

氏名	町田友樹
所属機関	東京大学 生産技術研究所
研究題目	グラフェンナノ構造を用いた超高感度電磁波検出の実現

### 1. 研究の目的

グラフェンは炭素原子が蜂の巣格子状に配列された単原子層膜である。2005年に初めて発見され、基礎・応用の両面で注目を集めている新規材料である。本研究では、グラフェンナノ構造を用いた超高感度電磁波検出（中赤外～THz領域）を目的として研究を推進した。中赤外～テラヘルツ（THz）領域は光波と電波の狭間に相当し、技術的な課題が多く残されている。特に、高感度検出器の実現はTHz電磁波応用における重要な鍵である。強磁場中の半導体二次元電子系または半導体量子ドットにおけるサイクロトロン共鳴吸収を利用した超高感度光検出が実現されているが、量子ホール効果が観測可能な極低温（10 mK～4.2 K程度）でしか動作させることができないという弱点を有している。検出可能な波長域が狭いという弱点もあり、実用に向けたブレークスルー技術が必要である。

一方、グラフェン中のキャリアはディラックフェルミオンという相対論的粒子として振る舞う。ディラックフェルミオンが強磁場中で形成するランダウ準位は一般的な半導体二次元電子系のランダウ準位と大きく異なる。エネルギー準位間隔が遙かに大きいため、77 K～室温でも量子ホール効果が観測可能である。サイクロトロン共鳴における光学遷移も異なるため、幅広い波長域での光検出が可能になる。グラフェンを利用することにより、既存の半導体材料では実現できない温度域・検出波長域で動作可能な超高感度電磁波検出を実現し、グラフェンオプトエレクトロニクスの創成を目指す。

### 2. 研究の内容(手法、経過、評価など)

#### ①グラフェン/h-BNの作製

スコッチテープを用いたメカニカル劈開法により単層グラフェンをPMMA膜コートしたシリコン基板上へ作製する。同様にスコッチテープを用いた劈開法により六法晶窒化ホウ素（h-BN）をシリコン基板上へ作製する。PMMA上のグラフェンをh-BN上へ転写し、PMMA除去、アニール、電子線リソグラフィ、酸素プラズマエッチング、金属電極蒸着の過程により、高移動度グラフェン/h-BN素子を作製する。Si基板上に作製されたグラフェンに比べ、SiO<sub>2</sub>との相互作用に起因する外因的なキャリア散乱が抑制されるため、1桁以上高いキャリア移動度が得られている。

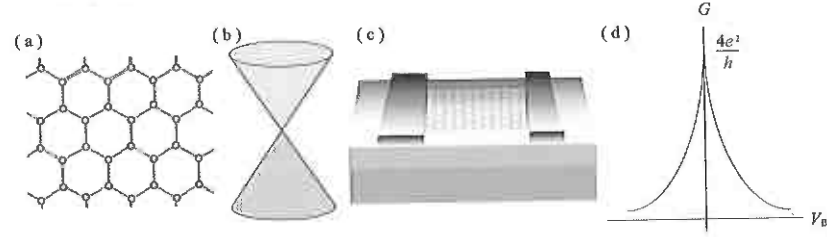


図1 (a)グラフェンは炭素原子が2次元的に配列された単原子層膜であり、(b)特異なエネルギー分散関係を持ち、ディラックフェルミオンが電気伝導特性を決定する。(c)シリコン基板上に単層グラフェンを作製することによりFET素子が実現でき、(d)バックゲート電圧の印加により電子/ホールが注入される。

#### ②中赤外光応答の検出

グラフェンに磁場を印加することにより、ディラックフェルミオンのエネルギー準位がランダウ準位に量子化する。このランダウ準位間隔エネルギーに相当する波長の中赤外光を照射することによってサイクロトロン共鳴吸収が生じ、電気伝導測定を通じて光応答を検出する。

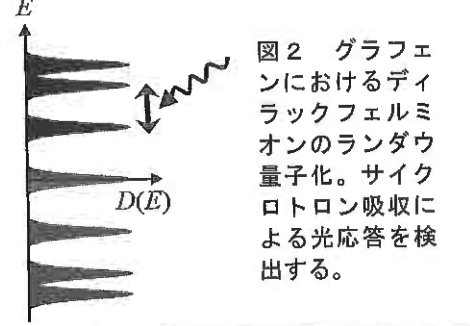


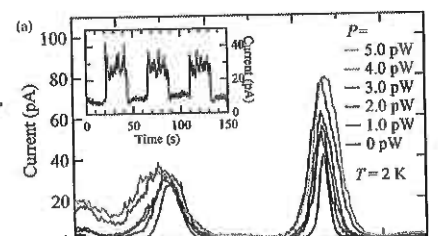
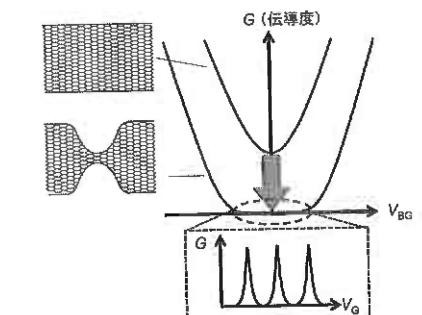
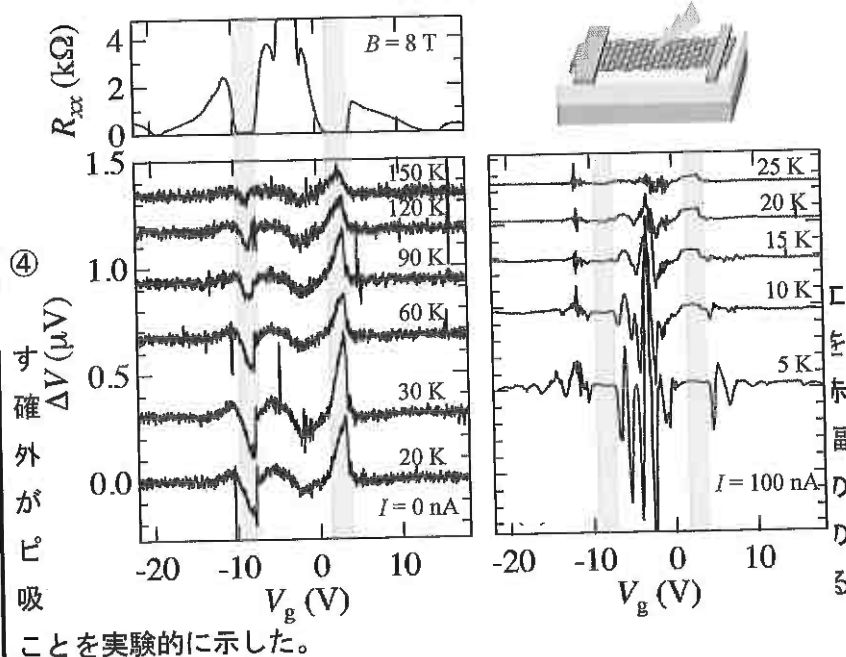
図2 グラフェンにおけるディラックフェルミオンのランダウ量子化。サイクロトロン吸収による光応答を検出する。

## 2. 研究の内容(続き)(書ききれない場合には、同一形態のページを追加しても結構です)

### ③サイクロトロン共鳴吸収に起因する光起電力効果の観測

グラフェン/h-BN ホールパー型素子に対して波長  $10.6 \mu\text{m}$  の中赤外光を照射することにより光応答の測定を行ったところ、メカニズムの異なる2種類の光応答信号が観測された。一方の光応答信号は量子ホール状態間遷移領域で観測され、低温・大バイアス電流の条件下で支配的である。もう一方の光応答信号は量子ホール状態で観測され、高温・小バイアス電流の条件下で支配的である。前者の信号強度はバイアス電流に比例し、広い磁場範囲の量子ホール状態間遷移領域で観測される。中赤外光の吸収により電子温度が上昇し、グラフェンの抵抗値変化を通じて、バイアス電流に比例する光応答が観測されていると考えられる。つまり、ポロメトリック効果に起因するものである。一方、後者の信号強度はバイアス電流に依存せず、バイアス電流値ゼロでも観測される。サイクロトロン共鳴に対応する磁場でのみ共鳴的に観測されるため、サイクロトロン吸収に起因する光起電力効果と考えられる。両者の温度依存性は顕著に異なり、ポロメトリック効果による光応答が低温のみで観測されるのに対し、サイクロトロン吸収に起因する光起電力効果は  $200 \text{ K}$  程度の比較的高温域まで観測可能である。素子応用の観点からは  $77 \text{ K}$  以上の実用温度域における超高感度光検出の実現が望まれており、グラフェン高感度光検出器への応用可能性を示している。光起電力効果のメカニズムについても系統的な検討を行い、量子ホール端状態伝導が重要な役割をはたしていることを実験的に示した。

図3 高移動度グラフェン/h-BNにおける光応答。量子ホール状態におけるサイクロトロン吸収に起因する光起電力効果(左図)と量子ホール状態間遷移領域におけるポロメトリック効果に起因する光抵抗効果(右図)。



### 3. 研究の結論、今後の課題

#### サイクロトロン共鳴吸収に起因する光起電力効果の観測

メカニカル劈開法と原子層転写技術により作製した高移動度グラフェン/h-BN ファンデルワールスヘテロ構造において、サイクロトロン共鳴吸収による光起電力効果を観測した。今後の課題として下記が挙げられる。

- ・ 光検出感度の定量的評価
- ・ 光起電力効果の物理メカニズムの解明
- ・ アンテナ構造の付与による光検出感度の向上
- ・ 二層グラフェン、ツイスト二層グラフェンにおける特異なランダウ準位の直接的な観測への利用
- ・ 量子ホール量子ドットとの組み合わせによる光子検出の実現

さらなる研究により上記の課題や研究テーマが解決・実現できれば、グラフェンを用いた高感度中赤外光検出器としての応用可能性があり、グラフェンオプトエレクトロニクスを開拓することが可能になる。グラフェン量子ホール系の基礎物性を調べるための実験ツールとしての役割も大きい。

#### グラフェンナノリボンにおける中赤外光応答の観測

グラフェンを幅 100 nm 以下の細いチャンネル状に加工することでグラフェンナノリボン素子を作製し、ポロメトリック効果による中赤外光検出を実現した。今後の課題として下記が挙げられる。

- ・ 量子ホール量子ドットの利用
- ・ 量子ホール並列二重量子ドットの利用
- ・ 光検出感度の定量的評価

グラフェンは比熱が極めて小さい材料であるという特異な物性を利用しており、め高感度・高速応答が期待できるポロメータ素子としての可能性を探究する。

#### グラフェン/h-BN ファンデルワールスヘテロ構造

本研究では高移動度グラフェン/h-BN ファンデルワールスヘテロ構造をメカニカル劈開法と原子層転写技術により作製している。研究開始時点では  $100,000 \text{ cm}^2/\text{Vs}$  程度 (4.2 K) だったキャリア移動度が現在では  $1,000,000 \text{ cm}^2/\text{Vs}$  (4.2 K) 程度にまで向上している。グラフェンのみならず、遷移金属ダイカルコゲナイド  $\text{MoS}_2$ ,  $\text{MoSe}_2$ ,  $\text{WS}_2$ ,  $\text{WSe}_2$  など利用が可能になり、さらには超伝導体  $\text{NbSe}_2$ 、強磁性体  $\text{Fe}_{0.25}\text{TaS}_2$  なども材料もファンデルワールス接合に組み込むことが可能になってきた。ファンデルワールス接合では格子整合の制約が無く、理想的な超格子が形成可能である。この特徴を活用して、複合原子層ファンデルワールス接合の基礎および応用への研究を推進することが今後の重要な課題である。

#### 4. 成果の価値(とくに判りやすく書いて下さい)

##### 4. 1. 社会的価値

グラフェンは既存の材料系では得られない極めて高いキャリア移動度を示し、エレクトロニクス応用の観点から注目を集めている。一方、グラフェンはエネルギーギャップを持たないため、光物性については未開拓な領域が多い。本研究で実現したグラフェンにおける中赤外光検出を発展させることで、光技術との融合によるグラフェンオプトエレクトロニクスという新たな研究開発領域を創成できる。光検出器の実用の観点からも、0.3 K という極低温が必要な現状の半導体量子ドット単一光子検出器を原理的には 77 K という実用的な温度領域で動作させられる可能性を秘めており、物性物理学、天文学における極微小光分光の発展へ寄与できる。

##### 4. 2. 学術的価値

グラフェンの量子輸送現象、特に強磁場で観測されるランダウ量子化と量子ホール効果は固体物理学における重要なトピックである。本研究で観測した単層グラフェンにおけるサイクロトロン共鳴の技術を二層グラフェン、ツイスト二層グラフェン、モアレ周期ポテンシャルを導入した単層グラフェン、平行磁場を印加した三層グラフェン等へ展開することで、グラフェン量子ホール系において形成される特異なランダウ準位の構造を直接的に決定することができる。フェルミ面のトポロジー変化に対応する Lifshitz 転移の観測やランダウ準位反交差の観測、trigonal warping による光学遷移選択則の変化等、通常の電気伝導測定だけでは得ることの出来ない情報が実験的にアクセス可能になると期待している。

##### 4. 3. 成果論文(本研究で得られた論文等を年代順に書いて下さい。未発表のものは公表予定を書いて下さい)

1. Photovoltaic infrared photoresponse of the high-mobility graphene quantum Hall system due to cyclotron resonance  
S. Masubuchi, M. Onuki, M. Arai, T. Yamaguchi, K. Watanabe, T. Taniguchi, and T. Machida  
Physical Review B **88**, 121402-1-5 (2013).
2. Mid-infrared photoresponse of graphene nanoribbon bolometer  
M. Arai, M. Onuki, S. Masubuchi, R. Moriya, and T. Machida  
Japanese Journal of Applied Physics **53**, 035101-1-4 (2014).