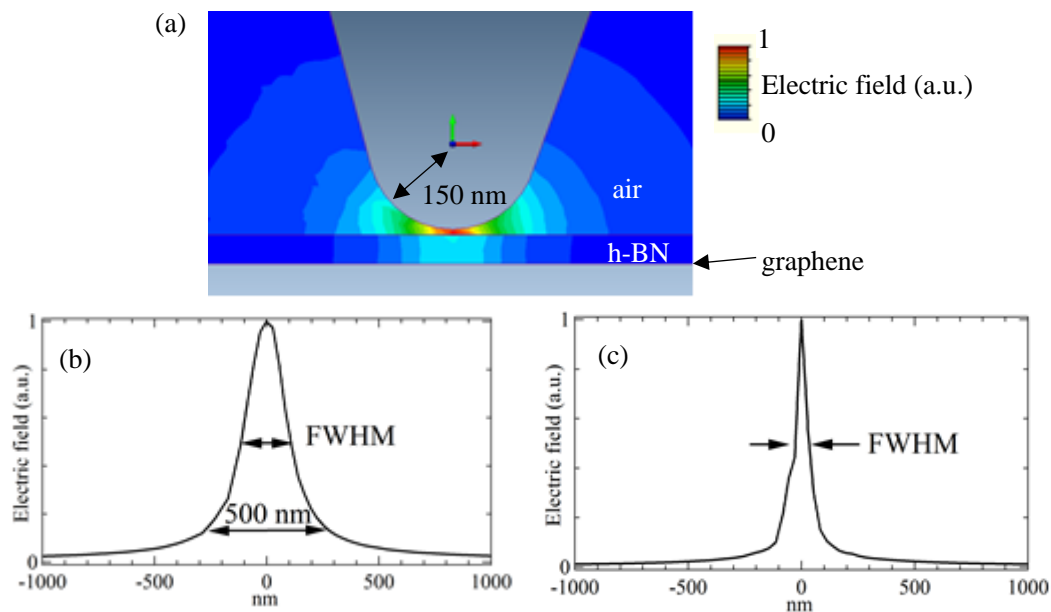


Fig. 4-14 電界分布のシミュレーション結果 (a) チップ配置と電界強度のカラープロット (b) tip 曲率半径 150 nm, h-BN(厚さ 50 nm)ありの場合の計算結果 (c) tip 曲率半径 10 nm, h-BN なしの場合の計算結果

#### 4.7.2 コリメーションの向上

4.5.2 で示したように、有限の太さを持つ injector からはバリスティックなキャリアが角度分布をもって出射され、様々なキャリアの軌道を考慮する必要性が生じてくる。injector の幅を細くすれば、原理的にはこの影響を小さくしコリメーションを高めることができるが、グラフェンは 100 nm 以下の細さになると、ラフネスを持つエッジにおいてキャリアが局在する効果が顕著になり Dirac 点近傍で量子ドットが結合したような絶縁性を示すことが知られており<sup>139</sup>、今回で利用した幅より更に細くなると injector として適切な系とは言えなくなる。

実際、今回利用した系においても、端子 C,F 間で二端子コンダクタンスのゲート電圧依存性を測定すると( $V_{ac} = 1$  mV の定電圧ロックイン測定)Fig. 4-15(a)のように Dirac 点付近においてコンダクタンスが 0 のプラトー構造を有することから、トランスポートギャップの存在を確認することができる。また、このギャップ内に  $V_{bg}$  を固定してコンダクタンスの SGM 像を  $T = 4$  K において測定すると、(b)のように明瞭な Halo 模様を観測することができる。先行研究で示されているように、クーロン振動が観測される量子ドットで SGM 測定を行うと量子ドットを中心とした Halo 模様が観測される<sup>151</sup>。このことから、今回作製した injector も低温・Dirac 点付近では、量子ドットが結合したようなチャンネルとなっていることが分かり、Dirac 点付近のバリスティック伝導の様子を可視化する上では適切な系とは言えない。

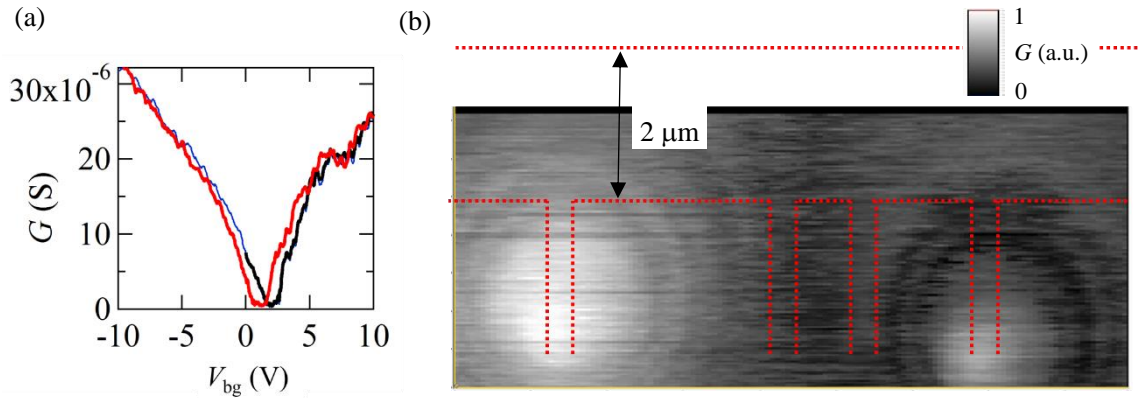


Fig. 4-15 (a)  $T = 4$  Kにおけるコンダクタンス  $G$  の  $V_{bg}$  依存性 (b)  $T = 4$  K,  $V_{bg} = 1.566$  V,  $B = 0$  T,  $V_{tip} = 6.4$  V,  $z_{tip} = 100$  nm における  $G$  の SGM 像(赤点線：試料端)

この問題を解決するために、Liu らは pn 界面における負の屈折を利用することで電子の出射をコリメートできる、という理論的提案を行っている<sup>87</sup>。具体的には、injector の直後に Fig. 4-16(a)に示すような双曲線のような形を持つ pn 界面を作製する。すると、一点から様々な方向に出た電子たちはこの界面において負の屈折を受けてすべて同じ方向に進行するようになる。実際にこの機能を injector の直後に導入しなかった場合と導入した場合で、予測される SGM 像を比較した計算結果が Fig. 4-16(b)であり、もともと広がっていた SGM 像がコリメーションの効果によって、明確に一つの軌道の上のみに見られていることが分かる。

この機能は、「負の屈折を利用したコリメーター」と捉えることができ、グラフェン特有の機能と言えるだろう。また、原理や構造自体は複雑ではなく実現可能性も十分にあると考えられる。

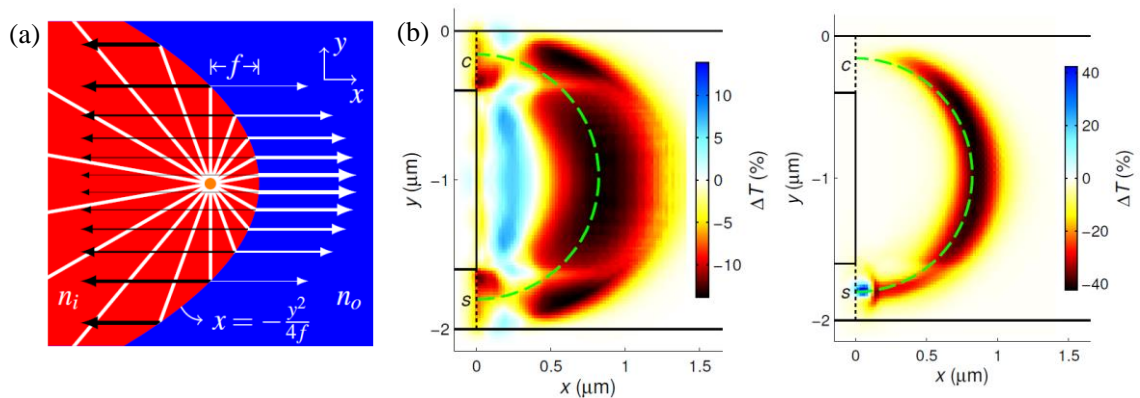


Fig. 4-16 (a) pn 界面における負の屈折を利用した collimation の向上 (b) collimation 無しと有りの場合に予測される SGM 像の違い<sup>87</sup>

### 4.7.3 Cloaking

最後に、1.3.3 で提案した cloaking という機能の実現が、今回使用した SGM 測定によって実現や測定が容易になりうるという点を紹介する。

Cloaking は、既に紹介しているように、ドーナツ型の npn 接合[Fig. 4-17(a)]を作製することで実現が可能になりうる現象であるが、このようなチャンネル中に孤立した特殊な形の pn 接合を top gate 構造により作製することは、技術的に困難である。また、仮に作製できたとしても、実際に cloaking 現象が起こっているか否かを、通常の電気伝導測定のみで評価することは難しい。

一方で、SGM を用いると、通常のゲートによる電界変調とは全く異なる方式でキャリア密度の異なる領域を作ることができる。具体的には、チップを試料表面に触れさせながら、強い電圧を印可することでキャップ層に電荷をためてその電荷を実効的なゲートとして用いる”charge writing”という方法である。半導体二次元電子系の領域において Crook らが初めて実現に成功し<sup>148,149</sup>、グラフェンにおいては Connolly や Herbshleb らが実現を報告している[Fig. 4-17(b)]<sup>152,154</sup>。この方法の優れた点は、一度電荷の書き込みが終われば外部から電圧を印可する必要なしに接合を作製できるので、Fig. 4-17(a)のような孤立した接合も、形の制限なく作製できることにある。

また本章の実験結果から分かるように、SGM という手法によって、バリスティックなキャリアが局所的にどこを流れているかを確認することができる。そのため、cloaking の生じている系の特徴的な波の動きである「回り込み」の様子が観測できると考えられる。特にドーナツ形状の内側にチップを置き、そこの電子状態を変調させてもグローバルな測定結果に影響が生じなければ、ドーナツの中の様子が「見えない(影響を与えない)」という「透明マント」の状況をデモンストレーションしたことになる。

以上のように、charge writing 技術と SGM 測定を組み合わせることで、通常では実現や測定の難しい cloaking という現象も観測が可能になると言える。

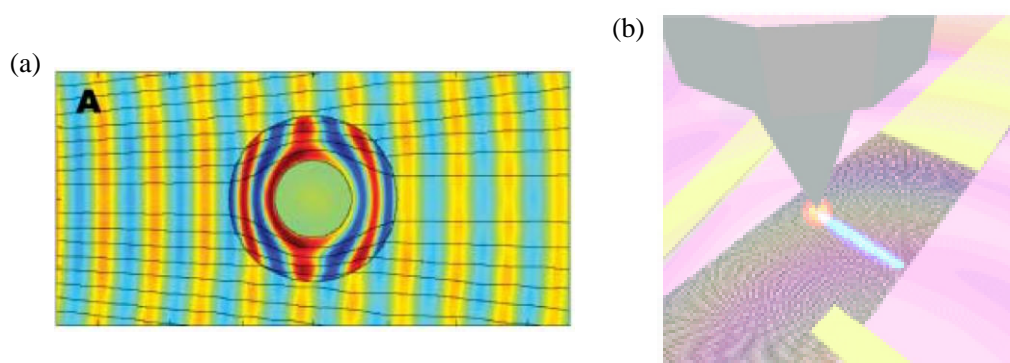


Fig. 4-17 (a) Cloaking<sup>88</sup> (b) Charge writing<sup>154</sup>

## 4.8 本章のまとめ

Scanning gate microscopy(SGM)という手法を用いることで、局所的にポテンシャルが異なる領域を作製し、バリスティックに伝導するキャリアを反射させることで、サイクロトロン運動するキャリアの可視化に成功した。また、この原理を利用することで、バリスティックな電子の軌道をより能動的かつ局所的に制御可能なことが分かった。グラフェンにおけるSGM測定は、より鋭いチップをよりチャンネルに近づけることで空間解像度の高い測定が期待できるだけでなく、グラフェン特有の負の屈折現象を利用することで **collimation** の向上や **cloaking** の実現・観測などが期待され、今回の結果はこれらの実現に向けた重要な一歩となる報告である。

## 第5章 量子ホール pn 接合におけるエッジチャネル干渉計の実現

ここまで、2.5 において高品質な npn 接合が実現可能であることを示し、第 3 章ではその中のバリスティック伝導を Dirac fermion optics の概念を利用して制御し、抵抗変調などの機能実現のデモンストレーションを行った。また、バリスティック伝導のみにとどまらず、電子波の波の成立を利用することで、2.5.3~2.5.5 では npn 接合において電子波の Fabry-Perot 干渉も実現しうることを示した。

しかし、この干渉は top gate 直下を様々な方向に進む複数の電子の軌道を全て平均化することによって観測されていた現象であり、電子の干渉経路を明確に define した系とは呼べなかった。一方、従来の半導体二次元電子系の領域において知られているように、ゼロ磁場下よりも高磁場下の量子ホールエッジチャネル伝導を利用する方が、1.3.1 の中でも紹介したように、より電子の伝導経路が明確な、ロバストで明瞭な干渉効果が見られることも知られていた。

本章では、グラフェンにおいても、強磁場下での量子ホールエッジチャネル伝導を用いることで、このようなエッジチャネル干渉計の形成を示唆する結果を得たので報告する。

なお本章で述べる結果については、

“Edge-channel interferometer at the graphene quantum Hall pn junction”

S. Morikawa, S. Masubuchi, R. Moriya, K. Watanabe, T. Taniguchi, and T. Machida

Applied Physics Letters **106**, 183101 (2015).

にて発表しており、該当号の Featured Article に選ばれている。

### 5.1 PN 接合における非平衡エッジチャネル配置

本章で報告する結果は、グラフェン pn 接合特有の co-propagating なエッジチャネル配置が、非平衡分布を示すことによって観測されたものである。複数のエッジチャネルが関与した系ではお互いのエッジチャネルが有するケミカルポテンシャルの緩和の度合い、つまり平衡分布が実現しているか非平衡分布が実現しているかが伝導に大きな影響を与える。本節では、この概念とグラフェンの pn 接合における具体的な先行研究を概説する。

#### 5.1.1 エッジチャネルの平衡・非平衡

Fig. 1-7 から分かるように、量子ホール系のフィリングファクターは、そのまま試料端を走るエッジチャネルの本数に対応する。そのため、局所ゲート構造を利用してキャリア密度

が異なる領域を作ると、局所的にエッジチャネルの本数が異なる領域を作ることができる。このアイデアを用いると、Fig. 5-1(a)のようにケミカルポテンシャルの異なる複数のエッジチャネルを同一領域に存在させることができ、そこでのエッジチャネル間の緩和過程については多くの研究が行われてきた。たとえば、散乱の頻度が高く、この緩和が十分に起こる場合は、すぐに二つのエッジチャネル間のケミカルポテンシャルは同じ値となる。この状態を平衡分布と呼ぶ。一方で、散乱の頻度が抑制された系では、マクロな長さスケールを経ても近接したエッジチャネル間が別々のケミカルポテンシャルを維持できることが分かっており<sup>160,161</sup>、この状態を非平衡分布と呼ぶ。

例として、Fig. 5-1(a)のようにフィリングファクター $\nu$ ,  $\nu_g$ ,  $\nu$ の接合を仮定し、その接合の縦抵抗を考える。平衡分布が実現しているならば、左のソースから来たエッジチャネルがフィリングファクター $\nu_g$ の領域を介して後方散乱を受けて、一部がソースに戻ることから、縦抵抗は非ゼロの値、

$$R_{xx} = \frac{h}{e^2} \left( \frac{1}{\nu} - \frac{1}{\nu_g} \right) \quad (5.1)$$

となるはずである。しかしHaugの結果を見ると、 $\nu_g$ を大きくしてもほとんど縦抵抗はゼロを維持していることが分かる[Fig. 5-1(b)]<sup>160</sup>。この結果は、 $\nu_g$ の領域にエッジチャネルの本数が増えたとしても、そのエッジチャネルと $\nu$ の領域からやってきたエッジチャネルが緩和を起こさずに非平衡分布を示すことで、 $\nu_g$ 領域のエッジチャネルが元々に存在する $\nu$ のエッジチャネルの伝導に影響を与えず縦抵抗に大きな影響が生じない、と解釈することができる。逆に、縦抵抗の実験値が、0と(5.1)の間のどの程度の値を取るかが、平衡の度合いを表していると言え、ここから非平衡分布の緩和長を計算することもできる<sup>162</sup>。

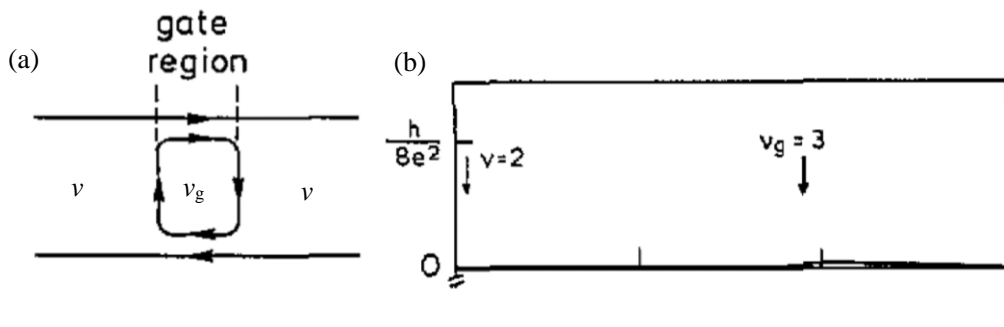


Fig. 5-1 フィリングファクターの異なる場合(a)における非平衡分布の観測(b)<sup>160</sup>

### 5.1.2 pn 界面における co-propagating エッジチャネルの平衡分布

キャリアの極性が通常 n 型に制限されている従来の半導体量子ホール系では、Fig. 5-1 のようなエッジチャネル配置を実現することで、エッジチャネルの平衡・非平衡分布の実験が



行われてきた。この配置の重要な点は、gate 領域において孤立したエッジチャネルが存在することで、ケミカルポテンシャルが異なるエッジチャネルが存在していることにある。

一方グラフェンにおいては、Fig. 5-2(a)に示すように pnp 接合を作製しても n 型部分に孤立したエッジチャネルを配置することができる。この孤立したエッジチャネルは、1.3.2 で紹介した pn 界面における co-propagating なエッジチャネル領域において、ソースやドレインから出てきたエッジチャネルとエネルギーのやり取りを行う。ここでグラフェンが、1.2.3 で論じたようにゼロエネルギーに四重縮退のランダウ準位を持つことを考えると、縮退が解けていない低移動度のグラフェンにおいては、p 型由来のエッジチャネルと n 型由来のエッジチャネルが Fig. 5-2(b)のように空間的に同じ場所を伝搬することになる。これによって、p 型由来と n 型由来のエッジチャネルの波動関数が重なることから、両者は完全に緩和した平衡分布を示すと予想できる。

実際、Özilimaz らは Fig. 5-2(c)に示すような SiO<sub>2</sub> 上グラフェンに HSQ/HfO<sub>2</sub> のゲート絶縁膜を用いた低移動度グラフェンにおいてこの実験を行い、二端子抵抗が平衡分布を示す場合の理論値である(5.2)になることを、Fig. 5-2(d)のように実験的に示した<sup>120</sup>。また Williams らも pn 接合単界面において同様に平衡分布が生じていることを観測している<sup>118</sup>。

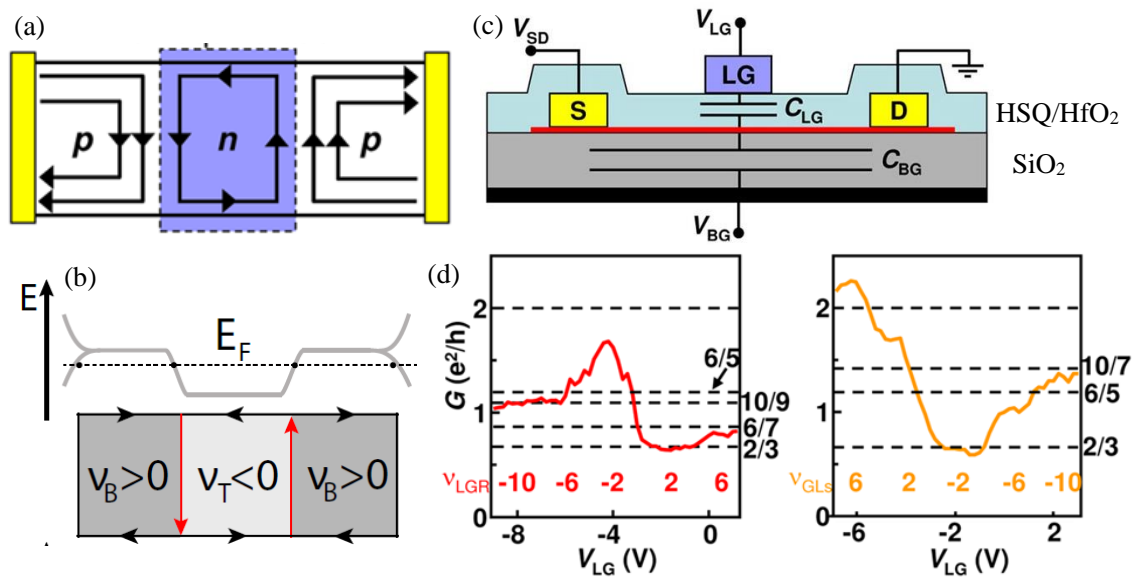


Fig. 5-2 (a) pnp 量子ホール接合におけるエッジチャネル配置<sup>120</sup> (b) ランダウ準位の縮退を考慮したエッジチャネル配置<sup>74</sup> (c) Özilimaz らが利用したデバイス構造<sup>120</sup> (d) 平衡分布の観測<sup>120</sup>

### 5.1.3 高移動度化による非平衡分布の実現

このようにグラフェンのエッジチャネル伝導においては、h-BN を用いた高移動度グラフェンが発見されるまで、非平衡のエッジチャネル分布というのは観測されていなかった。

非平衡エッジチャネル分布が観測されたのは2014年のAmetらによる報告<sup>163</sup>が初めてである。彼らはh-BN上グラフェンにsuspended構造のtop gateを作製[Fig. 5-3(a)]することにより、高移動度のグラフェン量子ホール接合を実現した。特に今までの接合と異なる点は、ランダウ準位の四重縮退が完全に分離しており、一つ一つのエッジチャネルが空間的にも分離するようになったことである。

彼らはこの系において、まず、Fig. 5-1のような配置のnn'n接合において、異なるスピンの分極したエッジチャネル間での緩和が抑制され非平衡分布が実現している、ということを発見した。更に、npn接合が実現している状況において、伝導度が平衡分布を仮定した時と比べて明らかに小さな値を示していることから[Fig. 5-3(b)]、pn界面におけるco-propagatingなエッジチャネル領域では、同じスピン分極間のエッジチャネル間でも非平衡分布が実現していることを示した。高移動度グラフェンにおいては多体効果によってゼロエネルギーのランダウ準位が分離を起こし、フィリングファクター0の量子ホール領域、つまり絶縁領域<sup>164-166</sup>がp型由来のエッジチャネルとn型由来のエッジチャネルの間に形成されることが、pn界面において非平衡分布が形成される理由である[Fig. 5-3(c)]。

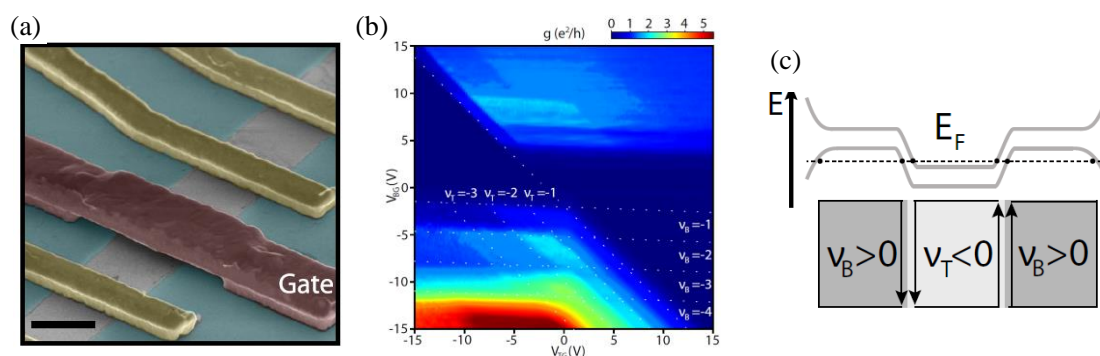


Fig. 5-3 (a) Amet らが利用したデバイス構造 (b) 非平衡分布の観測 (c) ランダウ準位の分裂によるエッジチャネルの空間的分離<sup>74</sup>

## 5.2 本章のねらい

このように、近年になり高移動度化によってグラフェンにおいてもエッジチャネルの非平衡分布の観測が可能になった。特にnpn接合においては、界面に形成されるフィリングファクター0の量子ホール絶縁領域によって、接合の透過率が顕著に抑制されることが分かった。しかし「顕著に抑制」された状況でも有限の伝導度は示しており、実際にこの系においてどのような伝導形態が実現しているかは、知られていなかった。

本章では、このpn界面において非平衡分布を示すco-propagatingエッジチャネルに着目し、電気伝導測定を行った。この系においては、通常の緩和過程では全く説明することができない磁気抵抗の振動現象が観測され、それがエッジチャネル干渉計の形成によって説明できる振動構造であることを示す。

## 5.3 磁気抵抗振動の観測

本節では、pn 界面におけるエッジチャネル非平衡分布が実現しているような高品質 npn 接合において、特異な磁気抵抗振動が観測されたことについてまず述べ、この結果が通常の SdH 振動や Aharonov-Bohm 振動では説明不可能であることを示す。

### 5.3.1 縮退分離量子ホール効果と npn 領域での非平衡分布の観測

本章で用いた素子は、2.5 において Fabry-Perot 干渉の観測に成功した、ゼロ磁場においてバリスティックかつコヒーレントな伝導が実現している局所キャリア変調可能な素子である[Fig. 2-17]。Fig. 5-4(a)は、1.6 K, 9 T における二端子抵抗値(端子 A,B 間)の  $V_{tg}$  微分  $dR_{2t}/dV_{tg}$  を  $V_{tg}$  と  $V_{bg}$  の関数としてカラープロットしたものである。

微分を取っているために、量子ホール効果が生じて二端子抵抗がプラトー構造を取る部分が白色の領域として示されることになるが、まずトップゲート直下のフィリングファクター  $\nu_t$  が -2, -6 の部分において非常に明瞭なプラトー構造(太い白色領域)を示していることが分かる。加えて、その周辺において -1, -3, -4, -5 などの領域にも明確なプラトー構造が見られていることも分かる。通常の縮退が分離していないグラフェンにおいては、(1.6)で示す 4 飛びのフィリングファクターでしか量子ホール効果は発現しないはずであるが、スピンとバレーが四重縮退したランダウ準位が、高移動度化に伴った多体効果の発現によって縮退分離することで、(1.6)以外のフィリングファクターでもプラトー構造が見られていることを意味する。

より詳しく見ていくために、このカラープロットを三つの領域に分ける。まず  $V_{bg}$ ,  $V_{tg}$  がともに正である領域 III においては nn'n 接合が実現しており、特に top gate 直下のキャリア密度  $n_2$  は top gate 外のキャリア密度  $n_1$  より大きくなっている。そのため、top gate 直下のエッジチャネルの本数の方が多くなり、Fig. 5-4(c)-III のような孤立したエッジチャネルが形成される。一方で、 $V_{bg} > 0$  かつ  $V_{tg} < 0$  の領域は  $n_2 = 0$  の領域(Fig. 5-4(a)斜め点線)を挟んで二つの領域に分かれる。II の領域においては nn'n 接合が実現し、今度は  $n_2 < n_1$  が実現している。このことからソースからやってきたエッジチャネルの一部が top gate の領域で跳ね返されてソースに戻るような伝導が実現する[Fig. 5-4(c)-II]。最後に I の領域においては npn 接合が実現し、前節で論じてきたような co-propagating なエッジチャネル配置が pn 界面において形成される[Fig. 5-4(c)-I]。

Fig. 5-4(b)に  $V_{bg} = 19.3$  V,  $T = 1.6$  K で固定した上で  $V_{tg}$  を変えながら伝導度を測定した結果を示す。この結果を利用して、それぞれの領域でどのような伝導が実現しているかを考察する。なお  $V_{bg} = 19.3$  V は top gate 外の領域におけるフィリングファクター  $\nu_b$  が 6 の状況に対応する。

まず III の領域から考える。孤立したエッジチャネルと、ソース・ドレインから伝搬して

くるエッジチャネルが完全に緩和し平衡分布が実現していると仮定すると、伝導度  $G$  は以下のように書ける。なお計算の際に、エッジチャネルの本数が変化するポイントにおいて、キャリアがエッジチャネルの本数に応じて均等に分配されることを仮定する。

$$G = \frac{e^2}{h} |v_b| \frac{|v_b|}{|v_t|} \left[ 1 + \left( \frac{|v_t| - |v_b|}{|v_t|} \right)^2 + \left( \frac{|v_t| - |v_b|}{|v_t|} \right)^4 + \dots \right] = \frac{e^2}{h} \frac{|v_t v_b|}{2|v_t| - |v_b|} \quad (5.2)$$

この式によれば、 $v_b = 6$  において  $|v_t|$  を十分に大きくすると  $G \rightarrow 3e^2/h$  に収束するはずであるが、確かに Fig. 5-4(b) において  $V_{tg}$  を十分に大きくすることで  $v_t$  を大きくしていくと、 $3e^2/h$  に収束している様子が観測されており、この領域においては(5.2)の式で説明できるようなエッジチャネル間が完全に緩和した状況が実現していることが分かる。

次に II の領域を考える。この領域においては、top gate 直下のエッジチャネルの本数  $v_t$  のみで伝導度が決まるため、

$$G = \frac{e^2}{h} |v_t| \quad (5.3)$$

となるはずである。実際、 $V_{tg}$  を大きくして  $v_t$  を大きくするにつれて  $G$  が増大している様子が観測されており、定性的には予想と一致している。一方でより厳密に伝導度の値を比較すると、 $V_{tg} = 0$  の時  $v_t = v_b = 6$  となり  $G = 6e^2/h$  となるはずだが、実際はそれよりも小さな値  $4e^2/h$  程度となっている。このような伝導度の値の理論との不一致は先行研究でも報告されており、量子ホール状態であっても縦抵抗が完全にゼロに落ち込んでいない場合は back scattering の影響で伝導度が落ちうるといふ計算結果が知られている<sup>120</sup>。

最後に I の領域を考える。pn 界面における co-propagating エッジチャネル間が完全に緩和していると仮定すると、伝導度は(5.2)と同様の計算方法から、

$$G = \frac{e^2}{h} |v_b| \frac{|v_t v_b|}{(|v_t| + |v_b|)^2} \left[ 1 + \left( \frac{|v_t|}{|v_t| + |v_b|} \right)^2 + \left( \frac{|v_t|}{|v_t| + |v_b|} \right)^4 + \dots \right] = \frac{e^2}{h} \frac{|v_t v_b|}{2|v_t| + |v_b|} \quad (5.4)$$

と書けるはずである。Fig. 5-4(b) のように  $v_b = 6$  が実現している状況においては、 $v_t$  が -2, -6 と変化すると

$$G = \frac{6}{5} \frac{e^2}{h}, 2 \frac{e^2}{h} \quad (5.5)$$

と伝導度が増大していくはずである。しかし、Fig. 5-4(b) から分かるように  $G$  の実験値は  $e^2/h$  以下にとどまっており、伝導度の増大が見られない。この結果は、5.1.3 で紹介した Amet らの結果<sup>163</sup> と一致しており、pn 界面において co-propagating エッジチャネル間の緩和が抑制されてソースから来た電子がドレインに流れづらくなり伝導度が抑制されている、と解釈することができる。pn 界面においてエッジチャネルの非平衡分布が生じていることを示している。

そのほかにも、Fig. 5-4(a) から分かる I の領域の他の II, III 領域と異なる特徴として、top

gate 直下のフィリングファクター $\nu_t$ に依存した構造を取っていないことが挙げられる。通常のエッジチャネル平衡・非平衡の描像だと、必ず伝導度は $\nu_t$ に依存しているはずであるが、非平衡分布が実現している npn 接合においては、全く異なる伝導形態でキャリアの伝導度が決まっていることが示唆される。

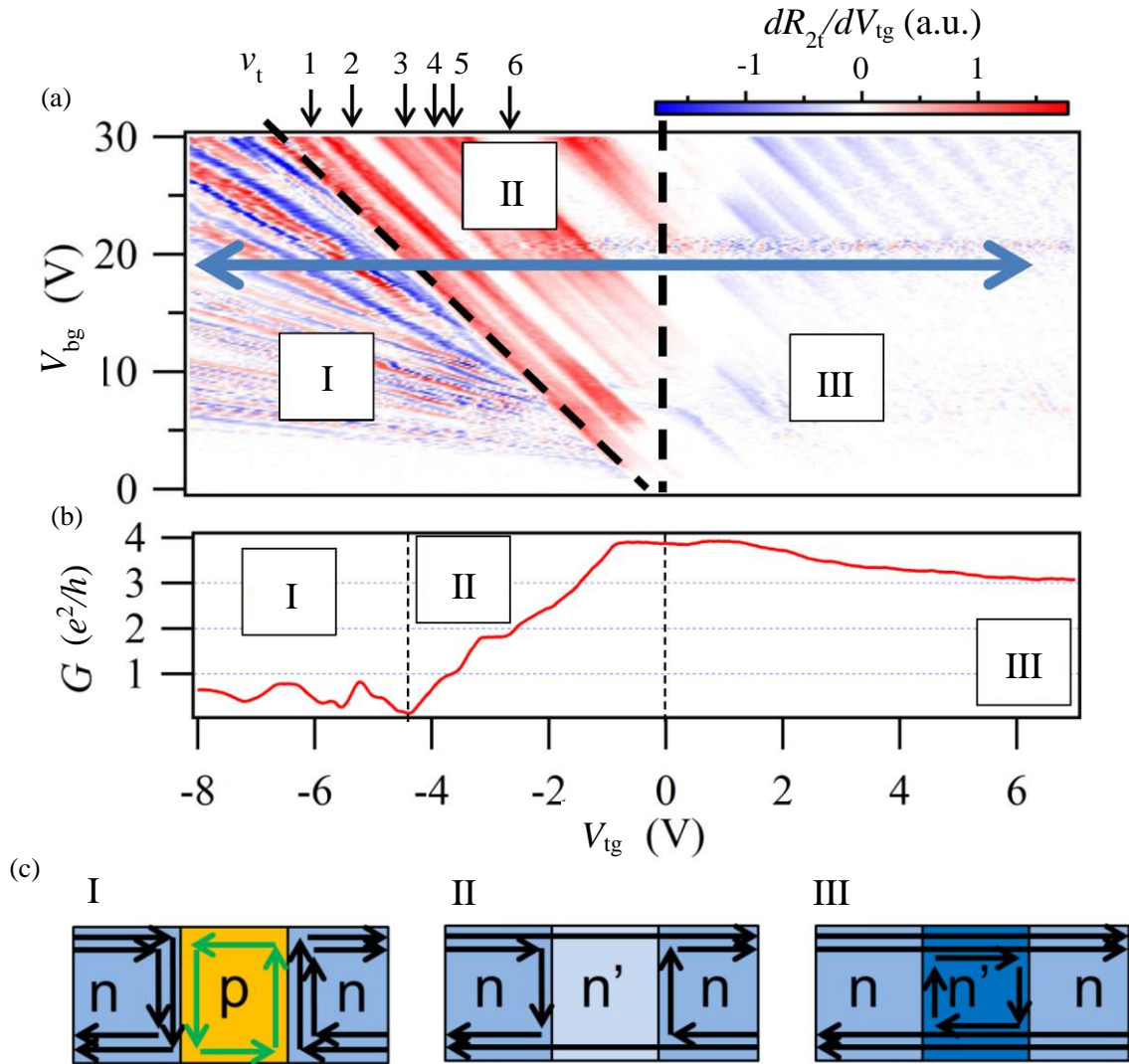


Fig. 5-4  $T = 1.6$  K,  $B = 9$  T における (a)  $dR_{2t}/dV_{tg}$  の  $(V_{bg}, V_{tg})$  平面へのカラープロット (b)  $V_{bg} = 19.3$  V におけるコンダクタンスの  $V_{tg}$  依存性 (c) 実現しているエッジチャネル配置

### 5.3.2 中磁場領域での特異な磁気抵抗振動

このように、従来の平衡分布の描像で説明することができない高移動度 npn 接合の量子ホール伝導を理解するために、今度は  $V_{bg} = 30$  V ( $n_1 = 2.2 \times 10^{12}$  cm $^{-2}$ ),  $T = 1.6$  K に固定したうえで  $(n_2, B)$  平面で二端子抵抗を測定した結果を Fig. 5-5(a),(b) に示す。

まず、(b)のカラープロットは  $n_2$  も正であるために、nn'n 接合が実現している。特に( $n_2 < n_1$ )であることから(5.3)を用いれば二端子抵抗  $R_{2t} = 1/G$  は  $v_t$  によって決まるはずである。(2.5)からフィリングファクター  $v_t$  は  $n_2$  と  $B$  の比によって決まることを考慮すると、 $n_2/B$  の値によって伝導度が決定すると言える。実際、Fig. 5-5(b)から分かるように  $n_2/B$  一定の領域においては伝導度も同じ値を取っており、予想と一致した結果が得られていることが分かる。

これに対して、 $n_2$  が負の領域、つまり npn 接合においては全く異なる結果が観測された。Fig. 5-5(a)から分かるように、中磁場領域(3-8 T 付近)で抵抗値が磁場方向に顕著に振動していることが分かる。また、その振動の等位相面は  $n_2$  を変化させると系統的に場所を変えている。pn 界面で平衡分布が実現していると仮定すると、伝導度は(5.4)で計算されるように、 $v_t$  と  $v_b$  に依存するようになるはずで、( $n_2, B$ )平面内においては Fig. 5-5(c)で表されるようなチェッカーボード模様を示すはずである。しかし今回の振動構造はこのような  $v_t$  や  $v_b$  では全く説明することのできない構造となっている。更に抵抗値のオーダーを比べてみても、(c)の計算値においては最大でも  $20 \text{ k}\Omega (\sim h/e^2)$  のオーダー以下となっているが、Fig. 5-5(a)に示した測定値は  $100 \text{ k}\Omega$  のオーダーに達している。

この結果は、前項でも論じたように、pn 界面において co-propagating なエッジチャンネルが非平衡分布を示すことで接合全体の透過率が落ち、代わりに、従来のエッジチャンネル描像では説明することのできない振動現象を示すような特異な伝導機構が存在することを示唆している。

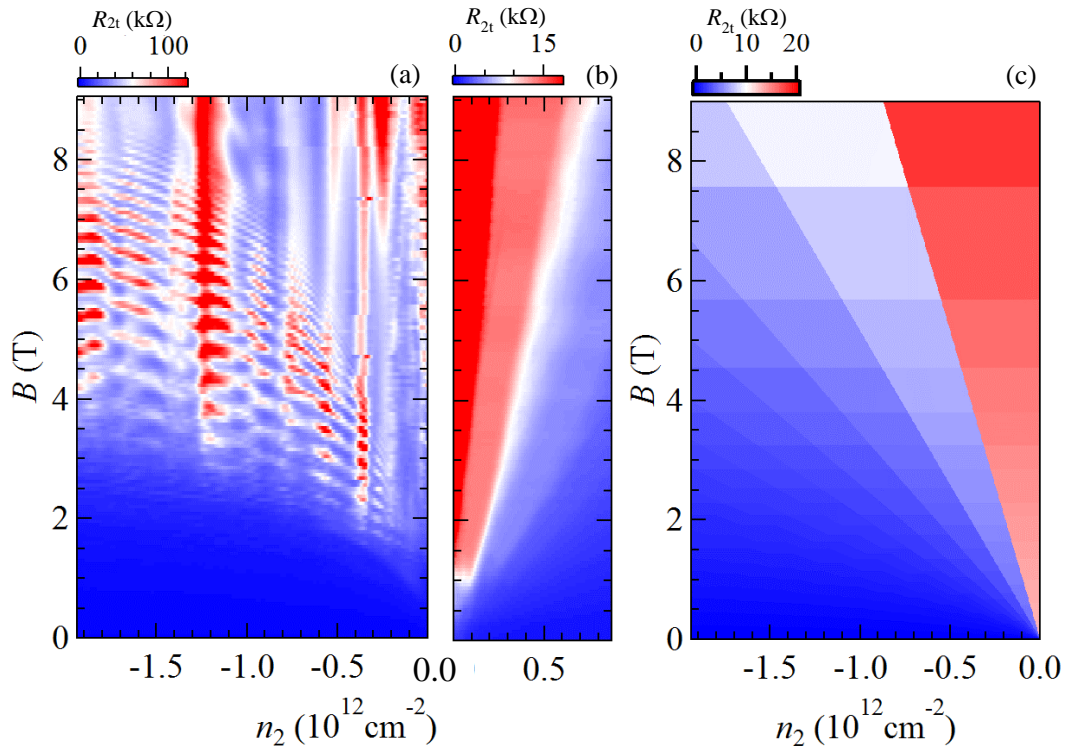


Fig. 5-5 (a),(b)  $T = 1.6 \text{ K}$ ,  $V_{bg} = 30 \text{ V}$  における  $R_{2t}$  の( $n_2, B$ )平面へのカラープロット[(a) npn 接合, (b) nn'n 接合] (c) (5.4)から計算される  $R_{2t} = 1/G$  の( $n_2, B$ )平面へのカラープロット



より詳しくこの結果を見るために、 $V_{bg} = 30 \text{ V}$ ,  $n_2 = -1.7, -1.5, \dots, -0.5 \times 10^{12} \text{ cm}^{-2}$ に固定した  $T = 1.6 \text{ K}$  における磁気抵抗、すなわち Fig. 5-5(a)の磁場方向の line cut を Fig. 5-6 に示す。中磁場領域において抵抗が顕著に振動し、その磁気抵抗の振動領域が  $|n_2|$  が大きくなるにつれ高磁場側に移動してく様子が観測されている。

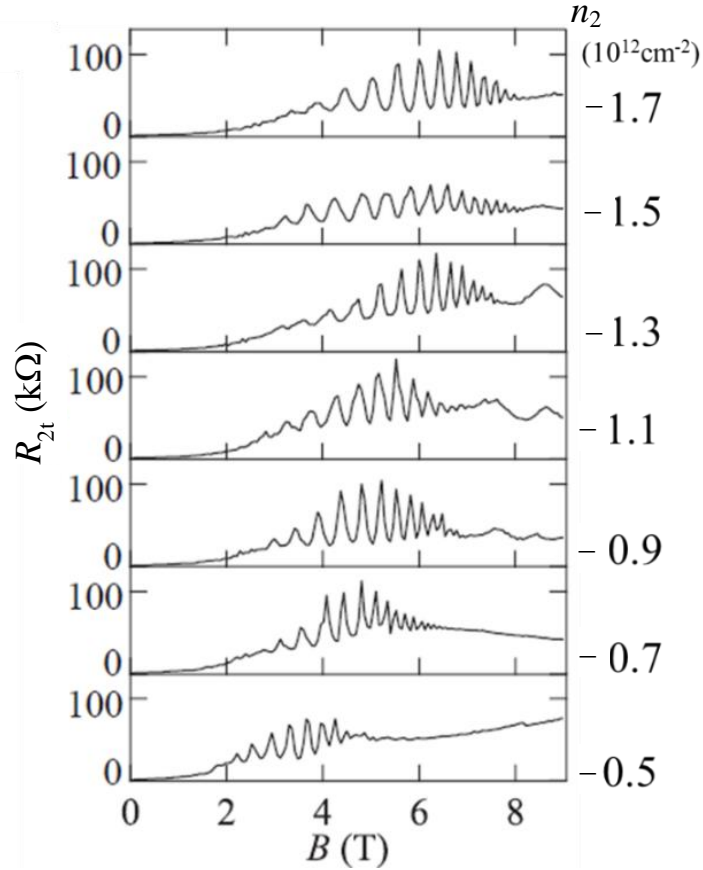


Fig. 5-6 Fig. 5-5 の  $n_2 = -1.7, -1.5, \dots, -0.5 \times 10^{12} \text{ cm}^{-2}$  における  $B$  方向 line cut(top to bottom)

この振動現象の特徴をより詳細に把握するために、振動周期  $\Delta B$  の磁場依存性をプロットした結果が Fig. 5-7(a)である。全てのキャリア密度において振動周期が磁場に対して単調減少している様子が見られる。また、同じ磁場(例えば  $4 \text{ T}$ )において  $\Delta B$  はキャリア密度の絶対値が大きくなるにつれて増加している( $n_2 = -0.5 \times 10^{12} \text{ cm}^{-2}$  では  $\Delta B \sim 0.2 \text{ T}$  だが  $n_2 = -1.7 \times 10^{12} \text{ cm}^{-2}$  では  $\Delta B \sim 0.6 \text{ T}$ )ことも分かる。

磁気抵抗振動現象として Aharonov Bohm(AB)振動が知られているが、通常の AB 振動は磁場に対して振動周期が一定となるはずで、これは今回の実験結果を再現はしていない。振動周期が一定でないという解析結果は、ピークに点線の eye-guide を示した実際の磁気抵抗データからも明瞭に分かる[Fig. 5-7(b)]。一方、もう一つ良く知られている磁気抵抗振動現象に Shubnikov-de Haas(SdH)振動があり、SdH 振動は  $\Delta B$  が磁場に比例し、振動構造を  $1/B$  に対してプロットすることで振動周期が等間隔になることが知られているが、Fig. 5-7(c)から分か



のように、このプロットも今回の実験結果を説明するには至らない。Fig. 5-7(d)に、 $B^2$ に対して今回の磁気抵抗振動現象をプロットした結果を載せるが、このプロットが最も今回の振動ピークを等間隔に表示できる方法であることが分かる。

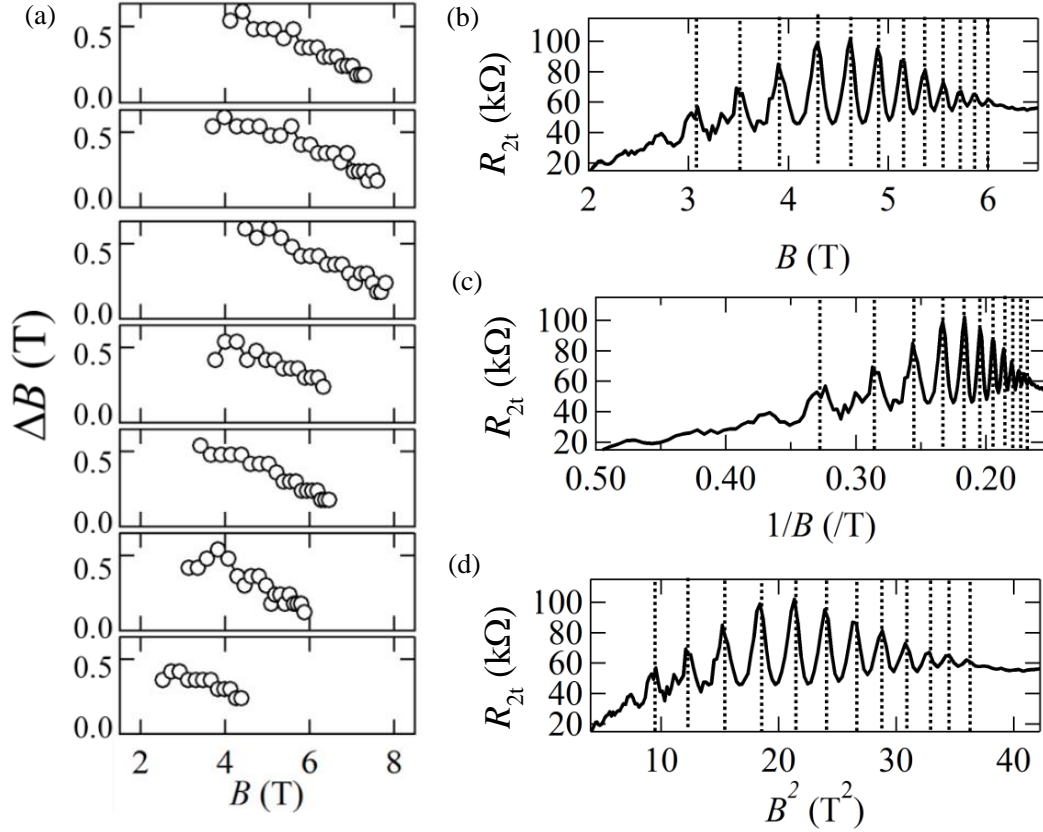


Fig. 5-7 (a) Fig. 5-6 から計算される振動周期 $\Delta B$ の磁場依存性( $n_2 = -1.7, -1.5, \dots, -0.5 \times 10^{12} \text{ cm}^{-2}$ , top to bottom) (b)-(d) ( $n_1, n_2 = (1.5, -1.5) \times 10^{12} \text{ cm}^{-2}$ )における  $R_{2t}$  の磁場依存性を  $x$  軸  $B$  (b),  $1/B$  (c),  $B^2$  (d)としてプロットしたもの

### 5.3.3 キャリア密度変調法に応じた振動構造の変化

2.5.2 で紹介したように、今回利用した素子はグローバルな back gate とローカルな top gate の二種類のゲートにかかる電圧を変化させることで  $n_1$  と  $n_2$  を独立に変調することができる。例えばここまで示したデータは  $V_{bg}$  を 30 V に固定して  $V_{tg}$  を変化させる測定を行うことで、 $n_1 = 2.2 \times 10^{12} \text{ cm}^{-2}$  を維持しながら  $n_2$  を変化させた結果になっていたが、その他の  $n_1, n_2$  の変調の仕方も原理的には可能である。

今回、( $V_{bg}, V_{tg}$ )平面上で Fig. 5-8(f)に示すような様々なゲート電圧の変調法を試みた。(a)-(c)においては  $V_{bg}$  を固定して  $V_{tg}$  を変化させ( $n_1$  を固定して  $n_2$  を変調させることに対応する)、(d)においては  $V_{tg}$  を固定して  $V_{bg}$  を変化させ( $n_1 - n_2$  が一定となるように  $n_1, n_2$  を変調させることに対応する)。(e)においては  $V_{bg}, V_{tg}$  両方を変化させることで  $n_2$  を固定して  $n_1$  を変調さ

せる測定を行った。

このようなキャリア密度の変調法に対してそれぞれ  $B$  も変化させながら  $T = 1.6 \text{ K}$  で二端子抵抗を測定した結果が Fig. 5-8(a)-(e)である。抵抗振動が見られている磁場の領域や振動構造の形状などが、キャリア密度の変調法に応じて顕著に変化している様子が見られる。例えば(a)から(c)に変化させていくと( $n_1$ を大きくしていくと)、振動が見られる磁場が少しずつ高磁場側に移動していることが分かる。振動構造の形状という観点から見ると、(a)では  $n_2$  軸に対して平行方向に振動構造が見えているのに対して、(b), (c)は右肩下がり、(d)はピーク構造、(e)は右肩上がりの形状となっていることが分かる。キャリア密度変調の方法、つまり pn 界面におけるポテンシャル形状の変化の仕方、に応じて振動構造の様子が変化するという結果が観測されていることになる。

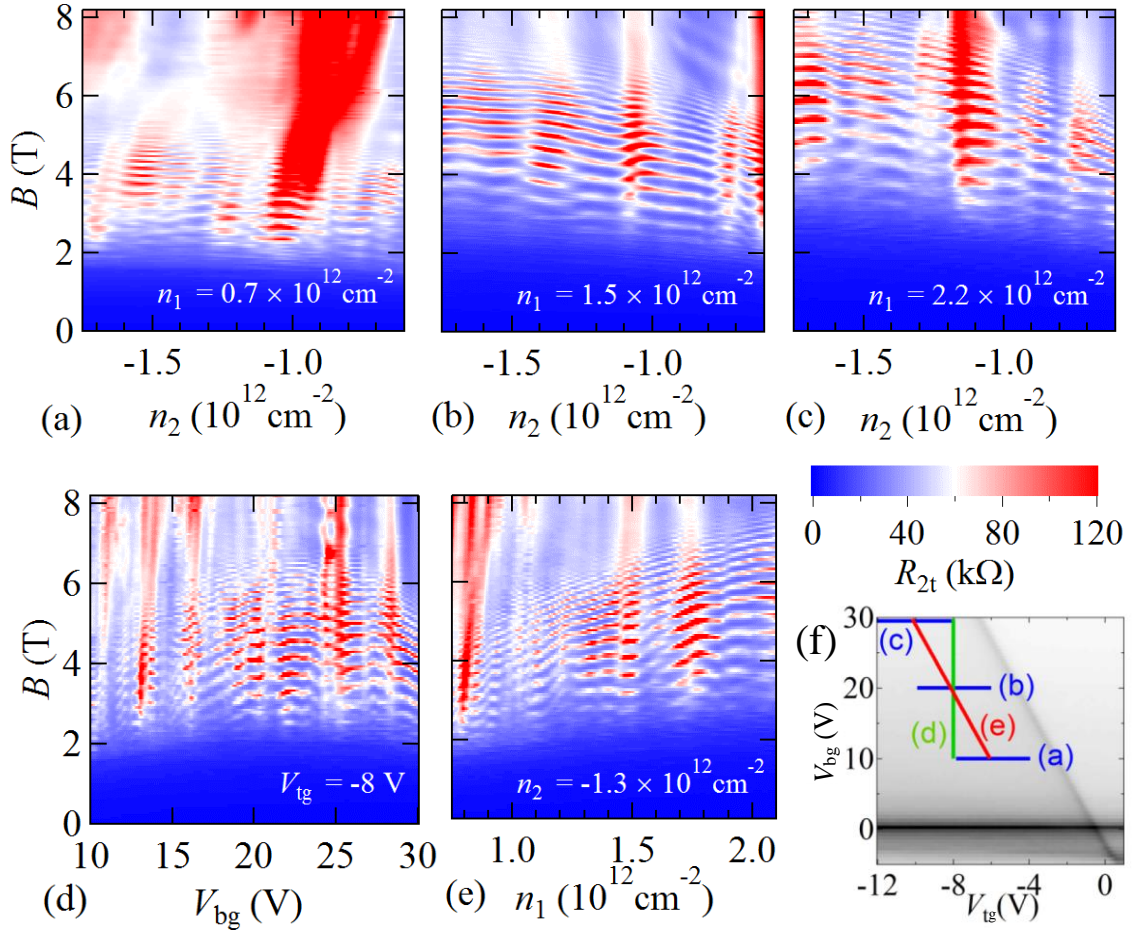


Fig. 5-8  $T = 1.6 \text{ K}$  における (a)-(c)  $n_1 = (0.7, 1.5, 2.2) \times 10^{12} \text{ cm}^{-2}$  における  $R_{2t}$  の  $(n_2, B)$  平面へのカラープロット (d)  $V_{tg} = -8 \text{ V}$  における  $R_{2t}$  の  $(V_{bg}, B)$  平面へのカラープロット (e)  $n_2 = -1.3 \times 10^{12} \text{ cm}^{-2}$  における  $R_{2t}$  の  $(n_1, B)$  平面へのカラープロット (f)  $R_{2t}$  の  $(V_{tg}, V_{bg})$  平面へのカラープロットと(a)-(e)の  $x$  軸に対応するゲート変調法

### 5.3.4 再現性の確認

この磁気抵抗振動現象の再現性を確認するために、Fig. 5-9(a)に示すような局所ゲート構造を有する素子を作製し、npn 接合において同様の測定を行った。今回作製した素子は、ここまで本節で扱ってきた素子とは異なり 2.3.2 スタンプング法+1 次元コンタクト法を用いて作製している。そのため、チャネル端からグラフェンが一次元的に露出していることから、top gate 電極もこの部分でチャネルと物理的に接触した状況になっている。この接触部からのゲートリークを可能な限り防ぐために、今回の素子においては top gate の金属に Al(30 nm)/Au(50 nm)構造を利用した。Al はグラフェンと物理的に接触していても、ある程度の電圧までは絶縁が保たれてゲートとして機能することが知られており<sup>167</sup>、今回の素子においても 3 V 程度までゲートリークなしに電圧を印可することができた。

Fig. 5-9(b)に四端子抵抗  $R_{4t}$ (電流端子 A,D・電圧端子 B,C)の  $T = 1.6$  K における( $V_{bg}$ ,  $V_{tg}$ )依存性をカラープロットで示すが、npn 領域においてここまでの素子同様に明瞭な Fabry-Perot 干渉が観測されており、高品質の接合が作製できていることが分かる。Fig. 5-9 (c)に  $V_{bg} = -8$  V,  $T = 1.6$  K における  $R_{4t}$ の( $V_{tg}$ ,  $B$ )依存性を示す。 $V_{tg}$ に印加できる電圧が小さいために、前述の素子による結果と比べて、高キャリア密度を誘起することができず低磁場での観測となっているが、明瞭に磁気抵抗振動現象の観測ができていることが分かる。特に、振動周期が磁場に対して単調減少しているという本振動の特徴が良く再現されている。この結果から、高移動度の npn(npn)接合を作製することで、振動周期が磁場に対して単調減少する特異な磁気抵抗振動現象を、再現性良く観測できることが分かった。

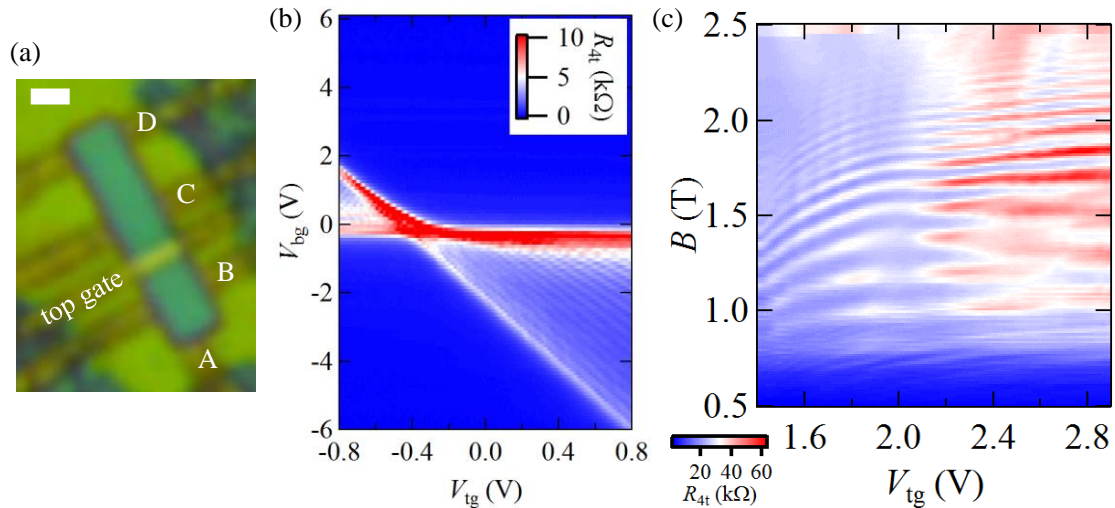


Fig. 5-9 (a) 素子光学顕微鏡像(スケールバー : 1  $\mu$ m) (b),(c)  $T = 1.6$  K での  $R_{4t}$  の  $B = 0$  T における( $V_{tg}$ ,  $V_{bg}$ )依存性(b)および  $V_{bg} = -8$  V における( $V_{tg}$ ,  $B$ )依存性(c)

## 5.4 エッジチャネル干渉モデル

### 5.4.1 概要

本節では、この特異な磁気抵抗振動現象を pn 界面に存在する co-propagating なエッジチャネル間の干渉モデルで説明する。まずこのエッジチャネルが非平衡分布を示しているという結果から、co-propagating エッジチャネルの間には  $\nu=0$  に対応する量子ホール絶縁領域が存在することが分かる。この領域によって p 型由来のエッジチャネルと n 型由来のエッジチャネルが分離し、二つのカップリングが極めて抑制されていると考えられる。一方で、完全に分離してしまうと片方のエッジチャネルに沿って伝導していたキャリアはもう一方の領域に透過することはできず、透過率はゼロになってしまう。有限の伝導度を示すためには、この co-propagating エッジチャネルは界面のどこかで緩和を起こしているはずである。今回、試料の端においてこの緩和が起こっていると仮定し、Fig. 5-10 のような経路で電子が伝搬する状況を考える。するとこの経路が及ぼす干渉を考えることで、実験結果が良く説明できることが分かった。詳細な定性的・定量的議論を次項から示していく。

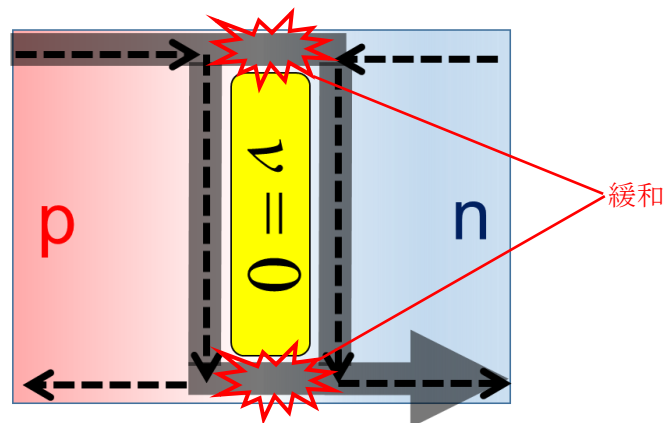


Fig. 5-10 本モデルで仮定したエッジチャネル干渉経路

試料端においてのみ緩和するという仮定の物理的なメカニズムについては、現在のところ明確な理解には至っていないが、

- ・試料端では 2.4.3 で論じたようなゲートによる電界の集中が起こるために  $\nu = 0$  の領域が細くなり [Fig. 5-11(a)] 緩和が促進されうる
  - ・理論的に予測されている [Fig. 5-11(b)] ように試料端においてはエッジチャネル間の inter-valley 散乱<sup>168</sup> が起こりうる
  - ・試料端にはエッジラフネスやエッジ構造が存在するためそれに起因するトンネルが起こりうる
- 等の要因が考えられる。

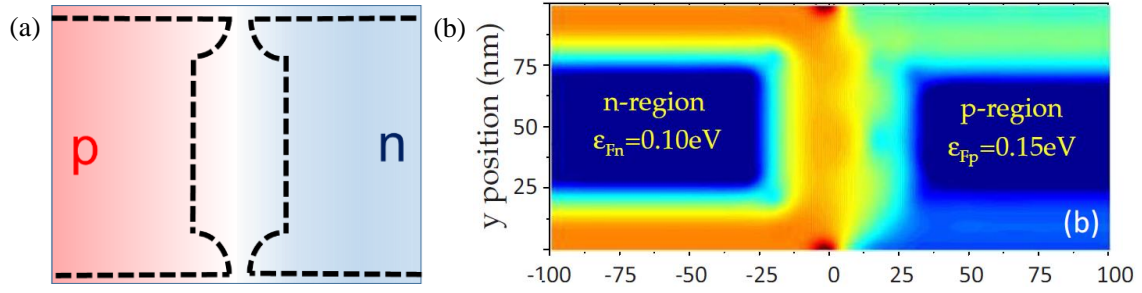


Fig. 5-11 (a)電界集中による試料端での  $\nu=0$  領域の狭窄 (b) Low らが提案した pn 界面における試料端での inter-valley 散乱<sup>168</sup>

#### 5.4.2 実験結果との定性的な比較

ここからは Fig. 5-10 で示したような干渉経路の存在を仮定して議論を行う。この干渉経路で重要な点は、系に面直に磁場が加わっていることから、二つの経路が囲む部分(面積  $S$ )に磁束  $\Phi$  が貫いていることである。このような系においては、1.1.3 で紹介したような  $\Phi$  によって干渉条件が決定する Aharonov-Bohm(AB)干渉が生じることが知られている。具体的には、

$$\Phi = BS = N \frac{h}{e} \quad (5.6)$$

において干渉が強め合うことが知られており( $N$ : 整数)、一つの強め合いから次の強め合いまでの磁気抵抗振動の周期は、

$$\Delta B = \frac{h}{e S} \quad (5.7)$$

と計算できる。5.3.2 で「AB 振動は  $\Delta B$  が磁場に依らず一定の値をとる」と述べたが、これは、通常  $S$  は試料の形に依存して一定値を取るために、その仮定と(5.7)から導かれた結果である。

しかし、今回考慮する干渉計が通常の AB 干渉計と異なる点は、この  $S$  が以下のように磁場やキャリア密度プロファイルに応じて変化し、 $\Delta B$  も可変になるという点である。まず  $\nu = 0$  量子ホール絶縁領域がフィリングファクター  $-\nu_c < \nu < \nu_c$  の領域に存在すると仮定すると(詳細は 5.5.5 で論ずる)、キャリア密度にして

$$-\frac{\nu_c Be}{h} < n < \frac{\nu_c Be}{h} \quad (5.8)$$

の領域が  $S$  に対応するようになる。このため、Fig. 5-12(a)のように磁場を大きくしていくと  $S$  も大きくなることが分かる。一方で、ゲート電圧制御によって  $n_1$  や  $n_2$  の絶対値が大きくなっていくと、キャリア密度分布が急峻になるために Fig. 5-12(b)のように(5.8)を満たす領域  $S$  は小さくなることが分かる。



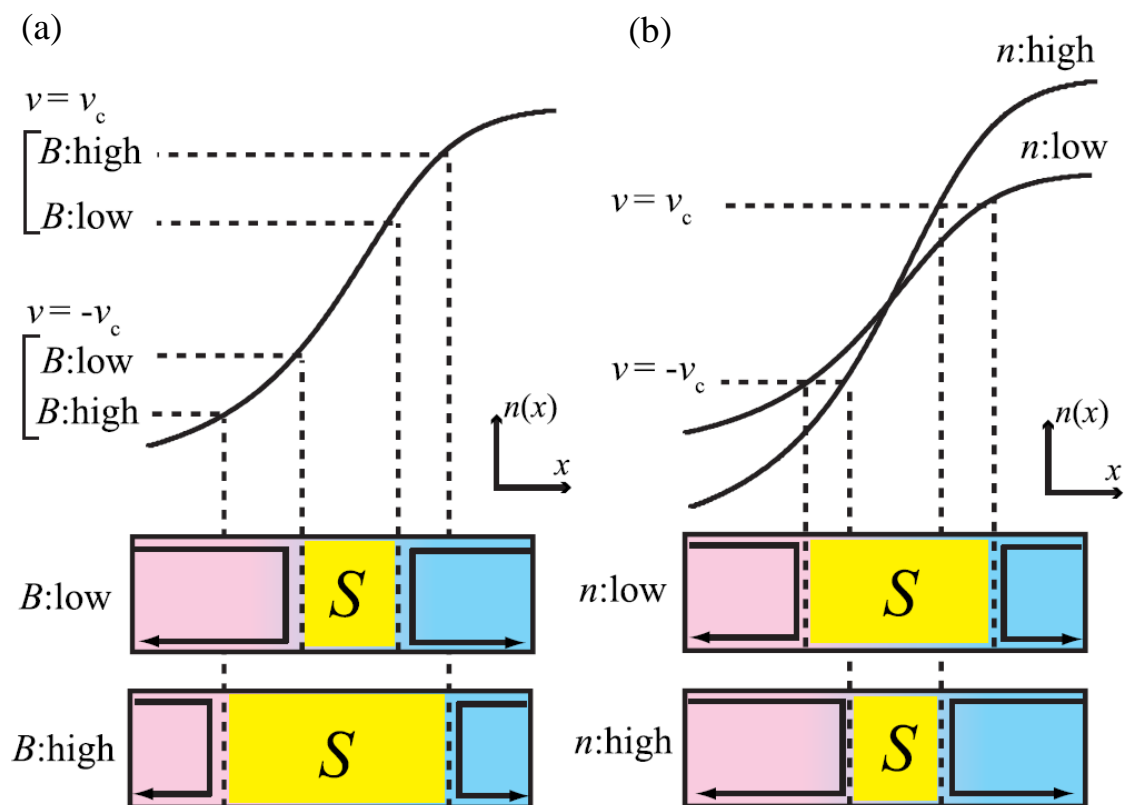


Fig. 5-12 pn 界面におけるキャリア密度分布によって決定するエッジチャネルの場所と  $S$  の磁場依存性(a)およびキャリア密度依存性(b)の定性的説明

これらの結果を(5.7)に当てはめると、 $\Delta B$  は磁場に対して単調減少し  $n_1$  や  $n_2$  に対して単調増加するはずだが、この予測は Fig. 5-7(a)の  $\Delta B$  の定性的な振る舞いとよく一致している。このように変動する  $S$  でスケーリングした AB 効果を考えることで、今回の振動現象を説明しうることが分かる。

### 5.4.3 $S$ の見積もり

Fig. 5-12 の議論からも分かるように、より定量的にこの干渉モデルを議論するためには、界面におけるキャリア密度分布を見積もる必要がある。そこで、4.7.1 と同様に有限要素法シミュレーションソフトを利用して、電界分布を計算した。実際に利用した厚さ  $\sim 50$  nm の h-BN を仮定して得られた電界分布の計算結果が Fig. 5-13(a)であり、これを基に pn 界面におけるキャリア密度分布を計算した結果が(b)である。更にここから、(5.8)を満たすような領域の面積  $S$  を計算すると、最終的に(c)のような  $S$  のキャリア密度・磁場依存性を求めることができる(Fig. 5-8(c)-(e)の状況に対応させて計算を実装している)。ここで、本シミュレーションの唯一のフィッティングパラメータとして  $v_c$  があるが、今回は以降で実験と計算が

よく一致するように  $\nu_c = 0.35$  を利用した(詳細は 5.5.5 で論ずる)。

確かに、5.4.2 で定性的に予測した通り、 $S$  は磁場に対しては単調に増加し、 $|n_1|$  や  $|n_2|$  に対しては単調に減少していることが分かる。また  $S \sim 10^4 \text{ nm}^2$  を(5.7)に代入すると  $\Delta B =$  数百 mT のオーダーになり、Fig. 5-7(a)に示した  $\Delta B$  のオーダーと良い一致を示していることから、今回の実験結果を良く再現できることが示唆される。

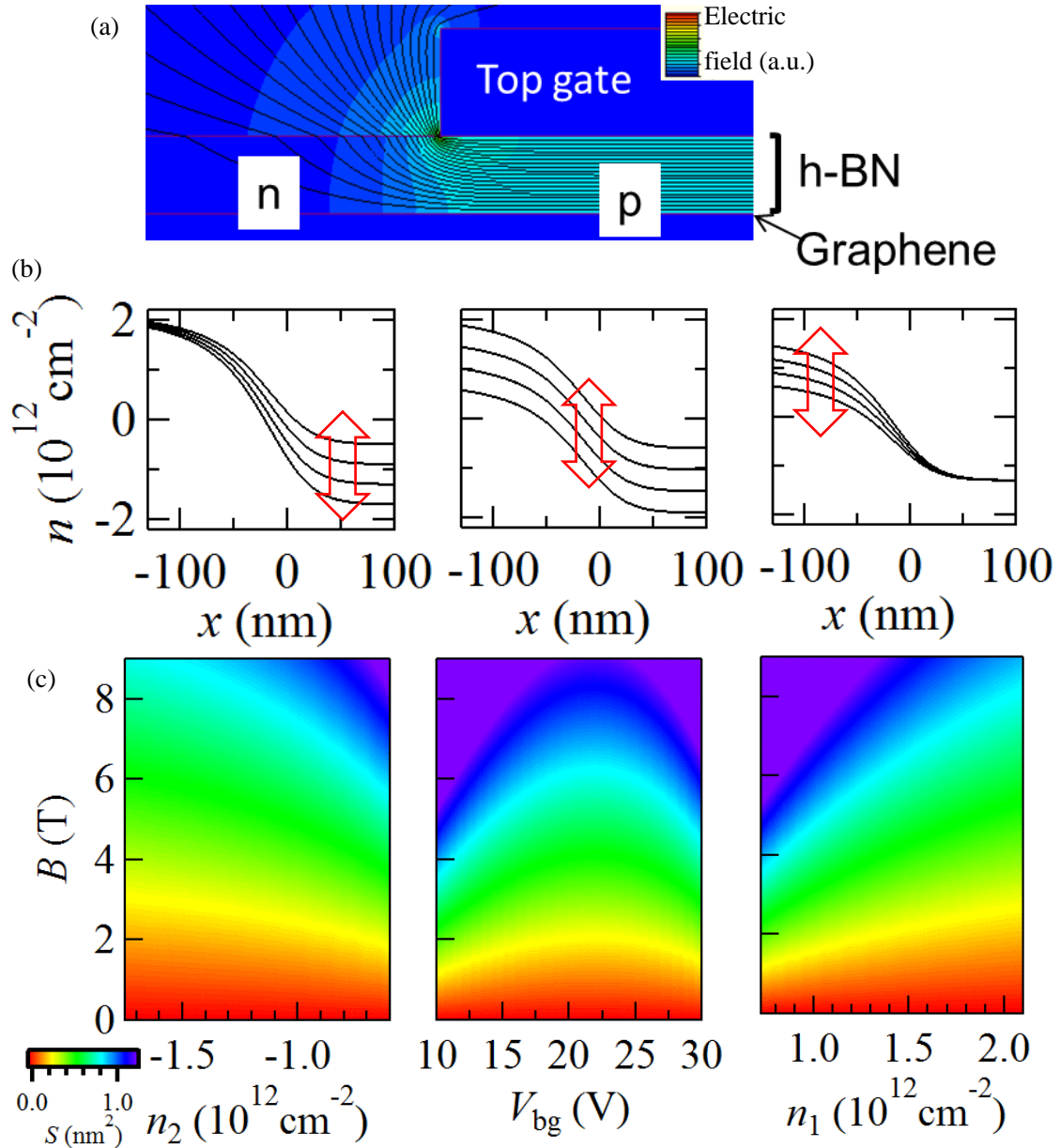


Fig. 5-13 電界シミュレーションから計算された (a) 電界空間分布のカラープロット (b),(c) np 界面における(b)キャリア密度分布(赤矢印：実験的に変化させている領域) と (c)そこから計算される  $S$  のカラープロット(左から Fig. 5-8(c)-(e)の実験状況に対応)



#### 5.4.4 AB 干渉条件のもとでの実験結果と計算結果の整合

以上の結果から、 $S$  は  $B$  に対して単調増加していることが分かる。特に Fig. 5-12(a)から分かるように、 $n(x)$  が  $x$  に対して線形で近似できる場合は、 $S$  は  $B$  に対して比例関係をとるはずである。この時、 $\Phi = BS \propto B^2$  となることから、 $\Phi$  を一定量だけ増加させようとした場合  $B^2$  を一定量だけ増加させれば良い、ということが分かる。この結果は、Fig. 5-7 で  $B^2$  に対して磁気抵抗振動をプロットしたときに、等間隔にピークがプロットできたことと関連があると予測できる。

そこで、この計算した  $S$  を用いて、実際に(5.6)が成立する領域を計算したのが Fig. 5-14 右パネルになる( $N=1, 2, \dots, 22$  が成立する領域を計算している)。比較用に対応する Fig. 5-8 の実験結果を左パネルに示す。磁場方向の振動周期や振動の等位相面の動き((a) $x$  軸平行, (b)(c) 右肩下がり, (d)ピーク構造, (e)右肩上がり)など非常に良く実験の振動構造を再現できていることが分かる。この一致から、今回の実験結果が、 $\nu = 0$  量子ホール絶縁領域を貫く磁束でスケールされる AB 干渉で極めて良く説明できることが分かる。グラフェン量子ホールエッジチャネルを用いた干渉計の初めての報告、特に、Fig. 5-10 で示すようにグラフェン pn 界面において天然に形成される干渉計の存在を示唆した実験結果である。

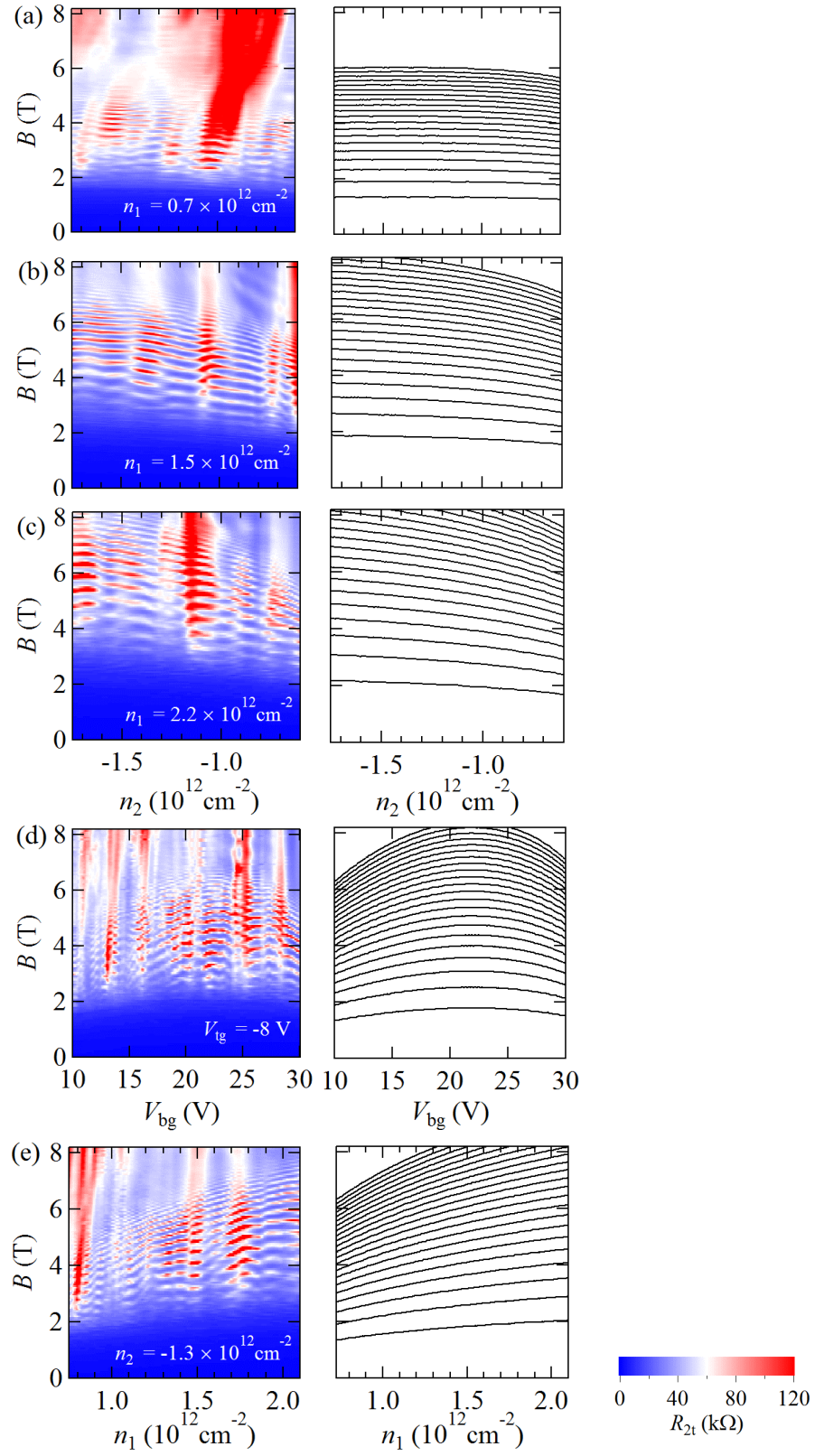


Fig. 5-14 (左) Fig. 5-8(a)-(e)の実験結果再掲 (右) 実験結果に対応する状況で(5.6)が成立する領域の計算結果(下から  $N = 1, 2, \dots, 22$ )

#### 5.4.5 変動する $S$ を囲むエッジチャネル干渉計

このようにエッジチャネルで囲まれた面積  $S$  が変動することによって  $\Delta B$  が変化するようなエッジチャネル干渉計については、今回の実験結果の観測と同時期に Stegmann らが存在を示唆する計算を行っていた<sup>169</sup>。

彼らは Fig. 5-15 (a) の inset に示すような系において Hall 抵抗の強磁場における計算結果を第一原理的に求め、強磁場量子ホール領域において Fig. 5-15 (a) に示すように磁気抵抗が顕著に振動し、その周期が磁場に対して単調減少することを予測した。この結果は Fig. 5-15(b) のように試料端を伝導する二本のエッジチャネルの間を貫く磁束に (5.6) の Aharonov-Bohm 干渉条件を課すことによって説明可能であると議論されており、さらにこの磁束が貫く面積は磁場と試料端における閉じ込めポテンシャルの形状に依存していることも明らかにされている。振動周期が磁場に対して単調減少している点や  $S$  の磁場・ポテンシャル形状依存性など、今回の実験結果・解釈に類似する点が多く、今回紹介したエッジチャネル干渉モデルをサポートする計算結果と言えるだろう。

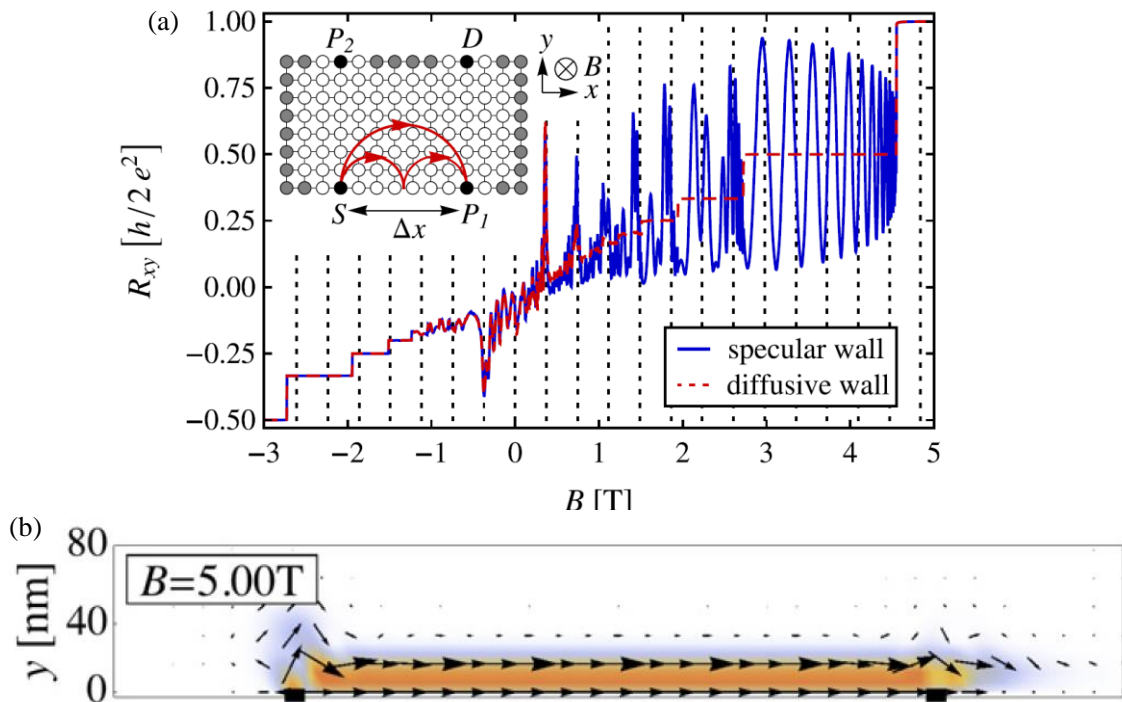


Fig. 5-15 (a) 量子ホール領域で予測される振動周期が単調減少する磁気抵抗振動 (b)干渉に寄与する二本のエッジチャネル<sup>169</sup>

### 5.5 考察 ～Support data と Open questions～

最後に、ここまで論じてきた干渉モデルをサポートする他のデータを紹介すると同時に、未だ完全な理解に至っておらず、将来より深く議論していくべきポイントをまとめる。

### 5.5.1 振動現象が観測される磁場領域

ここまでの観測結果から分かるように、今回議論している磁気抵抗の振動現象は全て中磁場領域で観測されること、つまりある磁場から振動が始まりある磁場で振動が見えなくなっていることが分かる。また、5.3.2 でも議論したように、キャリア密度を変える、つまり pn 界面におけるポテンシャル分布を変えることによって、振動が見える磁場領域も変化していることが分かる。

この磁場領域が物理的にどのような意味を有しているかは未だ完全な理解には至っていないが、今回注目している co-propagating なエッジチャネル間の距離  $L$  がこの磁場領域と相関を持っていることが分かった。具体的には、以下の Fig. 5-16 のように、 $L$  が 1.3 nm となる時と 4.1 nm となる時を矢印で示すと、全てのキャリア密度において、振動が見え始める磁場領域と振動が見えなくなる磁場領域を良く再現していることが分かった。

ここまで議論してきたように、今回の実験結果は、二つのエッジチャネルが「試料端でのみトンネル過程でカップル」することにより生じるものと解釈されている。そのため、過度に  $L$  が小さすぎると、二つのエッジチャネルが空間的に分離しきれず、そもそも試料端ではなくバルク部分でもカップリングが起こってしまい不適切である。逆に  $L$  が大きすぎると、試料端でさえもほとんどカップルすることができず干渉計を形成することができないだろう。つまり、「適正」なエッジチャネル間距離でのみ、干渉計が形成されて抵抗振動の観測が可能になるために、中磁場領域でしか振動が観測できない、と考えることができる。

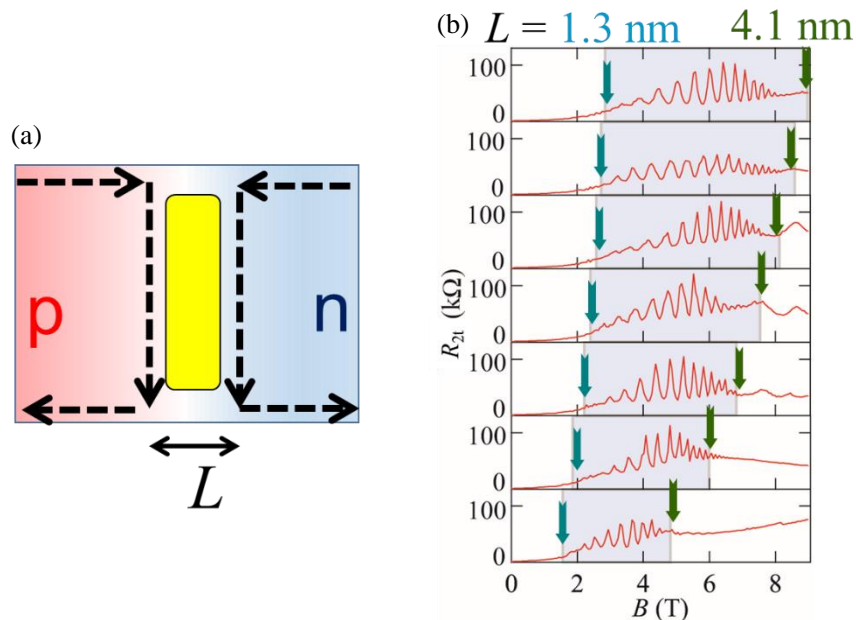


Fig. 5-16 エッジチャネル間距離  $L$ (a)のデータ(Fig. 5-6 の再掲)との相関(b)

### 5.5.2 Checker-board パターンとエッジ速度

干渉計が形成されていることを示唆するもう一つの根拠として DC 電圧依存性を示す。Fig. 5-17(a)は、微分コンダクタンス  $dI/dV$  を  $T = 1.6$  K において DC 電圧  $V_{dc}$  と磁場の関数としてカラープロットしたものである。DC 電圧に 100 mV の AC 電圧を重畳させながらロックイン測定で  $dI/dV$  を測定する AC+DC 測定を行っている。このプロットから明瞭なチェッカーボード模様が観測されていることが分かる。磁場方向の振動現象はここまで論じてきた磁気抵抗の振動現象であるが、今回特徴的なのは、 $V_{dc}$  の関数としても振動現象が見られることである。Fig. 5-17(b)に  $B = 4.8$  T でのコンダクタンスの  $V_{dc}$  依存を載せるが、確かに顕著な振動が見られている。この結果は、他の半導体二次元電子系におけるエッジチャネル干渉計の実験においても観測されている結果であり<sup>70</sup>、以下のように説明することができる。

DC 電圧  $V_{dc}$  を加えるということは、界面の片方のフェルミエネルギーをもう片方のエネルギーよりも  $eV_{dc}$  だけ上昇させることに対応し、これにより co-propagating なエッジチャネル同士には

$$\Delta k = \frac{eV_{dc}}{\hbar v_e} \quad (5.9)$$

だけ波数に違いが生じる。ここで  $v_e$  はエッジ速度である。この波数の違いが、AB 位相以外に新たな位相差を生み出し、コンダクタンスに振動現象を生じさせると考えることができる。

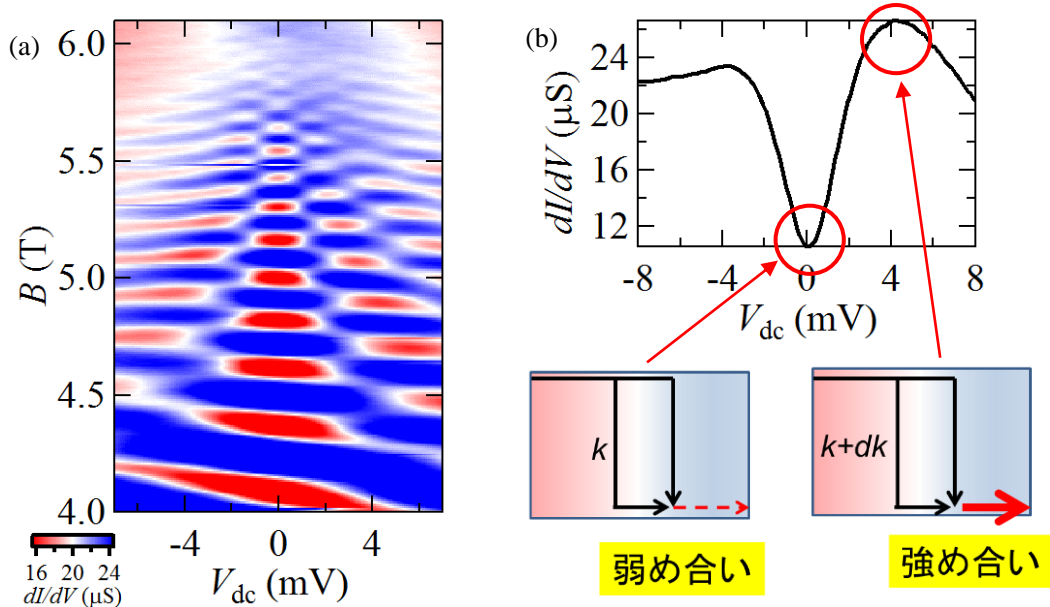


Fig. 5-17 (a)  $T = 1.6$  K,  $(n_1, n_2) = (1.1, -2.5) \times 10^{12} \text{ cm}^{-2}$  における微分コンダクタンス  $dI/dV$  の  $(V_{dc}, B)$  平面へのカラープロット (b) (a) の  $B = 4.8$  T における line cut および dip と peak における干渉模式図

逆に、この  $V_{dc}$  方向の振動周期から(5.9)の  $v_e$  を計算できるとも言える。具体的には、どれだけの  $\Delta V_{dc}$  加えると干渉位相  $2\pi$  が加わり振動周期が一周するかを考えればよいので、試料幅  $W = 1900 \text{ nm}$  を用いると、

$$\frac{e\Delta V_{dc}}{\hbar v_e} W = 2\pi \rightarrow v_e = \frac{eW\Delta V_{dc}}{2\pi\hbar} \quad (5.10)$$

と計算できることが分かる。この式を用いて  $v_e$  を計算した結果は下図であり、グラフェン量子ホールエッジ速度の初めての実験的な見積もり結果と言える。磁場に対して単調減少する傾向は半導体二次元電子系の実験と定性的に一致しており<sup>70</sup>、この傾向は次項で出てくる温度依存性に対する議論にも利用することができる。

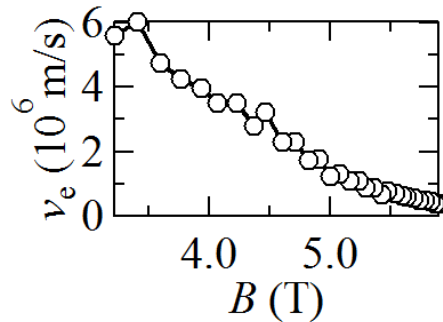


Fig. 5-18 Fig. 5-17 から計算される  $v_e$  の磁場依存性

### 5.5.3 温度依存性

Fig. 5-19 は今回論じている振動現象の温度依存性である。温度を上げてくと振動振幅が減衰していくが、80 K 付近まで振動現象が観測できていることが分かり、極めて熱的にロバストな振動現象であることが分かる。

通常の電子波の干渉において議論される(2.16)のような熱波長のみを考えると、80 K においては 100 nm 程度電子波が進行するだけでコヒーレンスが失われてしまい、干渉効果を観測することは不可能なはずである。グラフェンのエッジチャネルにおける熱波長の見積もり方法、特に(2.16)中の  $v_F$  の見積もりに関しては再考が必要と言える。

たとえば、前項で計算したエッジ速度  $v_e$  をフェルミ速度  $v_F$  の代わりに利用することで熱波長を計算するという方法が考えられる。この場合、 $v_e$  は磁場に対して単調減少の関数となっていることから、磁場を加えると熱波長が短くなると予測できる。実際高磁場では高温において振動が観測されづらくなっているという実験結果[Fig. 5-19]と、この議論は整合している。また、 $v_e$  は低磁場において  $v_F = 1 \times 10^6 \text{ m/s}$  よりも数倍程度大きいために、80 K においても熱波長が 1  $\mu\text{m}$  弱のオーダーに達することが分かる。試料幅  $W = 1900 \text{ nm}$  には未だ少し及ばないが、オーダーは一致していることから、比較的良好な熱波長の見積もりと捉えることができる。これらの点に関しては、今後より実験・理論両面から深く議論していく必要があるだろう。



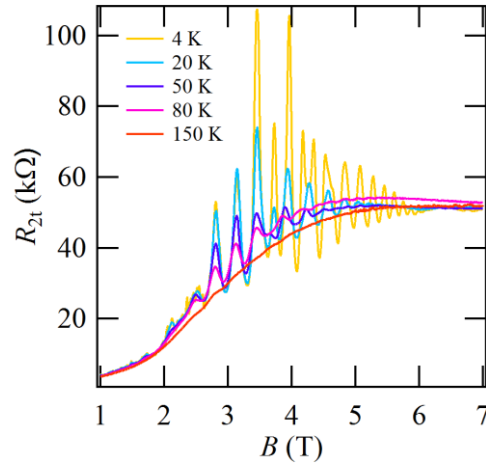


Fig. 5-19  $V_{bg} = 20$  V,  $V_{tg} = -8.7$  V,  $T = 4, 20, 50, 80, 150$  K における  $R_{2t}$  の磁場依存性

#### 5.5.4 キャリア密度方向の抵抗振動と位相シフト

強磁場領域( $B = 9$  T)において、二端子抵抗の  $n_2$  依存性を  $n_1 = 1.5 \times 10^{12} \text{ cm}^{-2}$ ,  $T = 1.6$  K においてプロットしたものが Fig. 5-20(b)である。顕著な振動現象が観測されていることが分かる。この振動は  $R_{2t}$  の  $(n_2, B)$  平面へのカラープロット[Fig. 5-20(a)]において  $B$  軸平行方向の縞模様として観測されている振動であり、ここまで議論してきた磁気抵抗振動とは異なる振動である。しかし、この抵抗振動は磁気抵抗振動と興味深い相関を持っていることも分かる。Fig. 5-20(c)は磁気抵抗振動とキャリア密度方向の振動が交差している点を拡大したものであるが、この交差点において磁気抵抗振動の位相が明瞭にシフトしている。

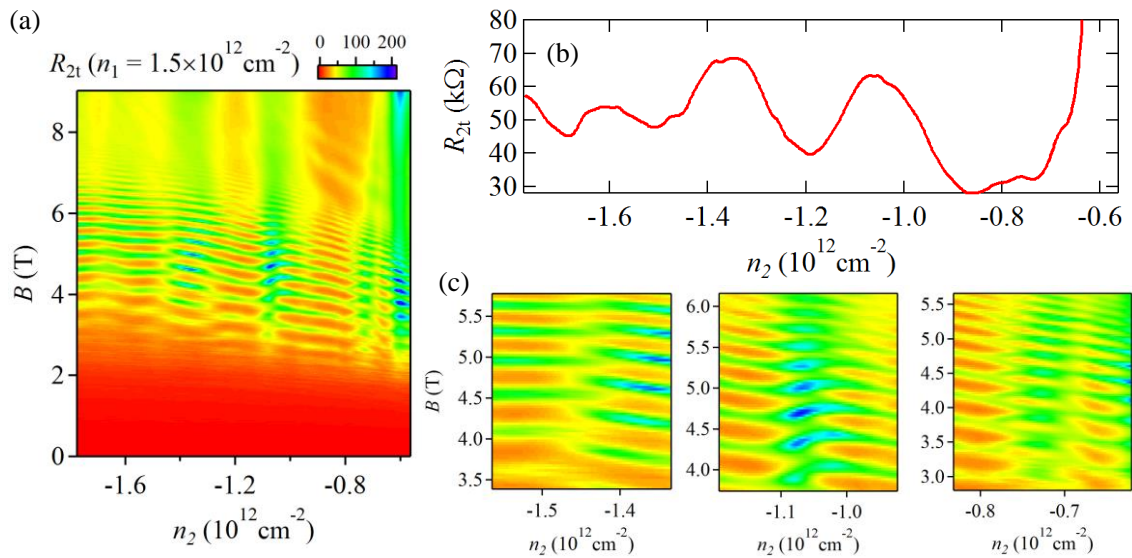


Fig. 5-20  $T = 1.6$  K,  $V_{bg} = 20$  V における  $R_{2t}$  の (a)  $(n_2, B)$  平面へのカラープロット (b) (a) の  $B = 9$  T における  $n_2$  方向の line cut (c) (a) の拡大図



位相シフトの物理的起源は現在のところ明らかでないが、似たような現象は Aharonov-Bohm 干渉+量子ドットの系においても観測されている[Fig. 5-21(a)-(c)]<sup>58-61,64,65</sup>。具体的には量子ドットを干渉計の中に埋め込んだ時、AB 干渉由来の磁気抵抗振動と量子ドット由来のゲート電圧方向のクーロン振動が交差している点において、AB 振動が位相シフトを起こすという現象である。この現象は、量子ドットを介して電子がトンネルするときに、電子がシフト分だけ位相を得るという結果を示しており、量子ドットにおける電子の位相の変化過程を観測する実験として注目を集めたものである。

今回の系においても、既に議論したように、エッジチャネルの AB 干渉計が形成されていることが示唆されており、更に、試料端において絶縁領域をキャリアがトンネルするという仮定を用いている。もしこのモデルが正当なものであるならば、絶縁領域にトンネル過程を及ぼす量子ドットのようなものが存在している可能性があり[Fig. 5-21(d)]、先行研究と同様に AB 干渉計+量子ドットの系が形成されていると言える。つまり、今回観測された位相シフトと先行研究で観測されたものが同様の現象を観測している可能性が示唆され、より詳細な考察や実験によってグラフェン pn 接合量子ホール系における電子のトンネル過程の位相情報についてより議論を深めることができる系とも言える。

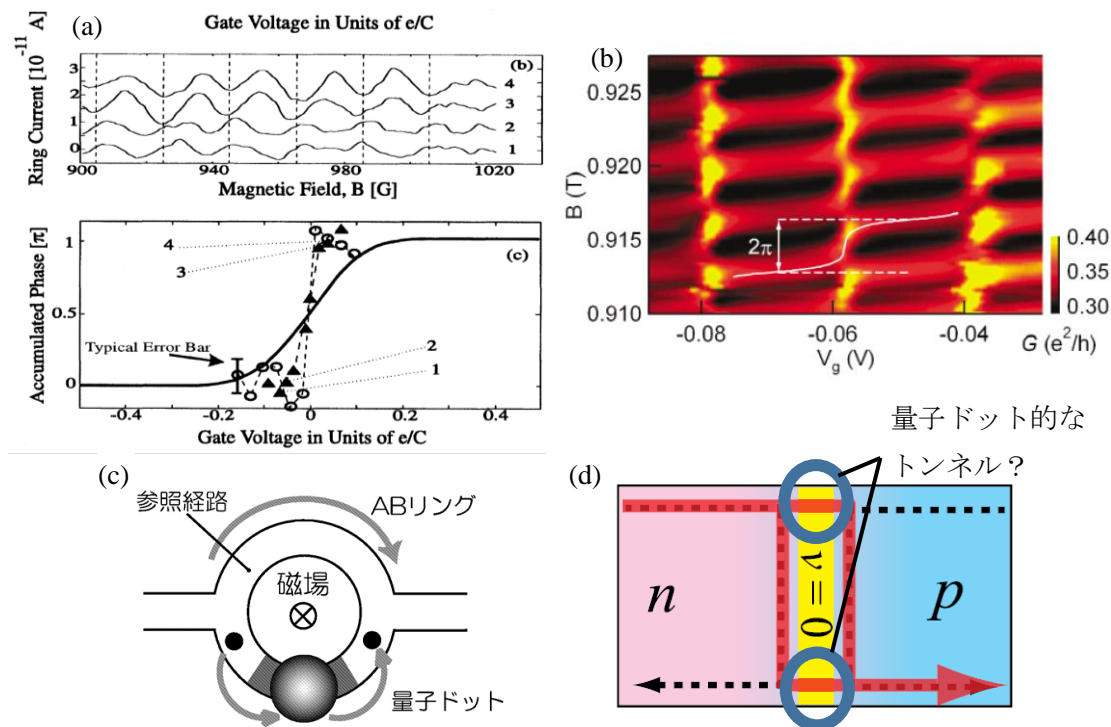


Fig. 5-21 AB 振動の位相シフト (a) Yacoby らが観測した $\pi$ シフト<sup>58</sup> および (b) Kobayashi らが観測した $2\pi$ シフト<sup>64</sup> (c) AB 干渉計+量子ドットの系<sup>65</sup> (d) エッジチャネル干渉計+量子ドットモデル

### 5.5.5 $\nu_c$ の物理的意味

Fig. 5-12 の本モデルの定性的説明からも分かるように、どの程度のキャリア密度領域を絶縁領域と捉えるかが今回の計算結果にとって一つの重要なポイントとなる。今回は、(5.8)から分かるように  $\nu_c$  という値を用いてフィリングファクターが  $-\nu_c < \nu < \nu_c$  の間が絶縁領域になっていると仮定した。この  $\nu_c$  を唯一のフィッティングパラメータとすることで、実験結果と計算結果を整合させることを試み、 $\nu_c = 0.35$  の時よく結果が一致することが分かった。この仮定がどのような物理的意味を持ち、どの程度確からしいものかについて考察する。

まずもっとも単純なモデルとして、エッジチャネルが理想的に一次元に、つまり太さゼロの領域を伝搬していると考え、エッジチャネルは必ず状態密度があるところ、つまり **half-filled** の領域を伝搬しているはずである。ランダウ量子化の描像のもとでは、**half-filled** の状態のうちもっともキャリア密度ゼロに近い状態は  $\nu = 0.5$  であることから、第一近似としては  $\nu_c$  を  $\nu_c = 0.5$  と置けることが分かる。

一方で、Chklovskii らによって、たとえ不純物の少ない **clean** な系であったとしても、ポテンシャルに傾斜があるような領域においては **screening** の影響で、エッジチャネルの幅が有限の太さになる、ということも明らかにされている<sup>170</sup>。この有限の太さ分を考慮すると絶縁領域は少し狭くなることから、少なくとも  $\nu_c$  は 0.5 未満となるべきである。

また、**clean** な系におけるエッジチャネルの幅の見積もりは、系に **incompressible stripe** と **compressible stripe** が形成されると仮定することで、Chklovskii らにより定量的に行われているが<sup>170</sup>、更に考慮すべき点是不純物の影響である。不純物があった場合、Fig. 5-22 のように **compressible stripe** の中にもキャリアが局在している領域と局在していない領域が存在し<sup>170</sup>、電気伝導の有無はこの境界が境目となる。つまり絶縁領域の面積を計算しようとする、「局在かつ **compressible** な領域」+「**incompressible** な領域」の足し合わせとなるために、 $\nu_c$  は局在と非局在の境目におけるフィリングファクターと考えることができる。今回の実験により、この境界値を実験的に見積もることができた、と捉えることもできる。

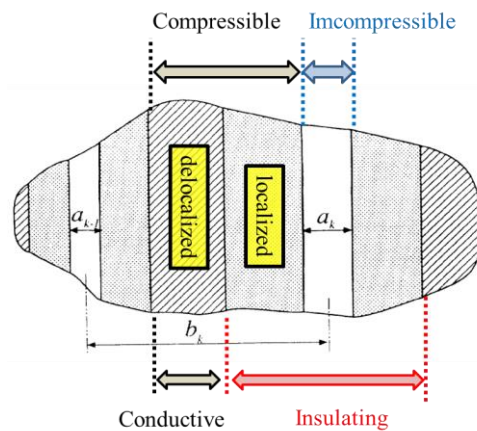


Fig. 5-22 Chklovskii らが議論した不純物がある系における量子ホールエッジ状態<sup>170</sup>

### 5.5.6 Snake state による磁気抵抗振動との比較

今回の結果の発表と同時期に、Rickhaus らと Taychatanapat らが高移動度 pn 接合を用いて磁気抵抗振動現象の観測を同時に報告し、それが pn 界面における電子の snake state に由来するものであると議論した<sup>145,146</sup>。本項では彼らの結果と今回得た結果の相違点や関連について議論する。

まず今回の結果と彼らの結果で異なる点は、振動周期 $\Delta B$ の磁場依存性である。 $\Delta B$ は、Rickhaus らのデータでは磁場に対して一定の周期となっており、Taychatanapat らのデータでは磁場に対して単調増加しているが、今回のデータでは Fig. 5-7 で論じたように単調減少している[Fig. 5-23(a)]。snake state は 3.4.5 でも議論したように、p 領域と n 領域で異なる向きのサイクロトロン運動が組み合わさって蛇(snake)のように蛇行しながら界面を伝搬していく状態のことである。ここで界面の長さを  $W$  とすると、界面に入射した電子は、 $W/2R_c =$  (偶数)の時、最終的に逆側の領域に透過できることから抵抗が下がるが、 $W/2R_c =$  (奇数)の時、最終的に元の領域に戻るようになるので抵抗が上がることになる[Fig. 5-23(b)]。 $B$ を変えるとサイクロトロン半径が変化することから、この二つの状態が交互に実現することになり、抵抗値の振動現象が見られるのだ。ここで振動周期について考えてみると、(2.9)から

$$\frac{W}{2R_c(B+\Delta B)} - \frac{W}{2R_c(B)} = 2 \rightarrow \Delta B = \frac{4\hbar k_F}{eW} \quad (5.11)$$

のように振動周期が一定になると予測することができる。この点では Rickhaus らの結果は snake state モデルとよく一致していることが分かる。Taychatanapat らはこの点と結果との相違を、磁場増加に伴って界面における impurity の影響が強くなり実効的に  $W$  が小さくなることで $\Delta B$ が大きくなると考察している。この点からも今回の結果( $\Delta B$ が $B$ に対して単調減少)を snake state モデルで説明することは難しいと考えられる。

更に、磁気抵抗が観測されている磁場が今回の結果(~ 5 T 付近)と彼らの結果(数百 mT ~ 2 T)において異なるという点も注目すべきである。今回利用しているような高磁場においては、古典的なサイクロトロン軌道というよりも、量子ホールエッジチャネル伝導が実現していると考える方が自然であり、snake state モデルが適用できない領域であると予測できる。また実際今回の結果においても、今回議論した磁場領域より小さな磁場において、Fig. 5-23(c)に示すように、振動周期が磁場に対して増加するような微細な振動を観測しており、こちらが彼らの観測した snake state に対応する磁気抵抗振動と考えられる。

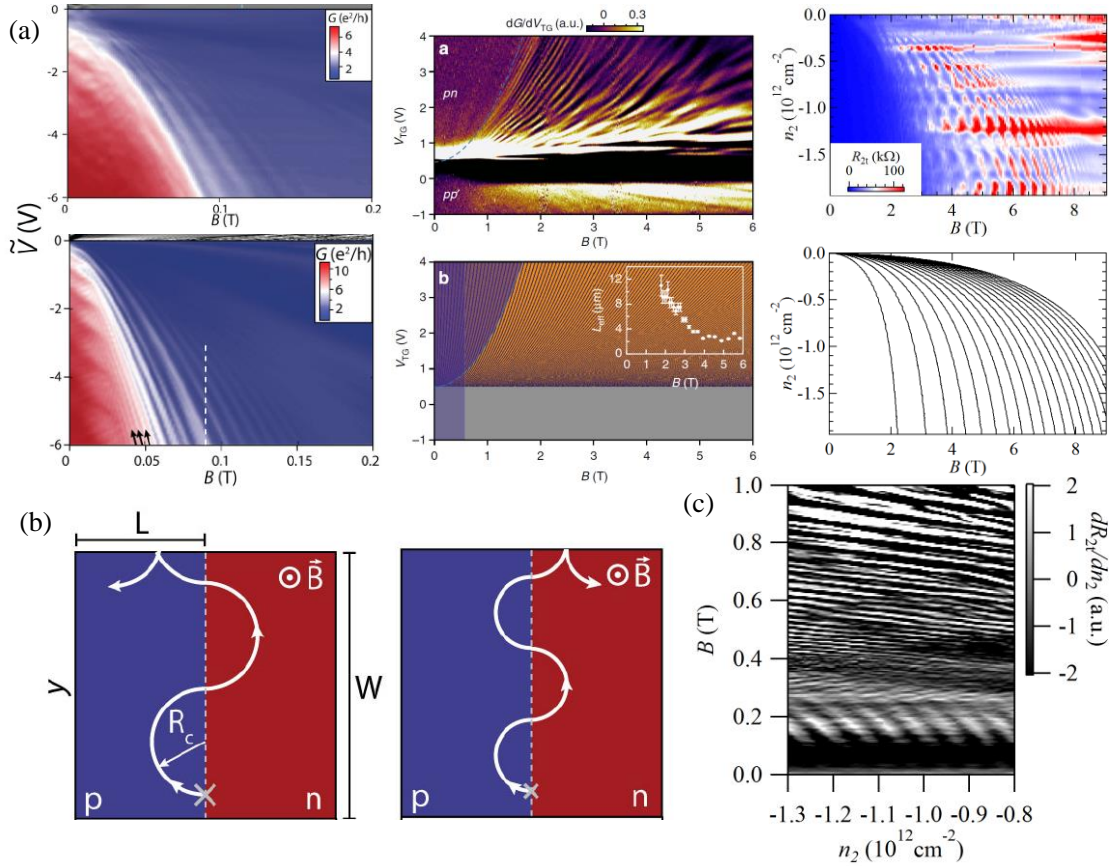


Fig. 5-23 (a) Rickhaus らと Taychatanapat らの実験結果と計算結果<sup>145,146</sup> の本研究との比較  
 (b) snake state において低抵抗と高抵抗が実現する状態<sup>145</sup> (c)  $T = 1.6 \text{ K}$ ,  $n_1 = 1.5 \times 10^{12} \text{ cm}^{-2}$  における  $dR_{2l}/dn_2$  の  $(n_2, B)$  平面へのカラープロット

最後に、5.5.2 で論じたように checker-board 模様が見られている点も snake state モデルと干渉モデルを切り分けるヒントになるかもしれない。エッジチャネル干渉のモデルにおいては、 $V_{dc}$  による位相と AB 干渉の位相は独立に振動に寄与する(つまり別々の三角関数の掛け算として記述される)ことが知られており<sup>70</sup>、これにより checker-board 模様が形成される。一方、snake state モデルの場合、仮に  $V_{dc}$  がかかっても、キャリア密度が変調を受けてサイクロトロン半径が変化するだけなので、磁場方向の振動と  $V_{dc}$  方向の振動がカップルした、 $V_{dc}$ - $B$  平面で斜め方向に等位相面がでる(一つの三角関数の中に二つの位相が足し合わせて寄与する)振動模様が観測されるはずである。この結果も、今回観測された磁気抵抗振動は snake state モデルでは説明できないことを示唆している。

## 5.6 本章のまとめ

2.5 で作製した高移動度 npn 接合が強磁場下において特異な磁気抵抗振動現象を示すことを発見した。この振動現象は従来の SdH 振動などでは説明することができず、非平衡分布

を示している pn 界面におけるエッジチャネル間を貫く磁束で、極めて良くスケールできる現象であることが分かった。この結果は、非平衡分布を示すような高品質 pn 接合量子ホール系がコヒーレントな量子ホール干渉計として機能することを意味しており、量子ホールエッジ物性や pn 界面におけるトンネル過程の物性探索に向けた、重要なツールを発見した結果と言えるだろう。

## 第6章 結論

グラフェンにおける量子輸送現象が、光学の概念を利用することで(すなわち電子光学的に)制御可能なことを、以下のように実験的に実証した。

○**h-BN** をグラフェンの基板や絶縁膜として使用する技術の整備を行い、グラフェンの高品質化を達成することで、電子が光波のように直進しながら(バリスティック)位相を保って(コヒーレント)伝導できる系を実現した。特に **h-BN** をゲート絶縁膜として用いることで、輸送現象の電子光学制御に必要な不可欠な **pn** 接合を、高移動度を保ちながら作製することに成功した。

○楕円構造を有する高移動度グラフェン **npn** 接合を作製し、接合中のバリスティックな電子の軌道を屈折や反射などの概念を用いることで操り、接合の伝導度や磁気抵抗の符号を制御することに成功した。特に、高移動度・高キャリア密度を維持しながら抵抗値の増大が実現可能であることを示し、抵抗増大の実現が難しいと言われるグラフェンにおいて、電子光学の概念を利用したトランジスタ等の新規デバイス応用の可能性を示唆した。

○**Scanning gate microscopy** という局所プロービング技術を用いて、グラフェン中を伝搬しているバリスティックなキャリアを局所的なポテンシャル変調領域によって軌道制御することに成功した。グラフェンにおけるバリスティック伝導の可視化に初めて成功しただけでなく、ナノスケールでの電子波の能動的な制御が可能であることを示す結果である。

○高移動度グラフェン **npn** 接合は強磁場下で特異な磁気抵抗振動現象を示すことを発見した。この振動現象は、**pn** 界面における **co-propagating** な量子ホールエッジチャネルが、干渉計を形成していると考えらることで非常に良く実験結果が説明できることも見出した。グラフェン特有のエッジチャネル配置が **pn** 界面において天然に干渉計を形成していることを示唆した、グラフェン量子ホール系におけるコヒーレント伝導の初めての報告であり、エッジ速度やコヒーレンス長などグラフェンエッジ物性の理解に向けて重要な役割を果たす実験系を発見したと言える。

以上の結果は、グラフェンにおける量子輸送現象を、電子のバリスティックおよびコヒーレントな性質を利用することで、制御可能なことを実証した結果である。”**Dirac fermion optics**”と言うべき、近年極めて注目を集めている領域に実験的に迫った結果と言え、今後、より深遠な物理現象の理解や応用に資するデバイス実現に向けて、重要な一歩となる研究成果である。

## 第7章 補遺

### 7.1 測定法

本節では本研究で用いた電気伝導測定の手法について概説する。

#### 7.1.1 測定装置

温度 1.6~300 K での電気伝導測定が可能な VTI(Variable Temperature Insert 温度可変インサート、Cryogenics 社製)を利用した。また試料面直方向に磁場を印加するために、Cryomagnetic 社製の超電導マグネットを利用した。印加可能な最大磁場は 9 T である。ただし第 4 章の実験は Cambridge 大学 Cavendish 研究所 Connolly 研究室が有する SGM 装置を利用しており、温度は不可変の 4 K、印加最大磁場 7 T における測定となる。詳細は 4.2.2 に記述した。

#### 7.1.2 測定回路

主に定電流測定を行った。グラフェンの抵抗は  $\text{k}\Omega$  のオーダーであるため、これらよりも十分に大きい抵抗  $R = 1 \sim 10 \text{ M}\Omega$  を下図のようにグラフェンに直列に接続し電圧  $V$  を印加することで定電流  $I = V/R$  をグラフェン中に流すことができる。またこの  $V$  に交流変調を加えることで交流電流  $I_{\text{ac}}$  を流し、観測される電圧  $V_{\text{ac}}$  をロックイン測定することでノイズを低減した測定を行った[Fig. 7-1]。最終的な抵抗は  $R = V_{\text{ac}}/I_{\text{ac}}$  から計算できる。

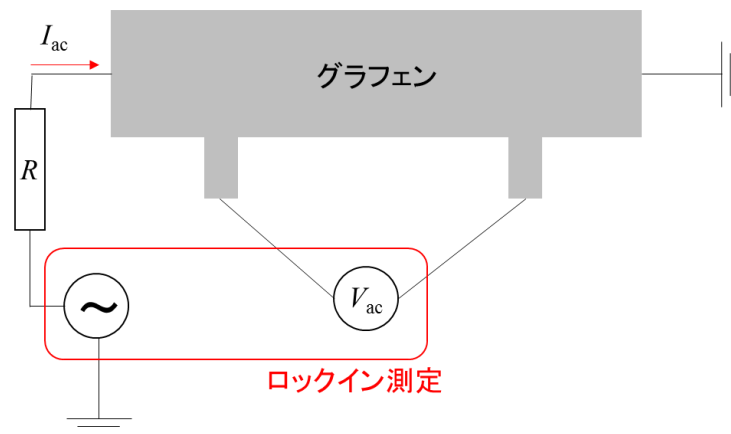


Fig. 7-1 定電流 AC ロックイン測定系

### 7.2 試料幅の異なるサンプルにおける fan diagram

Fig. 2-11(試料幅  $W$  の異なるサンプルにおける  $C_{\text{bg}}$ )を計算する際に利用した fan diagram を Fig. 7-2(a)に示す(素子 C のデータは既に Fig. 2-10 で示した)。点線で示された量子ホールブ



ラトーを用いた。また、fan diagram が不明瞭もしくはデータ未取得の素子においては、ある磁場において明瞭に観測されたプラトーにおける  $\nu Be^2/h$  を Fig. 7-2(b)のように  $V_{bg}$  の関数としてプロットし、線形近似から求まる傾きから  $C_{bg}$  を求めた。

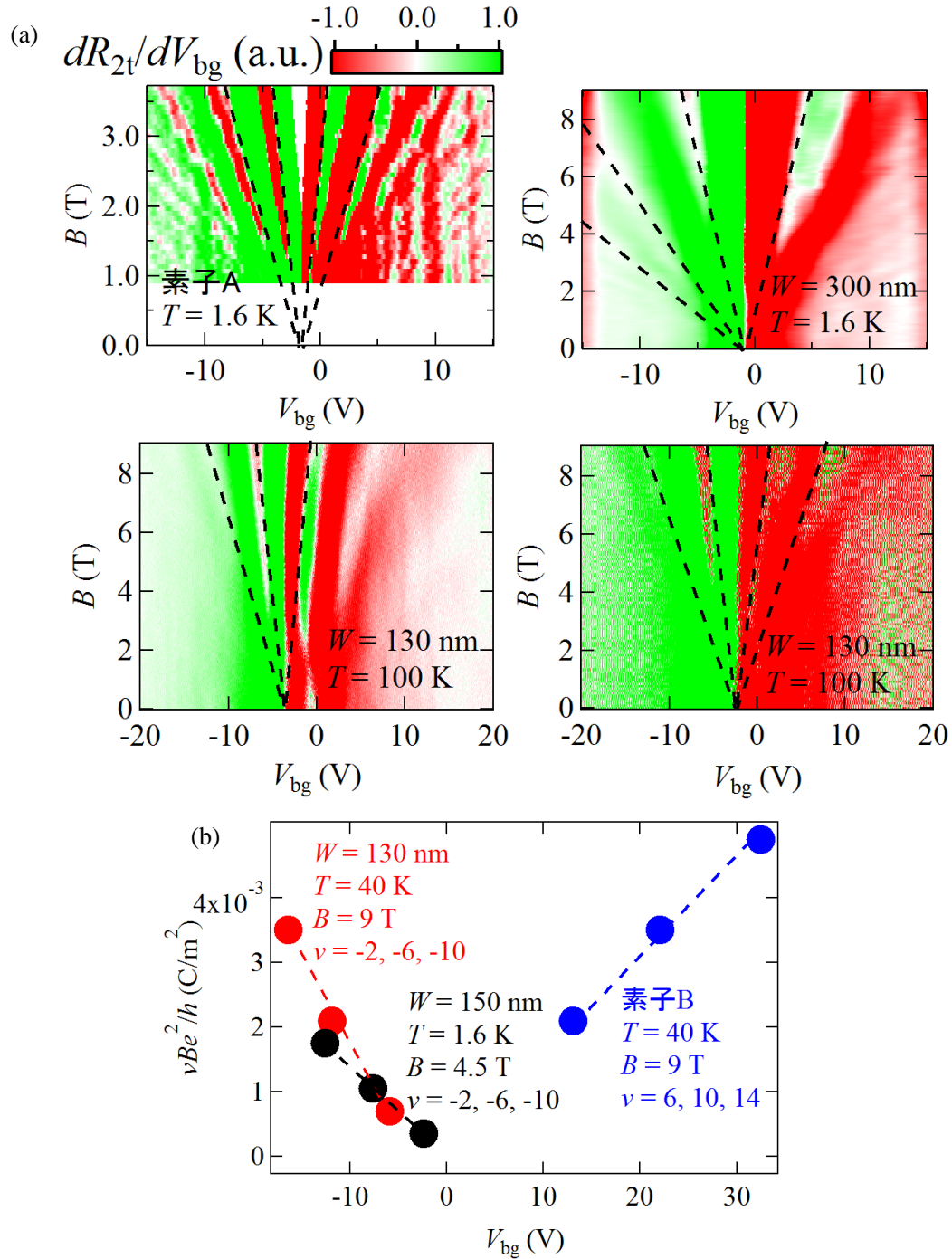


Fig. 7-2 (a) 様々な  $W$  を持つ素子における  $dR_{2t}/dV_{bg}$  の  $(V_{bg}, B)$  平面へのカラープロット(点線が  $C_{bg}$  の見積もりに用いた量子ホールプラトー) (b) fan diagram を用いずに  $C_{bg}$  を計算した素子における  $\nu Be^2/h$  の  $V_{bg}$  依存性

## 参考文献

1. Ando, T., Fowler, A. B. & Stern, F. Electronic properties of two-dimensional systems. *Rev. Mod. Phys.* **54**, 437–672 (1982).
2. Klitzing, K. V., Dorda, G. & Pepper, M. New method for high-accuracy determination of the fine-structure constant based on quantized hall resistance. *Phys. Rev. Lett.* **45**, 494–497 (1980).
3. Mimura, T., Hiyamizu, S., Fujii, T. & Nanbu, K. A New Field-Effect Transistor with Selectively Doped GaAs / n-Al x Ga1- x As Heterojunctions. *Jpn. J. Appl. Phys.* **19**, L225–L227 (1980).
4. Mimura, T. The early history of the high electron mobility transistor (HEMT). *IEEE Trans. Microw. Theory Tech.* **50**, 780–782 (2002).
5. Willett, R. L., Nayak, C., Shtengel, K., Pfeiffer, L. N. & West, K. W. Magnetic-Field-Tuned Aharonov-Bohm Oscillations and Evidence for Non-Abelian Anyons at  $\nu=5/2$ . *Phys. Rev. Lett.* **111**, 186401 (2013).
6. Kumar, A., Csáthy, G. A., Manfra, M. J., Pfeiffer, L. N. & West, K. W. Nonconventional odd-denominator fractional quantum hall states in the second landau level. *Phys. Rev. Lett.* **105**, 3–6 (2010).
7. Stormer, H. Nobel Lecture: The fractional quantum Hall effect. *Rev. Mod. Phys.* **71**, 875–889 (1999).
8. Das Sarma, S., Adam, S., Hwang, E. & Rossi, E. Electronic transport in two-dimensional graphene. *Rev. Mod. Phys.* **83**, 407–470 (2011).
9. Yacoby, A., Sivan, U., Umbach, C. P. & Hong, J. M. Interference and dephasing by electron-electron interaction on length scales shorter than the elastic mean free path. *Phys. Rev. Lett.* **66**, 1938–1941 (1991).
10. Takagaki, Y. *et al.* Nonlocal quantum transport in narrow multibranched electron wave guide of GaAs-AlGaAs. *Solid State Commun.* **68**, 1051–1054 (1988).
11. Takagaki, Y. *et al.* Overshoot of four-terminal magnetoresistance at GaAs-AlGaAs narrow wire junctions. *Solid State Commun.* **71**, 809–812 (1989).
12. Thornton, T., Roukes, M. & Scherer, A. Boundary Scattering in Quantum Wires. *Phys. Rev. Lett.* **63**, 2128–2131 (1989).
13. van Houten, H. & Wees, B. Van. Coherent electron focussing in a two-dimensional electron gas. *EPL* **721**, (1988).
14. van Houten, H. *et al.* Coherent electron focusing with quantum point contacts in a two-dimensional electron gas. *Phys. Rev. B* **39**, 8556–8575 (1989).
15. Beenakker, C. Mode interference effect in coherent electron focusing. *EPL* **359**, (1988).
16. Bergmann, G. Physical interpretation of weak localization: A time-of-flight experiment with

- conduction electrons. *Phys. Rev. B* **28**, 2914–2920 (1983).
17. Bergmann, G. Weak localization in thin films. *Phys. Rep.* **107**, 1–58 (1984).
  18. Al'tshuler, B. L. Fluctuations in the extrinsic conductivity of disordered metal. *JETP Letters* **41**, 648 (1985).
  19. Lee, P. A. & Stone, A. D. Universal conductance fluctuations in metals. *Phys. Rev. Lett.* **55**, 1622–1625 (1985).
  20. Licini, J. C., Bishop, D. J., Kastner, M. A. & Melngailis, J. Aperiodic magnetoresistance oscillations in narrow inversion layers in Si. *Phys. Rev. Lett.* **55**, 2987–2990 (1985).
  21. Aharonov, Y. & Bohm, D. Significance of Electromagnetic Potentials in the Quantum Theory. *Phys. Rev.* **115**, 485–491 (1959).
  22. Sharvin, D. Y. & Sharvin, Y. V. Magnetic-flux quantization in cylindrical film of a normal metal. *JETP Letters* **34**, 272–275 (1981).
  23. Beenakker, C. & van Houten, H. Quantum Transport in Semiconductor Nanostructures. *Solid state Phys.* **44**, 1–228 (1991).
  24. Topinka, M. A. Imaging Coherent Electron Flow from a Quantum Point Contact. *Science* **289**, 2323–2326 (2000).
  25. Topinka, M. A. *et al.* Coherent branched flow in a two-dimensional electron gas. *Nature* **410**, 183–186 (2001).
  26. Aidala, K. E. *et al.* Imaging magnetic focusing of coherent electron waves. *Nat. Phys.* **3**, 464–468 (2007).
  27. Halperin, B. I. Quantized Hall conductance, current-carrying edge states, and the existence of extended states in a two-dimensional disordered potential. *Phys. Rev. B* **25**, 2185–2190 (1982).
  28. Geim, A. K. & Novoselov, K. S. The rise of graphene. *Nat. Mater.* **6**, 183–91 (2007).
  29. Wallace, P. The band theory of graphite. *Phys. Rev.* **71**, 622–634 (1947).
  30. Mermin, N. Crystalline order in two dimensions. *Phys. Rev.* **176**, 250–254 (1968).
  31. Novoselov, K. S. Electric Field Effect in Atomically Thin Carbon Films. *Science* **306**, 666–669 (2004).
  32. Novoselov, K. S. *et al.* Two-dimensional gas of massless Dirac fermions in graphene. *Nature* **438**, 197–200 (2005).
  33. Zhang, Y., Tan, Y.-W., Stormer, H. L. & Kim, P. Experimental observation of the quantum Hall effect and Berry's phase in graphene. *Nature* **438**, 201–4 (2005).
  34. Savage, N. Materials science: Super carbon. *Nature* **483**, S30–S31 (2012).
  35. Cheianov, V. V., Fal'ko, V. & Altshuler, B. L. The focusing of electron flow and a Veselago lens in graphene p-n junctions. *Science* **315**, 1252–5 (2007).
  36. Chen, J.-H., Jang, C., Xiao, S., Ishigami, M. & Fuhrer, M. S. Intrinsic and extrinsic performance limits of graphene devices on SiO<sub>2</sub>. *Nat. Nanotechnol.* **3**, 206–9 (2008).

37. Hrostowski, H., Morin, F., Geballe, T. & Wheatley, G. Hall effect and conductivity of InSb. *Phys. Rev.* **699**, (1955).
38. Novoselov, K. S. *et al.* Room-temperature quantum Hall effect in graphene. *Science* **315**, 1379 (2007).
39. Gusynin, V. & Sharapov, S. Unconventional Integer Quantum Hall Effect in Graphene. *Phys. Rev. Lett.* **95**, 146801 (2005).
40. Yang, K. Spontaneous symmetry breaking and quantum Hall effect in graphene. *Solid State Commun.* **143**, 27–32 (2007).
41. Blake, P. *et al.* Making graphene visible. *Appl. Phys. Lett.* **91**, 63124 (2007).
42. Bolotin, K. I. *et al.* Ultrahigh electron mobility in suspended graphene. *Solid State Commun.* **146**, 351–355 (2008).
43. Du, X., Skachko, I., Barker, A. & Andrei, E. Y. Approaching ballistic transport in suspended graphene. *Nat. Nanotechnol.* **3**, 491–5 (2008).
44. Du, X., Skachko, I., Duerr, F., Luican, A. & Andrei, E. Y. Fractional quantum Hall effect and insulating phase of Dirac electrons in graphene. *Nature* **462**, 192–5 (2009).
45. Bolotin, K. I., Ghahari, F., Shulman, M. D., Stormer, H. L. & Kim, P. Observation of the fractional quantum Hall effect in graphene. *Nature* **462**, 196–9 (2009).
46. Tombros, N., Veligura, A. & Junesch, J. Quantized conductance of a suspended graphene nanoconstriction. *Nat. Phys.* **7**, 697–700 (2011).
47. Feldman, B., Krauss, B., Smet, J. & Yacoby, A. Unconventional sequence of fractional quantum Hall states in suspended graphene. *Science* **337**, 1196–1199 (2012).
48. Rickhaus, P. *et al.* Ballistic interferences in suspended graphene. *Nat. Commun.* **4**, 2342 (2013).
49. Grushina, A. L., Ki, D.-K. & Morpurgo, A. F. A ballistic pn junction in suspended graphene with split bottom gates. *Appl. Phys. Lett.* **102**, 223102 (2013).
50. Dean, C. R. *et al.* Boron nitride substrates for high-quality graphene electronics. *Nat. Nanotechnol.* **5**, 722–6 (2010).
51. Mayorov, A. S. *et al.* Micrometer-scale ballistic transport in encapsulated graphene at room temperature. *Nano Lett.* **11**, 2396–9 (2011).
52. Taychatanapat, T., Watanabe, K., Taniguchi, T. & Jarillo-Herrero, P. Quantum Hall effect and Landau-level crossing of Dirac fermions in trilayer graphene. *Nat. Phys.* **7**, 621–625 (2011).
53. Xue, J. *et al.* Scanning tunnelling microscopy and spectroscopy of ultra-flat graphene on hexagonal boron nitride. *Nat. Mater.* **10**, 4–7 (2011).
54. Decker, R. *et al.* Local electronic properties of graphene on a BN substrate via scanning tunneling microscopy. *Nano Lett.* **11**, 2291–5 (2011).
55. Spector, J., Stormer, H. L., Baldwin, K. W., Pfeiffer, L. N. & West, K. W. Electron focusing in two-dimensional systems by means of an electrostatic lens. *Appl. Phys. Lett.* **56**, 1290 (1990).

56. Sivan, U., Heiblum, M., Umbach, C. & Shtrikman, H. Electrostatic electron lens in the ballistic regime. *Phys. Rev. B* **41**, 7937–7940 (1990).
57. Yacoby, A., Heiblum, M., Umansky, V., Shtrikman, H. & Mahalu, D. Unexpected Periodicity in an Electronic Double Slit Interference Experiment. *Phys. Rev. Lett.* **73**, 3149–3152 (1994).
58. Yacoby, A., Heiblum, M., Mahalu, D. & Shtrikman, H. Coherence and phase sensitive measurements in a quantum dot. *Phys. Rev. Lett.* **74**, 4047–4051 (1995).
59. Schuster, R. *et al.* Phase measurement in a quantum dot via a double-slit interference experiment. *Nature* **385**, 417–420 (1997).
60. Yacoby, A., Schuster, R. & Heiblum, M. Phase rigidity and  $h/2e$  oscillations in a single-ring Aharonov-Bohm experiment. *Phys. Rev. B* **53**, 9583–9586 (1996).
61. Buks, E. *et al.* Measurement of Phase and Magnitude of the Reflection Coefficient of a Quantum Dot. *Phys. Rev. Lett.* **77**, 4664–4667 (1996).
62. van der Wiel, W. G. *et al.* The Kondo Effect in the Unitary Limit. *Science* **289**, 2105–2108 (2000).
63. Ji, Y., Heiblum, M., Sprinzak, D., Mahalu, D. & Shtrikman, H. Phase evolution in a Kondo-correlated system. *Science* **290**, 779–783 (2000).
64. Kobayashi, K., Aikawa, H., Katsumoto, S. & Iye, Y. Tuning of the Fano Effect through a Quantum Dot in an Aharonov-Bohm Interferometer. *Phys. Rev. Lett.* **88**, 256806 (2002).
65. 小林研介, 相川恒, 勝本信吾 & 家泰弘. 量子複合系の物理: メゾスコピック Fano 効果. 固体物理 **38**, 29 (2002).
66. de C. Chamon, C., Freed, D. E., Kivelson, S. a., Sondhi, S. L. & Wen, X. G. Two point-contact interferometer for quantum Hall systems. *Phys. Rev. B* **55**, 2331–2343 (1997).
67. Ji, Y. *et al.* An electronic Mach-Zehnder interferometer. *Nature* **422**, 415–8 (2003).
68. Camino, F., Zhou, W. & Goldman, V. Aharonov-Bohm electron interferometer in the integer quantum Hall regime. *Phys. Rev. B* **72**, 155313 (2005).
69. Roulleau, P. *et al.* Direct Measurement of the Coherence Length of Edge States in the Integer Quantum Hall Regime. *Phys. Rev. Lett.* **100**, 126802 (2008).
70. McClure, D. *et al.* Edge-State Velocity and Coherence in a Quantum Hall Fabry-Pérot Interferometer. *Phys. Rev. Lett.* **103**, 206806 (2009).
71. Smith, D. R., Pendry, J. B. & Wiltshire, M. C. K. Metamaterials and negative refractive index. *Science* **305**, 788–92 (2004).
72. Katsnelson, M. I., Novoselov, K. S. & Geim, A. K. Chiral tunnelling and the Klein paradox in graphene. *Nat. Phys.* **2**, 620–625 (2006).
73. Calogeracos, A. & Dombey, N. History and physics of the Klein paradox. *Contemp. Phys.* **40**, 313–321 (1999).
74. Amet, F., Williams, J. R., Watanabe, K., Taniguchi, T. & Goldhaber-Gordon, D. Gate control of spin and valley polarized quantum Hall edge states in graphene. *arXiv Prepr. arXiv1307.4408* 1–8

- (2013). at <<http://arxiv.org/abs/1307.4408>>
75. Pendry, J. Negative refraction makes a perfect lens. *Phys. Rev. Lett.* **85**, 3966–9 (2000).
  76. Sajjad, R. N. & Ghosh, A. W. High efficiency switching using graphene based electron ‘optics’. *Appl. Phys. Lett.* **99**, 123101 (2011).
  77. Sajjad, R. N., Sutar, S., Lee, J. U. & Ghosh, A. W. Manifestation of chiral tunneling at a tilted graphene p-n junction. *Phys. Rev. B* **86**, 155412 (2012).
  78. Gupta, G., Abdul Jalil, M. Bin, Yu, B. & Liang, G. Performance evaluation of electro-optic effect based graphene transistors. *Nanoscale* **4**, 6365–73 (2012).
  79. Jang, M. S., Kim, H., Son, Y.-W., Atwater, H. A. & Goddard, W. A. Graphene field effect transistor without an energy gap. *Proc. Natl. Acad. Sci. U. S. A.* **110**, 8786–9 (2013).
  80. Wilmart, Q. *et al.* A Klein-tunneling transistor with ballistic graphene. *2D Mater.* **1**, 11006 (2014).
  81. Wu, Z. Electronic fiber in graphene. *Appl. Phys. Lett.* **98**, 2009–2012 (2011).
  82. Williams, J. R., Low, T., Lundstrom, M. S. & Marcus, C. M. Gate-controlled guiding of electrons in graphene. *Nat. Nanotechnol.* **6**, 222–5 (2011).
  83. Zhang, F. M., He, Y. & Chen, X. Guided modes in graphene waveguides. *Appl. Phys. Lett.* **94**, 4–7 (2009).
  84. Hartmann, R. R., Robinson, N. J. & Portnoi, M. E. Smooth electron waveguides in graphene. *Phys. Rev. B* **81**, 245431 (2010).
  85. Beenakker, C. W. J., Sepkhanov, R. A., Akhmerov, A. R. & Tworzydło, J. Quantum Goos-Hänchen effect in graphene. *Phys. Rev. Lett.* **102**, 1–4 (2009).
  86. Park, C. H., Son, Y. W., Yang, L., Cohen, M. L. & Louie, S. G. Electron beam supercollimation in graphene superlattices. *Nano Lett.* **8**, 2920–2924 (2008).
  87. Liu, M.-H., Gorini, C. & Richter, K. Creating and Manipulating Electron Beams in Graphene. *arXiv Prepr. arXiv1608.01730* (2016). at <<http://arxiv.org/abs/1608.01730>>
  88. Schurig, D. *et al.* Metamaterial Electromagnetic Cloak at Microwave Frequencies. *Science* **314**, 977–980 (2006).
  89. Watanabe, K., Taniguchi, T. & Kanda, H. Direct-bandgap properties and evidence for ultraviolet lasing of hexagonal boron nitride single crystal. *Nat. Mater.* **3**, 404–409 (2004).
  90. Taniguchi, T. & Watanabe, K. Synthesis of high-purity boron nitride single crystals under high pressure by using Ba-BN solvent. *J. Cryst. Growth* **303**, 525–529 (2007).
  91. Geim, A. K. & Grigorieva, I. V. Van der Waals heterostructures. *Nature* **499**, 419–25 (2013).
  92. Novoselov, K. S., Mishchenko, A., Carvalho, A. & Castro Neto, A. H. 2D materials and van der Waals heterostructures. *Science* **353**, aac9439–aac9439 (2016).
  93. Esaki, L. & Tsu, R. Superlattice and Negative Differential Conductivity in Semiconductors. *IBM J. Res. Dev.* **14**, 61–65 (1970).
  94. Chang, L. L., Esaki, L., Howard, W. E., Ludeke, R. & Schul, G. Structures Grown by Molecular

- Beam Epitaxy. *J. Vac. Sci. Technol.* **10**, 655 (1973).
95. Esaki, L. & Chang, L. L. New transport phenomenon in a semiconductor ‘superlattice’. *Phys. Rev. Lett.* **33**, 495–498 (1974).
  96. Haigh, S. J. *et al.* Cross-sectional imaging of individual layers and buried interfaces of graphene-based heterostructures and superlattices. *Nat. Mater.* **11**, 764–7 (2012).
  97. Georgiou, T. *et al.* Graphene bubbles with controllable curvature. *Appl. Phys. Lett.* **99**, 93103 (2011).
  98. Dean, C. R. *et al.* Multicomponent fractional quantum Hall effect in graphene. *Nat. Phys.* **7**, 693–696 (2011).
  99. Zomer, P. J., Dash, S. P., Tombros, N. & van Wees, B. J. A transfer technique for high mobility graphene devices on commercially available hexagonal boron nitride. *Appl. Phys. Lett.* **99**, 232104 (2011).
  100. Ponomarenko, L. A. *et al.* Tunable metal – insulator transition in double-layer graphene heterostructures. *Nat. Phys.* **7**, 13–16 (2011).
  101. 井口和之. 東京大学大学院 工学系研究科 物理工学専攻 修士論文. (東京大学, 2012).
  102. Wang, L. *et al.* One-Dimensional Electrical Contact to a Two-Dimensional Material. *Science* **342**, 614–617 (2013).
  103. Uwann, T., Hattori, Y., Taniguchi, T., Watanabe, K. & Nagashio, K. Fully dry PMMA transfer of graphene on h-BN using a heating/cooling system. *2D Mater.* **2**, 41002 (2015).
  104. Castellanos-Gomez, A. *et al.* Deterministic transfer of two-dimensional materials by all-dry viscoelastic stamping. *2D Mater.* **1**, 11002 (2014).
  105. Yabuki, N. *et al.* Supercurrent in van der Waals Josephson junction. *Nat. Commun.* **7**, 10616 (2016).
  106. 上野啓司, 安藤淳 & 島田敏宏. カルコゲナイド系層状物質の最新研究. (シーエムシー出版, 2016).
  107. Gorbachev, R. V. *et al.* Hunting for monolayer boron nitride: Optical and raman signatures. *Small* **7**, 465–468 (2011).
  108. Chen, J.-H. *et al.* Charged-impurity scattering in graphene. *Nat. Phys.* **4**, 377–381 (2008).
  109. Martin, J. *et al.* Observation of electron–hole puddles in graphene using a scanning single-electron transistor. *Nat. Phys.* **4**, 144–148 (2007).
  110. Lin, Y.-M., Perebeinos, V., Chen, Z. & Avouris, P. Electrical observation of subband formation in graphene nanoribbons. *Phys. Rev. B* **78**, 1–4 (2008).
  111. Lian, C. *et al.* Quantum transport in graphene nanoribbons patterned by metal masks. *Appl. Phys. Lett.* **96**, 103109 (2010).
  112. Guo, J., Yoon, Y. & Ouyang, Y. Gate electrostatics and quantum capacitance of graphene nanoribbons. *Nano Lett.* **7**, 1935–40 (2007).
  113. Vera-Marun, I. J. *et al.* Quantum Hall transport as a probe of capacitance profile at graphene edges.



- Appl. Phys. Lett.* **102**, 13106 (2013).
114. Masubuchi, S. *et al.* Boundary Scattering in Ballistic Graphene. *Phys. Rev. Lett.* **109**, 36601 (2012).
  115. Xu, H., Heinzl, T. & Zozoulenko, I. V. Geometric magnetoconductance dips by edge roughness in graphene nanoribbons. *EPL* **97**, 28008 (2012).
  116. Xu, H. & Heinzl, T. Impurity and edge roughness scattering in graphene nanoribbons: the Boltzmann approach. *J. Phys. Condens. Matter* **24**, 455303 (2012).
  117. Young, A. F. & Kim, P. Quantum interference and Klein tunnelling in graphene heterojunctions. *Nat. Phys.* **5**, 222–226 (2009).
  118. Williams, J. R., Dicarlo, L. & Marcus, C. M. Quantum Hall effect in a gate-controlled p-n junction of graphene. *Science* **317**, 638–41 (2007).
  119. Williams, J. R. & Marcus, C. M. Snake States along Graphene p-n Junctions. *Phys. Rev. Lett.* **107**, 46602 (2011).
  120. Özyilmaz, B. *et al.* Electronic Transport and Quantum Hall Effect in Bipolar Graphene p-n-p Junctions. *Phys. Rev. Lett.* **99**, 166804 (2007).
  121. Stander, N., Huard, B. & Goldhaber-Gordon, D. Evidence for Klein Tunneling in Graphene p-n Junctions. *Phys. Rev. Lett.* **102**, 26807 (2009).
  122. Huard, B. *et al.* Transport Measurements Across a Tunable Potential Barrier in Graphene. *Phys. Rev. Lett.* **98**, 236803 (2007).
  123. Oostinga, J. B., Heersche, H. B., Liu, X., Morpurgo, A. F. & Vandersypen, L. M. K. Gate-induced insulating state in bilayer graphene devices. *Nat. Mater.* **7**, 151–7 (2008).
  124. Craciun, M. F. *et al.* Trilayer graphene is a semimetal with a gate-tunable band overlap. *Nat. Nanotechnol.* **4**, 383–388 (2009).
  125. Shytov, A., Rudner, M. & Levitov, L. Klein Backscattering and Fabry-Pérot Interference in Graphene Heterojunctions. *Phys. Rev. Lett.* **101**, 156804 (2008).
  126. Shytov, A., Rudner, M., Gu, N., Katsnelson, M. & Levitov, L. Atomic collapse, Lorentz boosts, Klein scattering, and other quantum-relativistic phenomena in graphene. *Solid State Commun.* **149**, 1087–1093 (2009).
  127. Campos, L. C. *et al.* Quantum and classical confinement of resonant states in a trilayer graphene Fabry-Pérot interferometer. *Nat. Commun.* **3**, 1239 (2012).
  128. Mak, K. F., Lee, C., Hone, J., Shan, J. & Heinz, T. F. Atomically thin MoS<sub>2</sub>: A new direct-gap semiconductor. *Phys. Rev. Lett.* **105**, 2–5 (2010).
  129. Radisavljevic, B., Radenovic, A., Brivio, J., Giacometti, V. & Kis, A. Single-layer MoS<sub>2</sub> transistors. *Nat. Nanotechnol.* **6**, 147–150 (2011).
  130. Moriya, R. *et al.* Large current modulation in exfoliated-graphene/MoS<sub>2</sub>/metal vertical heterostructures. *Appl. Phys. Lett.* **105**, (2014).
  131. Frindt, R. F. Superconductivity in Ultrathin NbSe<sub>2</sub> Layers. *Phys. Rev. Lett.* **28**, 299–301 (1972).

132. Cao, Y. *et al.* Quality Heterostructures from Two-Dimensional Crystals Unstable in Air by Their Assembly in Inert Atmosphere. *Nano Lett.* **15**, 4914–4921 (2015).
133. Arai, M. *et al.* Construction of van der Waals magnetic tunnel junction using ferromagnetic layered dichalcogenide. *Appl. Phys. Lett.* **107**, 3–7 (2015).
134. Lee, G.-H. *et al.* Electron tunneling through atomically flat and ultrathin hexagonal boron nitride. *Appl. Phys. Lett.* **99**, 243114 (2011).
135. Britnell, L. *et al.* Electron tunneling through ultrathin boron nitride crystalline barriers. *Nano Lett.* **12**, 1707–10 (2012).
136. Yamaguchi, T. *et al.* Electrical Spin Injection into Graphene through Monolayer Hexagonal Boron Nitride. *Appl. Phys. Express* **6**, 73001 (2013).
137. Cayssol, J., Huard, B. & Goldhaber-Gordon, D. Contact resistance and shot noise in graphene transistors. *Phys. Rev. B* **79**, 75428 (2009).
138. Cheianov, V. V. & Fal'ko, V. I. Selective transmission of Dirac electrons and ballistic magnetoresistance of n-p junctions in graphene. *Phys. Rev. B* **74**, 41403 (2006).
139. Han, M., Özyilmaz, B., Zhang, Y. & Kim, P. Energy Band-Gap Engineering of Graphene Nanoribbons. *Phys. Rev. Lett.* **98**, 206805 (2007).
140. Nakaharai, S. *et al.* Conduction tuning of graphene based on defect-induced localization. *ACS Nano* **7**, 5694–5700 (2013).
141. Onsager, L. Reciprocal Relations in Irreversible Processes. II. *Phys. Rev.* **38**, 2265–2279 (1931).
142. Morozov, S. V. *et al.* Strong suppression of weak localization in graphene. *Phys. Rev. Lett.* **97**, 7–10 (2006).
143. Wu, X., Li, X., Song, Z., Berger, C. & de Heer, W. A. Weak antilocalization in epitaxial graphene: Evidence for chiral electrons. *Phys. Rev. Lett.* **98**, 2–5 (2007).
144. Tikhonenko, F. V., Horsell, D. W., Gorbachev, R. V. & Savchenko, A. K. Weak localization in graphene flakes. *Phys. Rev. Lett.* **100**, 8–11 (2008).
145. Rickhaus, P. *et al.* Snake trajectories in ultraclean graphene p–n junctions. *Nat. Commun.* **6**, 6470 (2015).
146. Taychatanapat, T. *et al.* Conductance oscillations induced by ballistic snake states in a graphene heterojunction. *Nat. Commun.* **6**, 6093 (2015).
147. Crook, R., Smith, C. G., Simmons, M. Y. & Ritchie, D. A. Imaging cyclotron orbits and scattering sites in a high-mobility two-dimensional electron gas. *Phys. Rev. B* **62**, 5174–5178 (2000).
148. Crook, R. *et al.* Erasable electrostatic lithography for quantum components. *Nature* **424**, 751–754 (2003).
149. Crook, R. *et al.* Conductance Quantization at a Half-Integer Plateau in a Symmetric GaAs Quantum Wire. *Science* **312**, 1359–1362 (2006).
150. Connolly, M. R. *et al.* Scanning gate microscopy of current-annealed single layer graphene. *Appl.*

- Phys. Lett.* **96**, 113501 (2010).
151. Connolly, M. R. *et al.* Tilted potential induced coupling of localized states in a graphene nanoconstriction. *Phys. Rev. B* **83**, 115441 (2011).
  152. Connolly, M. R. *et al.* Reading and writing charge on graphene devices. *Appl. Phys. Lett.* **101**, 23505 (2012).
  153. Connolly, M. R. *et al.* Unraveling quantum Hall breakdown in bilayer graphene with scanning gate microscopy. *Nano Lett.* **12**, 5448–54 (2012).
  154. Herbschleb, E. D. *et al.* Direct imaging of coherent quantum transport in graphene p-n-p junctions. *Phys. Rev. B* **92**, 125414 (2015).
  155. Baumgartner, A., Ihn, T., Ensslin, K., Maranowski, K. & Gossard, A. C. Quantum Hall effect transition in scanning gate experiments. *Phys. Rev. B* **76**, 85316 (2007).
  156. Taychatanapat, T., Watanabe, K., Taniguchi, T. & Jarillo-Herrero, P. Electrically tunable transverse magnetic focusing in graphene. *Nat. Phys.* **9**, 225–229 (2013).
  157. Tsukagoshi, K., Takaoka, S., Murase, K., Gamo, K. & Namba, S. Investigation of ballistic elastic scattering length and specularly in multiterminal GaAs/AlGaAs by magnetic electron focusing effect. *Appl. Phys. Lett.* **62**, 1609–1611 (1993).
  158. Bhandari, S. *et al.* Imaging Cyclotron Orbits of Electrons in Graphene. *Nano Lett.* **16**, 1690–1694 (2016).
  159. Hornsey, R. I. Angular distributions of electrons transmitted ballistically through tapered constrictions. *J. Appl. Phys.* **79**, 9172–9180 (1996).
  160. Haug, R. J. Edge-state transport and its experimental consequences in high magnetic fields. *Semicond. Sci. Technol.* **8**, 131–153 (1993).
  161. Komiyama, S., Hirai, H., Sasa, S. & Hiyamizu, S. Violation of the integral quantum Hall effect: influence of backscattering and the role of voltage contacts. *Phys. Rev. B* **40**, 4–7 (1989).
  162. Müller, G., Weiss, D., Khaetskii, A. & Klitzing, K. von. Equilibration length of electrons in spin-polarized edge channels. *Phys. Rev. B* **45**, 3932–3935 (1992).
  163. Amet, F., Williams, J. R., Watanabe, K., Taniguchi, T. & Goldhaber-Gordon, D. Selective Equilibration of Spin-Polarized Quantum Hall Edge States in Graphene. *Phys. Rev. Lett.* **112**, 196601 (2014).
  164. Checkelsky, J. G., Li, L. & Ong, N. P. Zero-Energy State in Graphene in a High Magnetic Field. *Phys. Rev. Lett.* **100**, 206801 (2008).
  165. Checkelsky, J. G., Li, L. & Ong, N. P. Divergent resistance at the Dirac point in graphene: Evidence for a transition in a high magnetic field. *Phys. Rev. B* **79**, 115434 (2009).
  166. Zhang, L., Zhang, Y., Khodas, M., Valla, T. & Zaliznyak, I. A. Metal to Insulator Transition on the  $N=0$  Landau Level in Graphene. *Phys. Rev. Lett.* **105**, 46804 (2010).
  167. Miyazaki, H., Li, S., Kanda, A. & Tsukagoshi, K. Resistance modulation of multilayer graphene

- controlled by the gate electric field. *Semicond. Sci. Technol.* **25**, 034008(8) (2010).
168. Low, T. Ballistic-Ohmic quantum Hall plateau transition in a graphene p-n junction. *Phys. Rev. B* **80**, 205423 (2009).
169. Stegmann, T., Wolf, D. E. & Lorke, A. Magnetotransport along a boundary: from coherent electron focusing to edge channel transport. *New J. Phys.* **15**, 113047 (2013).
170. Chklovskii, D., Shklovskii, B. & Glazman, L. Electrostatics of edge channels. *Phys. Rev. B* **46**, (1992).

# 研究成果

## <原著論文>

本博士論文の内容を含むもの

1. “Dirac fermion reflector by ballistic graphene sawtooth-shaped npn junctions”  
S. Morikawa, Q. Wilmar, S. Masubuchi, K. Watanabe, T. Taniguchi, B. Plaçais, and T. Machida  
Semiconductor Science and Technology, <https://doi.org/10.1088/1361-6641/aa6102>.
2. “Comparison of magnetoresistances of triangular and rectangular ballistic graphene npn junctions”  
S. Morikawa, S. Masubuchi, K. Watanabe, T. Taniguchi, and T. Machida  
Japanese Journal of Applied Physics **55**, 100305 (2016).
3. “Imaging ballistic carrier trajectories in graphene using scanning gate microscopy”  
S. Morikawa, Z. Dou, S. -W. Wang, C. G. Smith, K. Watanabe, T. Taniguchi, S. Masubuchi, T. Machida,  
and M. R. Connolly  
Applied Physics Letters **107**, 243102 (2015).
4. “Edge-channel Transport of Dirac Fermions in Graphene Quantum Hall Junctions”  
T. Machida, S. Morikawa, S. Masubuchi, R. Moriya, M. Arai, K. Watanabe, and T. Taniguchi  
Journal of the Physical Society of Japan **84**, 121007 (2015).
5. “Edge-channel interferometer at the graphene quantum Hall pn junction”  
S. Morikawa, S. Masubuchi, R. Moriya, K. Watanabe, T. Taniguchi, and T. Machida  
Applied Physics Letters **106**, 183101 (2015).  
**Selected for a cover of the issue as a Featured Article.**
6. “Fabrication and characterization of high-mobility graphene p-n-p junctions encapsulated by hexagonal boron nitride”  
S. Masubuchi, S. Morikawa, M. Onuki, K. Iguchi, K. Watanabe, T. Taniguchi, and T. Machida  
Japanese Journal of Applied Physics **52**, 110105 (2013).

## その他

7. “Supercurrent in van der Waals Josephson junction”  
N. Yabuki, R. Moriya, M. Arai, Y. Sata, S. Morikawa, S. Masubuchi, and T. Machida  
Nature Communications **7**, 10616 (2016).

8. “Vertical Field Effect Transistor Based on Graphene/Transition Metal Dichalcogenide Van Der Waals Heterostructure”

R. Moriya, T. Yamaguchi, Y. Inoue, Y. Sata, S. Morikawa, S. Masubuchi, and T. Machida

ECS Transactions **69** (5), 357 (2015).

9. “Electric field modulation of Schottky barrier height in graphene/MoSe<sub>2</sub> van der Waals heterointerface”

Y. Sata, R. Moriya, S. Morikawa, N. Yabuki, S. Masubuchi, and T. Machida

Applied Physics Letters **107**, 023109 (2015).

10. “Influence of the density of states of graphene on the transport properties of graphene/MoS<sub>2</sub>/metal vertical field-effect transistors”

R. Moriya, T. Yamaguchi, Y. Inoue, Y. Sata, S. Morikawa, S. Masubuchi, and T. Machida

Applied Physics Letters **106**, 223103 (2015).

11. “Modulation of Schottky Barrier Height in Graphene/MoS<sub>2</sub>/Metal Vertical Heterostructure with Large Current ON-OFF Ratio”

Y. Sata, R. Moriya, T. Yamaguchi, Y. Inoue, S. Morikawa, N. Yabuki, S. Masubuchi, and T. Machida

Japanese Journal of Applied Physics **54**, 04DJ04 (2015).

**Selected for spotlights 2015.**

12. “Tunneling transport in a few monolayer-thick WS<sub>2</sub>/graphene heterojunction”

T. Yamaguchi, R. Moriya, Y. Inoue, S. Morikawa, S. Masubuchi, K. Watanabe, T. Taniguchi, and T. Machida

Applied Physics Letters **105**, 223109 (2014).

13. “Large current modulation in exfoliated-graphene/MoS<sub>2</sub>/metal vertical heterostructures”

R. Moriya, T. Yamaguchi, Y. Inoue, S. Morikawa, Y. Sata, S. Masubuchi, and T. Machida

Applied Physics Letters **105**, 083119 (2014).

14. “RF-MBE growth of cubic AlN on MgO (001) substrates via 2-step c-GaN buffer layer”

M. Kakuda, S. Morikawa, S. Kuboya, R. Katayama, H. Yaguchi, and K. Onabe

Journal of Crystal Growth **378**, 307 (2013)

15. “Electrical spin injection into graphene through a monolayer hexagonal boron nitride”

T. Yamaguchi, Y. Inoue, S. Masubuchi, S. Morikawa, M. Onuki, K. Watanabe, T. Taniguchi, R. Moriya, and T. Machida

Applied Physics Express **6**, 073001 (2013)

<解説記事>

1. “グラフェン npn 接合におけるコヒーレントなキャリア輸送現象”

町田友樹, 森川生, 増渕寛, 守谷頼, 渡邊賢司, 谷口尚

表面科学 **3**, 124 (2015).

<国際会議発表> (筆頭著者のみ抜粋)

1. “Manipulation of ballistic carrier trajectories in graphene by triangular shape npn junctions”

S. Morikawa, Q. Wilmart, S. Masubuchi, K. Watanabe, T. Taniguchi, B. Plaçais, and T. Machida

Graphene Week 2016, Warsaw, Poland (2016), Oral

2. “Oscillatory magnetotransport between co-propagating quantum Hall edge channels in graphene p-n junctions”

S. Morikawa, S. Masubuchi, R. Moriya, K. Watanabe, T. Taniguchi, and T. Machida

APS March Meeting 2015, Texas, USA (2015), Oral

3. “Quantum Interference in a Ballistic Graphene n-p-n Junction: Fabry-Perot Interference and a Novel Magnetoresistance Oscillation”

S. Morikawa, S. Masubuchi, R. Moriya, K. Watanabe, T. Taniguchi, and T. Machida

2014 International Conference on Solid State Devices and Materials (SSDM 2014), Tsukuba, Japan (2014), Oral

4. “Landau-level spectroscopy of graphene by tunneling through ultrathin hexagonal boron nitride”

S. Morikawa, S. Masubuchi, T. Yamaguchi, R. Moriya, Y. Inoue, K. Watanabe, T. Taniguchi, and T. Machida

Graphene Week 2014, Gothenburg, Sweden (2014), Oral

5. “Ballistic transport in graphene p-n junctions”

S. Morikawa, S. Masubuchi, M. Onuki, K. Watanabe, T. Taniguchi, and T. Machida

20th International Conference on Electronic Properties of Two-Dimensional Systems (EP2DS), Wroław, Poland (2013), Poster

6. “Magnetic Commensurability Effect in Ballistic Graphene”

S. Morikawa, S. Masubuchi, K. Iguchi, M. Onuki, T. Yamaguchi, M. Arai, K. Watanabe, T. Taniguchi, and T. Machida



2012 International Conference on Solid State Devices and Materials (SSDM 2012), Kyoto, Japan (2012),  
Poster

<国内会議発表> (筆頭著者のみ抜粋)

1. 楕形 npn 接合を用いたグラフェンにおけるバリスティック伝導制御

森川生, Q. Wilmart, 増渕寛, 渡邊賢司, 谷口尚, B. Plaçais, 町田友樹

日本物理学会第 72 回年次大会, 大阪大学, 大阪 (2017), Oral (発表予定)

2. グラフェン楕形 npn 接合を用いた Dirac Fermion 波の制御

森川生, Q. Wilmart, 増渕寛, 渡邊賢司, 谷口尚, B. Plaçais, 町田友樹

第 30 回ダイヤモンドシンポジウム, 東京大学, 東京 (2016), Oral

3. Imaging and manipulating ballistic carrier trajectories in graphene

森川生, 増渕寛, Z. Dou, M. R. Connolly, Q. Wilmart, B. Plaçais, 渡邊賢司, 谷口尚, 町田友樹

東京大学生産技術研究所光電子融合研究センター公開シンポジウム～光電子融合と先端材料～,  
東京大学, 東京 (2016), Poster

4. 高移動度グラフェンを用いたバリスティックかつコヒーレントな量子輸送現象の観測とその  
制御

森川生, 増渕寛, 守谷頼, 渡邊賢司, 谷口尚, Z. Dou, S. Wang, C. G. Smith, M. R. Connolly, 町田友  
樹

第 63 回応用物理学会春季学術講演会, 東京工業大学, 東京 (2016), Oral, 招待講演

5. 高移動度グラフェン npn 接合を用いたエッジチャネル干渉系の実現

森川生, 増渕寛, 守谷頼, 渡邊賢司, 谷口尚, 町田友樹

第 76 回応用物理学会秋季学術講演会, 名古屋国際会議場, 愛知 (2015), Oral

6. グラフェンにおける電子波干渉計 ～相対論的電子系を用いた光学～

森川生

UTokyo IIS PhD Student Live, 東京大学, 東京 (2015), Poster

7. h-BN トンネルバリアを用いたグラフェンのランダウ準位スペクトロスコピー

森川生, 増渕寛, 守谷頼, 山口健洋, 井上義久, 渡邊賢司, 谷口尚, 町田友樹

日本物理学会第 70 回年次大会, 早稲田大学, 東京 (2015), Oral

8. 高移動度グラフェン npn 接合における量子干渉

森川生, 増渕覚, 守谷頼, 渡邊賢司, 谷口尚, 町田友樹

第 28 回ダイヤモンドシンポジウム, 東京電機大学, 東京 (2014), Poster

#### 9. Vertical Transport in Graphene/Ultrathin h-BN/Graphene van der Waals Heterostructures

森川生, 増渕覚, 山口健洋, 守谷頼, 井上義久, 渡邊賢司, 谷口尚, 町田友樹

第 47 回フラーレン・ナノチューブ・グラフェン総合シンポジウム, 名古屋大学, 愛知 (2014), Oral

#### 10. グラフェン npn 接合における量子干渉効果

森川生

光電子融合ワークショップ, 東京大学, 東京 (2014), Oral, 招待講演

#### 11. バリスティックグラフェン npn 接合における量子干渉

森川生, 増渕覚, 守谷頼, 渡邊賢司, 谷口尚, 町田友樹

東京大学ナノ量子情報エレクトロニクス研究機構公開シンポジウム～ナノ量子情報エレクトロニクスの新展開～, 東京大学, 東京 (2014), Poster

#### 12. Quantum interference in a ballistic graphene n-p-n junction: from Fabry-Perot to edge channel interference

S. Morikawa, S. Masubuchi, R. Moriya, K. Watanabe, T. Taniguchi, and T. Machida

東京大学生産技術研究所光電子融合研究センター公開シンポジウム～光電子融合の展望～, 東京大学, 東京 (2014), Poster

#### 13. グラフェン pn 接合量子ホール系における磁気抵抗振動

森川生, 増渕覚, 守谷頼, 渡邊賢司, 谷口尚, 町田友樹

日本物理学会第 69 回年次大会, 東海大学, 神奈川 (2014), Oral

#### 14. Quantum interference in a ballistic graphene n-p-n junction: from Fabry-Perot to edge channel interference

森川生, 増渕覚, 守谷頼, 渡邊賢司, 谷口尚, 町田友樹

第 46 回フラーレン・ナノチューブ・グラフェン総合シンポジウム, 東京大学, 東京 (2014), Poster

#### 15. グラフェン npn 接合における Fabry-Perot 干渉

森川生, 増渕覚, 大貫雅広, 渡邊賢司, 谷口尚, 町田友樹

第 27 回ダイヤモンドシンポジウム, 日本工業大学, 埼玉 (2013), Oral

#### 16. グラフェン npn 接合における Fabry-Perot 干渉

森川生, 増渕寛, 大貫雅広, 渡邊賢司, 谷口尚, 町田友樹

日本物理学会第 68 回年次大会, 広島大学, 広島 (2013), Oral

#### 17. バリステックグラフェンにおける磁気整合効果

森川生, 増渕寛, 大貫雅広, 井口和之, 荒井美穂, 山口健洋, 渡邊賢司, 谷口尚, 町田友樹

日本物理学会 2012 年秋季大会, 横浜国立大学, 神奈川 (2012), Oral

#### <海外派遣>

1. 2016 年 9 月-10 月 Visiting Research Student, ケンブリッジ大学, 英国

2. 2015 年 4 月-7 月 Visiting Research Student, ケンブリッジ大学, 英国

3. 2014 年 6 月-7 月 日独若手専門家交流, ドイツ

#### <受賞>

1. 第 30 回ダイヤモンドシンポジウム 優秀講演賞 (2016 年 11 月)

2. 第 39 回応用物理学会講演奨励賞 (2015 年 9 月)

3. UTokyo IIS PhD Student Live, Best Presentation Award (2015 年 7 月)

4. 第 28 回ダイヤモンドシンポジウム 優秀ポスター賞 (2014 年 11 月)

5. 第 46 回フラーレン・ナノチューブ・グラフェン総合シンポジウム 若手奨励賞 (2014 年 3 月)

## 謝辞

本論文「グラフェン量子輸送現象の電子光学的制御」は、筆者が2012～2016年度の5年間、東京大学大学院工学系研究科物理工学専攻に属している間に得た研究成果についてまとめた、博士学位論文です。研究の遂行および本論文の執筆に当たっては、多くの方々から、多大なるご支援と貴重なご助言を頂きました。以下に、感謝の意を記させていただきます。

指導教員の町田友樹准教授には何一つ不自由のない研究環境を与えていただきました。研究内容への具体的なアドバイスはもとより、研究・仕事・生活をする上でプロフェッショナルが取べき態度を明に暗に指導いただき、何度も感銘を受けました。また時に消極的な姿勢を見せる筆者に対して、自信を持てるような叱咤激励をくださり、海外への共同研究や学会発表にチャレンジする際は、常に前向きなサポートをしていただきました。町田研究室での5年間は、僕の人生の中で最も密度の濃い5年間でしたし、その大部分が間違いなく町田先生の厳しくも心のこもったご指導によるものと確信しています。

助教の守谷頼氏には、万人を笑顔にするユーモアと優しさで、研究室の雰囲気明るくしていただきました。一方で、筆者の研究結果に対しては、常に厳しくも建設的なコメントをくださり、それを考え直すことで研究結果の理解が進んだことは一度や二度ではありません。また、投稿した論文に対して査読者から厳しいコメントをもらい、筆者が弱気になって他の論文誌への再投稿を検討しているときに、「博士課程の学生は逃げてはだめだ、戦うべきだ」と叱咤激励していただいたことは今でも強く記憶に残っています。本質から目を逸らさず、常に高みを目指す姿勢は、今後も見習い続けていきたいと思っています。

特任講師の増渕寛氏は、装置一つ一つの使い方、研究テーマの設定の仕方など、修士1年のころから研究のイロハを教えていただいた存在です。また、その神業的なデバイス作製法考案のセンス・新規実験装置を立ち上げる力など、真似したくても真似できないお力にいつも感銘を受けていました。博士課程最終学年になっても自分が能力的に全く追いつけないことが正直悔しかったですし、そのたびに尊敬をより一層強める存在でもありました。増渕氏なしでの大学院生活は想像することができませんし、常に自分にはないものを持っている先輩として、大きな背中を見せ続けてくださったことに感謝申し上げたいと思います。

講師の星裕介氏には、半導体二次元電子系やMBE結晶成長に関して、筆者が勉強不足のため疑問点が生じた時、何度も親身に質問に答えていただきました。また、他分野から二次元結晶の分野に來られてすぐに、ご自身の専門性を生かして次々と結果を出していく姿に、自分の研究している狭いフィールドだけを見てはいけな、ということをお教えていただき、大変感銘を受けました。

特任研究員の荒井美穂氏には、大小問わず研究室で起こる様々なトラブルに、いつも親身に対応していただきました。特に実験装置のトラブルでは、冷静さを失ってしまいがちな筆

者に、どんなに忙しくても的確なアドバイスを下さりました。また、筆者が学生で最年長になった後にも、常に頼れるお姉さんの存在として、お昼ご飯を食べながらいろいろな相談に乗っていただき、心の平安を保つことができました。

秘書の後藤茉由氏には、不自由なく研究ができるような日々の業務のサポートをしていただきました。また、研究の息抜きとかこつて、お仕事の邪魔にも関わらずセミナー室で話しかけても、優しく対応していただきました。

卒業生の山口健洋氏には、いつも筆者のことを本当に気にかけいただき、研究内容から進路相談まで、どんなに忙しくても親身に相談に乗っていただきました。研究も遊びも仕事も、常に真摯にそしてパワフルに全力投球する姿に、自分も背中を追って頑張らねばと思えましたし、卒業された今でも、尊敬できそして信頼できる先輩として居続けてくださることに深く感謝申し上げたいと思います。

卒業生の大貫雅広氏と梅澤青司氏には、一学年上の先輩として大変可愛がっていただきました。何か困ったことがあると、こちらから相談する前に声をかけて解決策を提示してくださいましたし、休日深夜問わず積極的に実験するその背中から、筆者はクラシックな町田研の研究スタイルを学び、真似ることができました。

卒業生の井上義久氏には、同期としてとても仲良くしてもらいました。その頭の回転の速さに驚かされることの連続でしたし、今でも、氏の昔話で研究室の雰囲気明るくすることができる稀有な存在です。住む場所は少し離れてしまいましたが、連絡を取り合って引き続き仲良くしてもらえればと思います。

博士課程2年の佐田洋太氏とは、特にお酒が入ったときに、古き良き町田研の昔話で盛り上がることができ、とても楽しかったです。また、その丁寧な仕事ぶりから、筆者が不在な時や忙しい時に、雑務や後輩の面倒を信頼して任せることができました。博士課程もあと1年ですね、ラストスパート頑張ってください。

卒業生の柏木麗奈氏・井上尚子氏・矢吹直人氏には、真面目で賢い良き後輩として、そして礼儀正しいながらも先輩の痒いところをきちんと突くことのできる話し相手として、いつも研究室を楽しいものにしてもらいました。一足早く社会で働かれている三氏に負けなように筆者も頑張らねば、と身が引き締まる思いです。

修士課程2年の浅川友太氏・森本将崇氏・山崎雄司氏には、筆者のくだらない雑談や愚痴に、いつも嫌な顔一つせず相手をしていただき、苦しいことの多い最後の二年間をととても和やかなものにして頂きました。三人そろって頭の回転の速さと勤勉さを兼ね備えた物理工学専攻の鏡のような後輩です。来年からは企業・官庁で思う存分活躍してください。

修士課程1年の諫山都子氏・小野寺桃子氏には、その明るさと、先輩に負けず劣らない個性で研究室の雰囲気を盛り上げてもらいました。また、二人からもらう純粋な質問は得てして大変本質的なものが多く、それに答える上で筆者も勉強させてもらいました。小野寺氏には共同研究者として、特に試料作製を手伝ってもらい、大変助かりました。

I would like to express sincere gratitude to Mr. Ziwei Dou and Dr. Malcolm Connolly in Cavendish Laboratory in University of Cambridge for giving me a great opportunity to perform the scanning gate microscopy measurement. I should thank not only their kind acceptance of my proposal about collaboration but also their gentle and heartfelt hospitality during my visit. Absolutely because of you, I will never forget the joyful and wonderful time which I spent in Cambridge.

物質材料機構の谷口尚氏・渡邊賢司氏には、高品質な h-BN 結晶を提供していただきました。本研究で得た全ての結果は、氏の h-BN 結晶がなければ得ることができなかったものであり、深く感謝申し上げます。また、学会などでお会いした時は、材料科学のプロフェッショナルの視点で本質を突く質問をいくつも頂くことができましたし、お二人とご一緒するお酒の席はいつもユーモアに溢れとても楽しいものでした。

I would also really appreciate Dr. Quentin Wilmart and Prof. Dr. Bernard Plaças in Ecole Normale Supérieure in Paris for performing the impressive numerical simulation about ballistic saw-tooth shaped graphene npn junctions. Their data and comments from a theoretical side considerably help me to make our data more sophisticated.

流体テクノ室の北原直尚氏と金子和行氏には、本実験に必要な液体ヘリウムの供給を行っていただきました。長期休暇の前の法外な供給依頼や、不注意による種々のトラブルにも、いつも優しく笑顔で対応していただき本当に助かりました、深く感謝申し上げます。

荒川泰彦教授、長田俊人准教授、勝本信吾教授、樽茶清悟教授には、大変お忙しい中、本博士論文の審査に労をとっていただきました。先生方の鋭いご指摘により、本論文の質を向上させることができたと心から感じております、深く感謝申し上げます。荒川教授には、ALPS プログラムの副指導教員も担当頂き、視野が狭くなりがちな筆者に本質に迫る鋭い質問をいくつも問いかけてくださり、大変感銘を受けました。

荒川・岩本研石田悟己氏には、エッチング装置を使用する上で、便宜を図っていただきました。メンテナンスに手間のかかる装置の管理を一手に引き受けて頂き、大変助かりました。

杉山桜子氏には、筆者が学生生活の中でどんな勝手な行動を取ろうとも、常に心優しい気遣いと明るい笑顔で、寄り添い励まし、辛い時の精神的支えとなっていただきました。

兄には、身内ながらも最も信頼できる先輩として、様々なことの相談に乗っていただきました。特に、大事な発表の前には、忙しい中時間を割いてもらい、貴重な助言を頂きました。

最後になりましたが、時に優しく時に厳しく、育て励まし続け、経済的にも精神的にも長い間援助してくださった父・母に心から深く感謝し、本論文の結びとさせていただきます。

皆様、本当に有難うございました。

2017 年 1 月 12 日 研究室にて  
森川 生