

論文の内容の要旨

論文題目 超強磁場下におけるグラフェンのサイクロトロン共鳴

氏名 齋藤 宏晃

1. 背景と研究目的

単層グラフェンは、強磁場下においてディラック電子の線形分散に由来する磁場の平方根に比例するランダウ準位や、半整数量子ホール効果といった特異な現象が発現する。一方、二層グラフェンは、バンド分散がディラック点付近で放物線状になったような形状を示す。そのため、低磁場領域では磁場に線形に比例する通常の二次元半導体と同様のランダウ準位の磁場依存性を示すが、強磁場領域では線形分散の寄与が混ざり、非線形なランダウ準位が現れる。

バレー自由度はブリルアンゾーンにおける K 点、 K' 点の自由度である。これまでの単層グラフェンの報告によると、強磁場下での量子ホール効果の測定や磁気光学測定において、磁場に依存してバレー分裂が増大するふるまいが報告されている。一方、二層グラフェンの場合は、電場効果によってギャップが開き、バレー対称性が破れたランダウ準位が観測されることが理論によって示唆されている。

以上の現象を確かめるためには、強磁場下での測定が必要であるが、50 T 以上の磁場をパルスマグネットによって印加すると駆動電流がもたらすノイズによって、電気的な測定は困難になる。まして、100 T を超えるような超強磁場下ではほぼ不可能に近いことから、ノイズに強い非接触な手法である光学測定によって物性測定、具体的にはランダウ準位間遷移（サイクロトロン共鳴）の観測を行うのが望ましい。特にグラフェンのような低次元物質では、試料のエッジ状態が電気的測定において反映されることにより本質的な物性を覆い隠す恐れがあるが、光学的な測定では、光を照射した部分のみの測定ができるため、グラフェンの本質的な物性を抽出しやすいといった利点もある。また、グラフェンの線形バンド分散によって、電子間相互作用がサイクロトロン共鳴に現れること（Kohn の定理の破れ）も期待される。これまでグラファイトを除いた純粋な単層グラフェンに関しては、磁気光学測定は最大 80 T 程度までしか行われていない状況にあり、二層グラフェンについては、大面積の質の良い試料が得られないことから、剥離グラフェンでの 20 T までの測定にとどまっている。

また、グラフェン試料に特殊な歪みを印加することで、ランダウ準位状のスペクトルが STS 測定などにおいて観測されており、スペクトル形状から最大 600 T もの擬似的な磁場が試料内に生じているという報告がある。しかし、実際に強磁場を印加した場合に、前述したバレー分裂や電子相関等の影響で強磁場領域まで低磁場領域の理論式が成り立つ保証はないため、実験的に超強磁場を印加しランダウ準位構造を調べる必要がある。

このような状況の中で、本論文では超強磁場下でのグラフェンのランダウ準位構造を理解するために、600 T という超強磁場下での赤外領域における磁気光学測定系の開発を行い、グラフェン由来のサイクロトロン共鳴の観測を目指し、実験を行った。特に、 $n=0$ のランダウ準位は、その対称性からバレー分裂や擬スピン分裂といった効果によってランダウ準位の縮退が解かれやすいため、 $n=0$ のランダウ準位に絡んだ、サイクロトロン共鳴の観測を目指した。また、二層グラフェンについては、光電子分光に加えて、超強磁場領域のサイクロトロン共鳴を行うことで、より信頼性のあるバンドパラメータの見積もりを行い、共鳴エネルギーの計算との比較を行った。

2. 実験手法

測定に用いたマグネットは一巻きコイル法(< 170 T)と電磁濃縮法(< 600 T)である。光源には赤外ガスレーザー(CO₂, CO, HeNe, 波長 3~10 μm)と、半導体レーザー(波長 1.55 μm, 2 μm)を、共鳴エネルギーとピーク磁場に依じて使い分けた。検出には、2 μm 以上の領域では HgCdTe 光起電力型の検出器を用い、1.8 μm 以下の領域では赤外用 PIN フォトダイオードを用いている。一巻きコイル法での光学系はミラー系によって直接レーザー光を試料に入射しているが、電磁濃縮法では光学ファイバーによってレーザー光を導入している。これは、ピックアップコイルに誘導される起電力を減少させるために、ピックアップコイルをファイバーに巻きつけ、電磁濃縮法を用いたミラー系では実現できない赤外レーザーのスポット径(< φ 1)を達成した。

本論文では、SiC 基板を加熱することで作成したエピタキシャルグラフェンを用いた。この方法では、数 cm オーダーの大面積のグラフェンが作成可能であるが、成長基板面によってその物性が大きく異なる。C 面(000-1)に成長した場合は、多層グラフェンが成長されるが、各グラフェン層の面内対称性が破れているため、単層グラフェンとよく似た性質を示す。移動度が 10,000 cm²/Vs 程度になり、物性測定が容易になるため、これまで多くのサイクロトロン共鳴測定の報告がなされている。一方 Si 面(0001)では、移動度が低く(~1,000 cm²/Vs)、サイクロトロン共鳴の測定には向かないが、層数制御性がよく単層グラフェンや二層グラフェンといったグラフェンの本質的な物性を調べることができる。本論文では、一巻きコイル法、及び電磁濃縮法による 100 T 以上の強磁場発生が可能のため、移動度が低くキャリア数が多い試料でも、サイクロトロン共鳴条件を満たすことが可能になる。

3. 実験結果と考察

図 1(a)は各レーザーを入射した場合の、単層グラフェンの磁気光吸収測定結果をまとめたものであり、レーザーのエネルギーによって共鳴磁場が変化する、明確なサイクロトロン共鳴吸収の観測に成功した。図 1(b)は縦軸をサイクロトロン共鳴エネルギー、横軸を共鳴磁場としてプロットしたものである。100 T 以上の領域でも共鳴エネルギーが $B^{1/2}$ に比例しており、フィッティングから見積もられたフェルミ速度は、 $0.9 \pm 0.04 \times 10^6$ m/s となり理論値 (1×10^6 m/s) と比べてわずかに小さい値であるが、過去の文献値の範囲内であることがわかった。また、サイクロトロン共鳴遷移からそれぞれの試料についてフェルミエネルギーを見積もると van der Pauw 法による見積もりと矛盾が無かった。

続いて電磁濃縮法を用いた磁気吸収測定の結果についてである。電磁濃縮法において、これまでピックアップコイルで測定した磁場の値がどれだけ正確なのかが問題となっていたが、近年、物性研究所において磁場測定精度の向上や、ピックアップコイルの伝送特性の考慮に加え、標準試料を用いたファラデー回転測定により、これまでに比べ非常に信頼性の高い磁場の較正に成功している。筆者はこのような磁場の較正を物性測定用大型コイルに対して行い、ファラデー回転角と磁場の関係から 650 T までの信頼性の高い磁場データを得た。この較正磁場を用いて、単層グラフェンの磁気吸収測定結果を解析すると、図 2(a)のように 360 T 付近に明確な吸収ピークを観測した。サイクロトロン共鳴エネルギーとピーク磁場をプロットすると、図 2(b)のようになり、一巻きコイル法で得られた低磁場側のフィッティング曲線上に乗ることから、このサイクロトロン共鳴には特異な電子相関の効果はなく、低磁場領域のランダウ準位が少なくとも 360 T 程度まで成り立つことがわかった。また、同一基板から取り出した別の試料での測定では、単層グラフェンの共鳴信号に加え、10%ほどの二層グラフェン由来の信号が付随す

る効果も確認した。これは基板の位置によって、試料の分布があり、二層グラフェンが含まれている領域が存在していることを示唆しているが、AFM やラマンマッピングの測定によって、単層グラフェンと二層グラフェンの分布の存在(8:1~9:1)が確認され、サイクロトロン共鳴によって見積もられた一層グラフェンと二層グラフェンの割合と同程度であった。

また、二層グラフェンでも、同様の磁気吸収測定を行い、図 3(a)の矢印に示したようにいくつか吸収構造が見て取れる、解析に際し、まず光電子分光によって得られたバンド構造(図 3(b))に対して、大まかにバンドパラメータを見積もり、 $\Delta = 45 \text{ meV}$, $v = 1 \times 10^6 \text{ m/s}$, $\gamma_1 = 0.4 \text{ eV}$ となった。このパラメータを元に、電磁濃縮法、及び一巻きコイル法での磁気光学測定によって得られたサイクロトロン共鳴ピークを、ギャップの開いた二層グラフェンのランダウ準位によって最適フィッティングすると図 4 となり、バンドパラメータを $\Delta = 33 \pm 20 \text{ meV}$, $v = 0.9 \pm 0.05 \times 10^6 \text{ m/s}$, $\gamma_1 = 440 \pm 40 \text{ meV}$ と見積もった。

4. まとめ

一巻きコイル法、及び電磁濃縮法を用いて、600 T 以上の超強磁場領域まで測定可能な赤外磁気光吸収実験系を構築し、単層グラフェン、及び二層グラフェンの磁気光吸収実験を行った。その結果、それぞれのグラフェン由来のサイクロトロン共鳴の観測に成功しフェルミ速度などの物性パラメータを見積もった。本論文によって、650 T もの超強磁場下においても、グラフェンのディラック電子由来の特異なランダウ準位が低磁場領域と同一の磁場依存性を持つことを、実際の強磁場下での実験によって示した。さらに二層グラフェンのバンドパラメータについて光電子分光の測定と併せてより信頼性のある値が得られた。

Figure caption

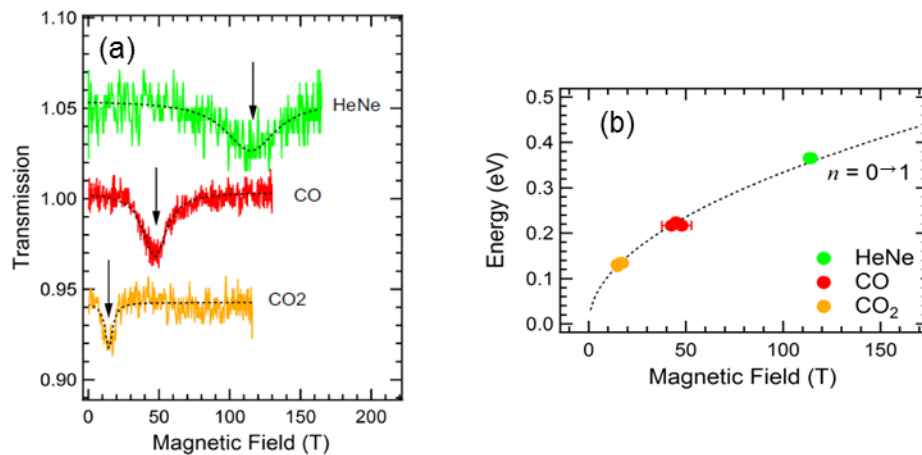


図 1. 一巻きコイル法を用いた単層グラフェンの(a)磁気光吸収測定結果。(HeNe : 370 meV, CO : 230 meV, CO₂ : 130 meV)(b)サイクロトロン共鳴遷移図。

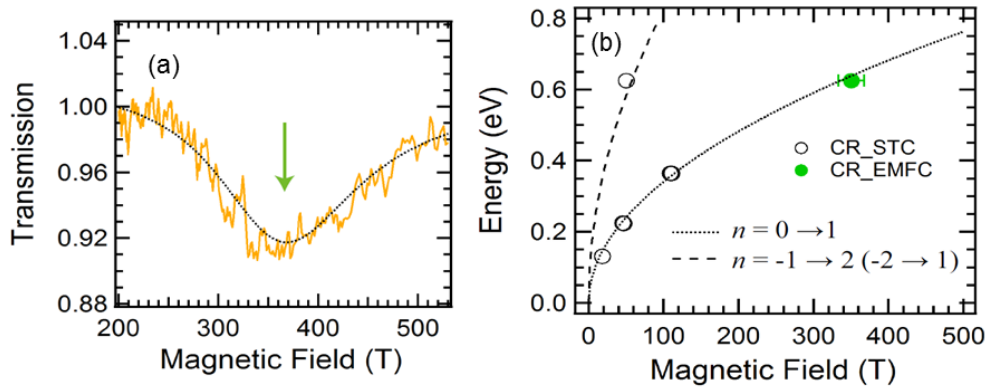


図2. 電磁濃縮法での測定で得られた、単層グラフェンでの(a)磁気吸収測定結果と(b)サイクロトロン共鳴エネルギーの磁場依存性(CR_STCは一巻きコイル法で得られた共鳴で、CR_EMFCは電磁濃縮法で得られた共鳴)。フィッティング曲線は、各ランダウ準位間遷移を示している。

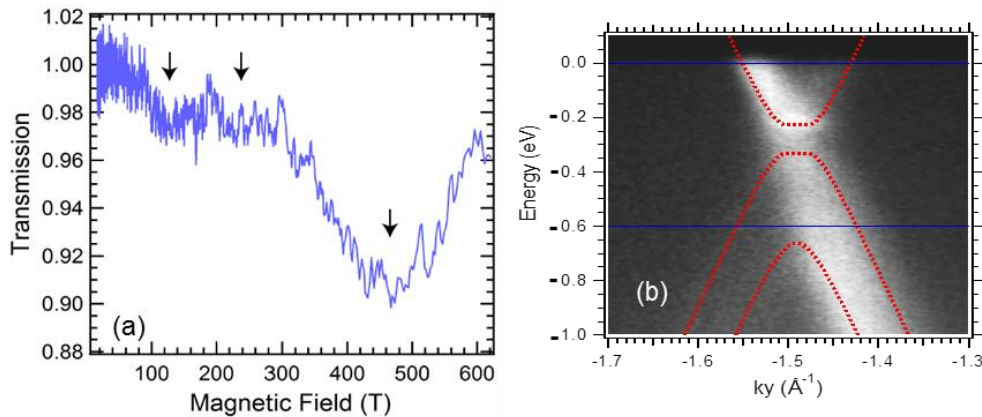


図3. (a) 電磁濃縮法によって得られた二層グラフェンの磁気吸収測定結果と(b)光電子分光測定によって得られた、バンド構造とフィッティング (赤点線)。

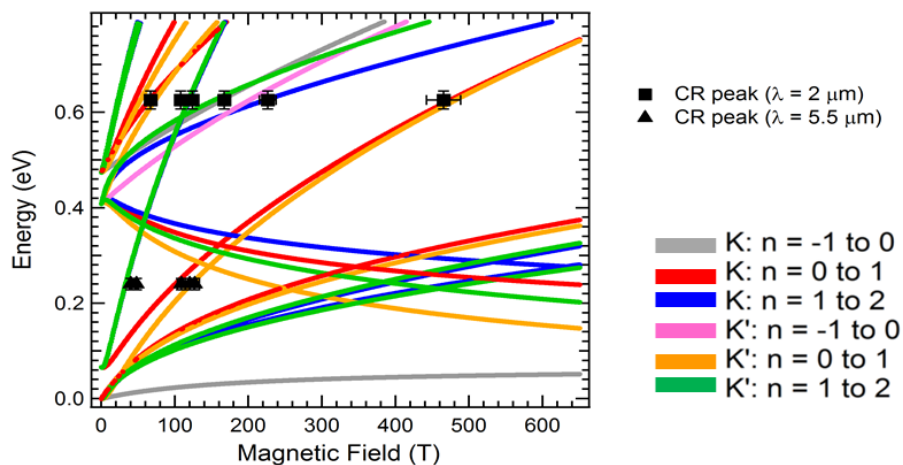


図4. 電磁濃縮法での測定で得られた、二層グラフェンのサイクロトロン共鳴エネルギーの磁場依存性。バレー対称性が破れた各ランダウ準位間遷移をそれぞれ色分けし、各レーザーで得られた共鳴ピークも併せて示している。