

博士学位論文

ファンデルワールスヘテロ構造
における量子ポイントコンタクトの実現

2022年2月 提出

千葉大学大学院 融合理工学府 先進理化学専攻 物質科学コース

坂梨 昂平

(千葉大学審査学位論文)

ファンデルワールスヘテロ構造 における量子ポイントコンタクトの実現

2022年2月 提出

千葉大学大学院 融合理工学府 先進理化学専攻 物質科学コース

坂梨 昂平

目次

第1章	序論	1
1.1	二次元物質の性質	1
1.1.1	グラフェン	1
1.1.2	遷移金属ダイカルコゲナイド	6
1.1.3	六方晶窒化ホウ素	9
1.1.4	ファンデルワールスヘテロ構造	11
1.2	ナノ構造における量子輸送特性	12
1.2.1	二次元電子系における伝導現象	12
1.2.2	量子ポイントコンタクト	17
1.2.3	磁場中での電気伝導	19
1.3	バレー自由度と量子デバイス	21
第2章	実験手法	23
2.1	二次元層状物質の単離と評価	23
2.1.1	グラフェンおよび六方晶窒化ホウ素の機械剥離と評価	23
2.1.2	遷移金属ダイカルコゲナイドの機械剥離と評価	26
2.2	ファンデルワールスヘテロ構造の作製	30
2.2.1	ファンデルワールススタンプ法	31
2.3	二次元物質に対する電極形成手法	35
2.3.1	エッジコンタクト法	36
2.3.2	遷移金属ダイカルコゲナイドに対するコンタクト法	39
2.4	微小ゲート構造の作製手法	39
2.4.1	量子閉じ込め構造に向けたフラットボトム電極の形成	40
2.5	極低温環境下における測定手法	44
2.5.1	極低温測定に向けた実装方法	45
2.5.2	微小信号および低ノイズ測定	46

第 3 章	二層グラフェンにおける量子ポイントコンタクト	49
3.1	二層グラフェンにおける量子デバイス	49
3.2	高品質二層グラフェンデバイス	50
3.3	量子ポイントコンタクト素子の動作	53
3.4	トリプルゲート構造における量子ポイントコンタクト動作	58
3.5	結論	59
第 4 章	WSe₂ ヘテロ構造における量子ポイントコンタクトの実現	61
4.1	遷移金属ダイカルコゲナイドに対するオーミック接触の検討	61
4.1.1	TMDC に対するオーミック接触の検討	61
4.1.2	ボトムコンタクト	64
4.1.3	相変化を用いたコンタクト	69
4.1.4	金属ファンデルワールスコンタクト	70
4.1.5	2D/2D ファンデルワールスコンタクト	72
4.1.6	コンタクト手法のまとめ	76
4.2	電界効果による閉じ込め構造の実現	76
4.2.1	デュアルゲート動作による量子ポイントコンタクトの実現	77
4.2.2	有限磁場下での伝導現象	79
4.2.3	有限バイアスにおける伝導特性	81
4.2.4	結論	87
第 5 章	結論と展望	89
5.1	結論	89
5.2	課題と展望	90
参考文献		91

目次

1.1	グラフェンの結晶格子と逆格子	2
1.2	グラフェンの詳細なバンド構造	4
1.3	AB スタック二層グラフェンの結晶構造	4
1.4	層数によるグラフェンのバンドの違い	6
1.5	TMDC の結晶構造	7
1.6	TMDC 物質のバンド構造	7
1.7	TMDC の模式的なバンド構造	8
1.8	WSe ₂ の層数によるバンド構造の違い	9
1.9	TMDC のバンドアライメント	9
1.10	hBN の構造と特性	10
1.11	二次元物質の基板としての hBN	11
1.12	ファンデルワールスヘテロ構造のイメージ	12
1.13	散乱伝導とバリステック伝導	13
1.14	バリステック伝導様式における伝導度	17
1.15	量子ポイントコンタクト	18
1.16	QPC におけるスピン偏極したサブバンドと伝導度	19
1.17	磁場中の二次元電子ガス	19
1.18	二次元電子ガスの磁場中における状態密度	21
2.1	グラフェン機械剥離の方法	25
2.2	グラフェンの光学顕微鏡像とラマン分光	26
2.3	ブルーテープを用いた TMDC の機械剥離	28
2.4	TMDC の光学顕微鏡像と PL スペクトル	29
2.5	結晶成長法の違いによる欠陥密度	30
2.6	原子層物質の各種トランスファー方法の比較	30
2.7	PC/PDMS ポリマースタンプの模式図	31

2.8	ファンデルワールスヘテロ構造におけるバブル	32
2.9	PDMS レンズを用いたドライトランスファー	33
2.10	PC ポリマーを用いたドライトランスファー	35
2.11	エッジコンタクト法	37
2.12	二種類のエッジコンタクト法	37
2.13	Type1 エッジコンタクトの方法	38
2.14	Type2 エッジコンタクトの方法	39
2.15	hBN 上微細ゲート構造の難点	40
2.16	ボトム電極の問題点	41
2.17	二層レジストによるボトム電極形成	42
2.18	薄いレジストを用いたボトム電極形成	43
2.19	単層薄膜レジストによるボトム電極形成	44
2.20	^3He インサート	45
2.21	ワイヤーボンディングによってリークを起こした場合の電気伝導模型	45
2.23	AC/DC 電圧加算回路	47
2.22	典型的な測定回路	47
3.1	高移動度二層グラフェンデバイスの実現	51
3.2	BLG における量子ポイントコンタクト試料の概要	52
3.3	高品質 BLG デバイスにおける残留電荷不純物密度と移動度	53
3.4	垂直電場下における量子ポイントコンタクト動作	54
3.5	$V_{\text{BG}} = -80 \text{ V}$ における QPC 動作の詳細	55
3.6	BLG-QPC デバイスの動作原理模式図	55
3.7	スプリットゲート直下のポテンシャル構造	56
3.8	QPC チャネルにおける x, y 軸方向のポテンシャル構造と先行研究における量子化コンダクタンス特性	57
3.9	磁場下における QPC 動作	58
3.10	トリプルゲート構造における QPC 動作	59
4.1	金属-半導体接合の簡易的なモデル	62
4.2	MIGS、UDM および DIGS の概念図	63
4.3	二次元半導体/金属界面におけるフェルミレベルピニング	64
4.4	AFM クリーニングの模式図	66
4.5	AFM クリーニング前後の AFM 像	66
4.6	AFM クリーニングの結果	67

4.7	ボトムコンタクトによって作製した MoS ₂ デバイスと模式図	68
4.8	ボトムコンタクト MoS ₂ デバイスの特性	68
4.9	相変化コンタクトデバイス	69
4.10	MoS ₂ に対する Ti/Au コンタクトと In/Au コンタクトの比較	70
4.11	コンタクトホールを用いた In コンタクトデバイス	71
4.12	p 型にドーピングされた MoS ₂ 特性	72
4.13	p ⁺ -MoS ₂ の特性	73
4.14	p ⁺ -MoS ₂ による三層 WSe ₂ -FET デバイスとその特性	74
4.15	三層 WSe ₂ の低温における特性	75
4.16	2 端子および Q4T 測定の違い	76
4.17	三層 WSe ₂ ファンデルワールスヘテロ構造における量子ポイントコンタクト デバイス	77
4.18	定 V _{TG} における V _{SG} 特性	78
4.19	量子化コンダクタンス	79
4.20	磁場中での QPC 動作	79
4.21	三層 WSe ₂ の DFT 計算による垂直電場依存バンド構造	81
4.22	SD バイアス特性の原理	82
4.23	SD バイアス測定時の等価回路	82
4.24	ゼロ磁場における SD バイアス特性	83
4.25	QPC 特性の温度依存特性	84
4.26	各磁場における DC バイアススペクトロスコピー	85
4.27	各磁場における DC バイアススペクトロスコピーのカラーマップ	86
4.28	N = 2 におけるゼロバイアス異常の磁場依存性	87
5.1	スピン-バレー量子ビット及びスピン-バレーフィルター素子の模式図	90

表目次

4.1	各種コンタクト法のまとめ	76
-----	------------------------	----

概要

2004年に初めてその単離が成功し、2010年にノーベル物理学賞を受賞したグラフェンに関する研究を皮切りに半導体的な性質や超伝導、強誘電や強磁性などの性質を持つ多様な二次元層状物質が発見されており、現在までに基礎・応用問わず爆発的に研究が進められている。また、二次元層状物質は各層がファンデルワールス力という非常に弱い力のみで積層しており、面外方向にダングリングボンドを持たない為、単層や数層まで薄膜化したあと異なる物質同士で再積層したり、単一の物質を結晶成長段階では安定ではない積層角において積層することで新たな結晶構造を人工的に産み出すといったファンデルワールスヘテロ構造と呼ばれる新概念が登場し、物質同士の組み合わせや積層角度、構造を考慮すると実質無限大の自由度を持つこととなり、尽きることのない新たな物理現象、デバイス構造のプラットフォームとなっている。グラフェンや半導体的な性質をもつ遷移金属ダイカルコゲナイドといった二次元物質は、ハニカム格子状の結晶格子を有するため、バンド構造において電荷、スピンの次ぐバレー自由と呼ばれる量子自由度を有し、バレートロンクス素子といったエレクトロニクスに比べて高速で散逸のないデバイスへの応用が期待されている。このように豊かな量子物性を有するグラフェンや遷移金属ダイカルコゲナイドであったが、これらの性質を生かしたバレートロンクス素子や量子ビットのような量子デバイス素子への応用は、試料品質やデバイス作製手法の煩雑さなどからほとんど進んでいなかった。本研究では、これらの二次元物質デバイスの高性能化およびその量子デバイス構造、特に量子ポイントコンタクトへの応用を目指し、試料作製法の開発、スケールアップ、および量子閉じ込め構造の実現を行った。

本論文は本章を含め、5つの章からなる。

- 第1章では本論文で扱う二次元層状物質と量子伝導現象の基礎についてレビューした。
- 第2章では本研究で用いた実験手法、特にファンデルワールスヘテロ構造の作製手法およびコンタクト形成方法に関する研究手法について詳細に記した。
- 第3章では二層グラフェンにおける量子ポイントコンタクトの実現とその詳細、および先行研究との比較について議論した。
- 第4章では遷移金属ダイカルコゲナイドにおける高性能デバイスの作製手法、特にオーミックコンタクトの実現方法について詳細に議論した。また高品質化された二セレン化

タングステンにおいて量子ポイントコンタクトの実現及び特異な輸送特性に関して詳細に議論した。

- 第 5 章では本研究に関する結論をまとめ、今後の展望に関して議論した。

謝辞

初めに1年間のスイス留学から帰国し、変則的な時期にかかわらず快く研究室に受け入れていただき、その後5年近くの長い時期にわたって公私共に色々とお世話になりました、青木伸之教授に大変感謝しております。特に、研究室の方針や研究内容に関して、衝突をすることも多くありましたが、一学生の身分の私の意見を学生と教員の立場を超えて多くとり入れていただき尊重していただけたこと、また実験手法などに関して有用な意見をたくさん頂き、まるで学生同士で議論するように研究を進められたことは非常に楽しかったです。いつも我儘ばかりを言ってはいましたが、大変楽しい研究室生活でした。ありがとうございました。来年から非常に大変になるとは思いますが、助教の先生と二人三脚で頑張ってください。

また木田理夫研究員にも大変お世話になりました。すぐに新しい研究を始めようとして、様々な実験装置や測定系などを作ろうとする私に、惜しめない助力や助言をしていただき、装置作製や測定、解析プログラムの整備などでは大変ご迷惑をおかけしました。木田さんがいなければ、研究は全然進まなかったと思います。ありがとうございました。よく一緒にお茶をしたのはいい息抜きになりました。

秘書の筒井綾さんには、出張や買い物が多い私の事務処理などで、大変ご迷惑をおかけしました。面倒な事務処理をしていただいたおかげで、様々な仕事はかどりました。ありがとうございます。

My one of the biggest thank was sent to Prof. Jonathan Bird at University at Buffalo. As my main collaborator and discussion partner, I've learned many physics and experiment from your deepest knowledge. Thank you so much, and my staying at Buffalo was a great opportunity for me!

Another contributor at SKKU, Prof. Gil-Ho Kim, gives me a great opportunity at SKKU, and staying at SKKU made significant progress for my research. A lot of information on the latest 2D research was very useful for our laboratory. Thank you very much!

物質科学コースの Peter Krüger 教授には、スイス留学時のサポートから研究時の理論計算によるサポートなど大変お世話になりました。また博論審査の主査を引き受けていただきました。誠にありがとうございます。

物理学科の山田先生および梶野さんにはインターンを受け入れていただき、また実験手法などに関してもアドバイスをいただきました。ありがとうございます。

東大マテリアル工学科の長汐先生には様々な実験手法や研究に関するアドバイスをいただきました。また、学会会場でビールをおごっていただいたり、議論をさせていただき非常に有意義な時間を過ごせました。大変感謝しております。

埼玉大学の上野先生には様々な結晶をいただくのみではなく、共同研究者としてアドバイスいただきました。ありがとうございます。

大学院融合理工学府先進科学プログラムの青合先生には、キャリアパス等に関して様々なアドバイスをいただきました。青合先生のお話がなければインダストリーに興味に向かうこともなかったかもしれません。ありがとうございました。

研究室の同期の皆さんにも大変お世話になりました。特に和田君にはデバイス作製において沢山手伝ってもらいました。青木君には研究室の雑務を多くお願いすることもありました。大内君には考えた研究手法を実践してもらったりしました。村瀬君には実験の手伝いをしてもらいました。非常に助かりました。一緒に食事にいたり、遊びに行くことで息抜きにもなりました。ありがとうございます。謝君も博士課程学生は一人ですが、頑張ってください。研究室の先輩、後輩の皆様にも、手伝いや雑務、雑談の相手などをさせていただきました。大変感謝しております。

千葉大学先進科学センターの皆さん、特に音先生には研究に関してサポートをしていただいたり議論をしていただいたり、大変お世話になりました。また、博論審査委員を引き受けていただきました。ありがとうございました。花輪先生には学部入学から長い間様々なサポートをしていただきました。石井先生、田中先生には生活のことのみでなく研究についての助言をいただくなどお世話になりました。先進科学センターの櫻井さん、横山さんにも大変お世話になりました。

理化学研究所の石橋先生には博士論文の審査委員を引き受けていただきました。誠にありがとうございます。また山本倫久グループリーダー、島崎拓也博士にはインターンの受け入れ及び議論をして頂きました。ありがとうございました。

工学研究院電気電子工学コースの酒井 正俊准教授には博士論文の副査をお引き受けいただきました。誠にありがとうございます

最後に、17歳で大学に入学してから長い学生生活の間、留学など気苦労をかけることもありましたが、一貫して大学生活を支援、応援してくれた家族に大変感謝をしております。ありがとうございました。

本研究は日本学術振興会特別研究員 (DC1) 制度及び千葉大学大学院先進科学プログラムの支援によって行われました。

List of symbols

Physical constants

Physical constants	Explanation
$-e < 0$	electron charge
ϵ	dielectric constant
ϵ_0	dielectric constant of vacuum
m_e	mass of electron
m_h	mass of hole
m^*	effective mass of carrier in solids
$\hbar = h/2\pi$	Plank constant
k_B	Boltzmann constant
μ_B	Bohr magneton
$R_Q = h/e^2$	von Klitzing constant
$G_0 = 2 e^2/h$	quantum of conductance

Abbreviations

Abbreviation	Explanation
1D & 2D	one dimension & two dimension
2DEG	two dimensional electron gas
2DHG	two dimensional hole gas
AFM	atomic force microscopy
BLG	bilayer graphene
DFT	density functional theory
DOS	density of state

Abbreviation	Explanation
EBL	electron beam lithography
EBD	electron beam deposition
hBN	hexagonal boron nitride
MLG	monolayer graphene
MoS ₂	molybdenum disulfides
QD	quantum dot
QPC	quantum point contact
QHE	quantum Hall effect
SEM	scanning electron microscopy
TMDC	transition metal dichalcogenides
WSe ₂	tungsten diselenides

Symbols

Symbol	Explanation
A	device area
B	magnetic field
E_F	Fermi energy
g	degeneracy of subbands
g^*	Lande's g factor
G	conductance
G_{2t}	two-terminal conductance
G_{4t}	four-terminal conductance
k	k vector (wave number)
μ	carrier mobility
n	carrier density
p	momentum
R	resistance
R_C	contact resistance
ρ	resistivity
V_{BG}	backgate voltage
V_{SG}	split-gate voltage

Symbol	Explanation
V_{TG}	topgate voltage
V_{SD}	source-drain voltage
λ_{F}	Fermi wavelength
ω_{C}	cyclotron frequency

第 1 章

序論

本章では本論文で主に扱っている、グラフェンや遷移金属ダイカルコゲナイドといった二次元物質の電子物性、および低次元系における量子伝導現象について詳細に述べる。

1.1 二次元物質の性質

2004 年の Geim, Novoselov らによる単層グラフェンの剥離から [1,2]、類似の二次元物質の研究は爆発的に進められている。二次元物質は半金属的な性質を示すグラフェンをはじめとして絶縁体的な性質を示す六方晶窒化ホウ素 (hBN: hexagonal boron nitride) [3] や 1 - 2 eV 程度のバンドギャップを有する半導体材料である 6 族の遷移金属ダイカルコゲナイド (TMDC: transition metal dichalcogenide) [4–6]、超伝導転移を示す 5 族の TMDC [7,8] など多くの物質が発見されている。更に現在では単層極限においても強磁性や反強磁性を示す物質なども発見されており、さらなる広がりを見せている。本節では数ある二次元物質の中でも量子ポイントコンタクト (QPC: quantum point contact) や量子ドットといった量子閉じこめデバイスへの応用が期待されているグラフェン、TMDC 及びそれらのチャンネル材料に対して優良な絶縁体基板材料として使用できる hBN やそれらの積層構造であるファンデルワールスヘテロ構造について述べる。

1.1.1 グラフェン

グラフェンは炭素原子がハチの巣格子状に並んだ二次元シート状物質であり、ファンデルワールス力によって積層され、層数が増えることによって性質が劇的に変化する。本節では特に単層および二層グラフェンの性質について議論する。

単層グラフェン [9]

単層グラフェンは炭素原子がハニカム格子状に並び、それぞれが sp^2 軌道によって二次元的に結合している結晶であり、その電気伝導は π 軌道が担う。図 1.1(a) のように、単層グラフェンの単位格子には二つの炭素原子が含まれており、それぞれ A, B のような副格子に区別可能である。このグラフェンの単位格子ベクトルをそれぞれ $\vec{a}_1 = a(\frac{3}{2}, \frac{\sqrt{3}}{2}), \vec{a}_2 = a(\frac{3}{2}, -\frac{\sqrt{3}}{2})$ とする。この単位格子の逆格子空間での第一 Brillouin Zone は図 1.1(b) の様になり、 Γ 点を中心にして、K 及び K' 点に対称性の良い二重縮退点を持つ。ここで a はグラフェンの再近接の炭素原子間距離であり、その大きさは 1.42 \AA である。またあるサイトの原子*1から再近接原子三つへの距離をそれぞれ、 $\vec{\delta}_1 = a(\frac{1}{2}, \frac{\sqrt{3}}{2}), \vec{\delta}_2 = a(\frac{1}{2}, -\frac{\sqrt{3}}{2}), \vec{\delta}_3 = a(-1, 0)$ とする。

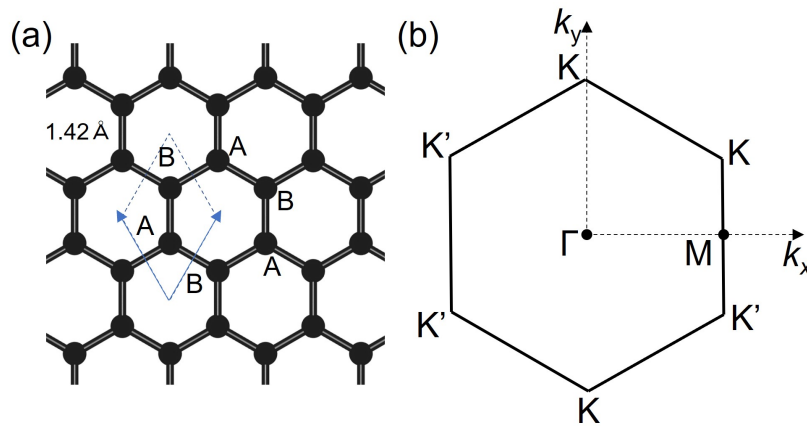


Fig.1.1 (a) 単層グラフェンの模式的な結晶構造模型。(b) グラフェンの逆格子空間における第一 Brillouin Zone。

グラフェンのタイトバインディング (TB: tight-binding) モデルによる Hamiltonian は、A サイト及び B サイトにおいて電子を生成および消滅させる演算子をそれぞれ、 $a_{i,\sigma}^\dagger, a_{i,\sigma}, b_{i,\sigma}^\dagger, b_{i,\sigma}$ と定義し、最近接原子間の飛び移り積分を t と定義すると、

$$H = \sum_i \epsilon_i |\phi_i\rangle \langle \phi_i| - t \sum_{\langle i,j \rangle} (a_{i,\sigma}^\dagger b_{j,\sigma} + \text{c.c.}) \quad (1.1)$$

となる。ここである原子サイトの場所を \vec{R} とすると、TB モデルにおける再隣接原子へのホッピングを考慮した固有関数はスピノル表示を用いて、

$$\begin{pmatrix} \alpha_{i,\sigma}(\vec{R}) \\ \beta_{i,\sigma}(\vec{R}) \end{pmatrix} = \frac{1}{\sqrt{N}} \sum_{\vec{k}} e^{i\vec{k}\cdot\vec{R}} \begin{pmatrix} a_{\sigma,\vec{k}} \\ b_{\sigma,\vec{k}} \end{pmatrix} \quad (1.2)$$

*1 ここでは A サイトを仮定する。

と表現可能である。結果として波数表示の Hamiltonian は $\epsilon_i = 0$ とすると

$$H_{\mathbf{k}} = \begin{pmatrix} 0 & \Delta_{\mathbf{k}} \\ \Delta_{\mathbf{k}}^* & 0 \end{pmatrix} \quad (1.3)$$

と書ける。ここで $\Delta_{\mathbf{k}} = -t \sum_{l=1}^3 e^{i\vec{k} \cdot \delta_l}$ と定義している。このハミルトニアンは完全に非対角成分のみでできていることがわかり、このハミルトニアンの固有エネルギー $\epsilon_{\mathbf{k}}$ を求めると

$$\epsilon_{\mathbf{k}} = \pm |\Delta_{\mathbf{k}}| = \pm t \sqrt{1 + 4 \cos \frac{3k_x a}{2} \cos \frac{\sqrt{3}k_y a}{2} + 4 \cos^2 \frac{\sqrt{3}k_y a}{2}} \quad (1.4)$$

のようになり、図 1.2(a) のような分散関係になる [9, 10]。次に、波数 $\vec{K} = \frac{2\pi}{3a}(1, \frac{1}{\sqrt{3}})$, $\vec{K}' = \frac{2\pi}{3a}(1, -\frac{1}{\sqrt{3}})$ の場合を見てみるとエネルギー分散がゼロになることがわかり、グラフェンは K 及び K' 点においてゼロギャップ半導体であることがわかる。また、グラフェンは炭素原子のみで構成されており、スピン-軌道相互作用は極端に弱く、ほとんど無視することができる為 ($\sim 42.2 \mu\text{eV}$) [11]、グラフェンを用いて電流の On/Off 状態をスイッチングする電界効果トランジスタ (FET: field effect transistor) を作製することはできない。ただし、FET 構造を形成することでグラフェン中のキャリア密度を制御することは可能である。このような波数 K(K') 点付近において、 $\vec{\Delta}_{\mathbf{k}}$ を展開し、 $\vec{k} - \vec{K} = \vec{p}$ とすると、一次のタームは

$$\Delta(\vec{p}) \simeq \hbar v_{\text{F}}(p_x - ip_y) \equiv \Delta^*(\vec{p}) \quad (1.5)$$

となる [9]。よって K 点付近での Hamiltonian は Pauli 行列 $\vec{\sigma} = (\sigma_x, \sigma_y)$ を

$$\sigma_x = \begin{pmatrix} 0 & 1 \\ 1 & 0 \end{pmatrix}, \sigma_y = \begin{pmatrix} 0 & -i \\ i & 0 \end{pmatrix} \quad (1.6)$$

と定義すると、

$$H = \hbar v_{\text{F}} \vec{\sigma} \cdot \vec{p} = \hbar v_{\text{F}} (\sigma_x p_x + \sigma_y p_y) \quad (1.7)$$

と表すことが可能である。よってエネルギー分散関係 $\epsilon_{\mathbf{p}}$ は、

$$\epsilon_{\mathbf{p}} = \pm \hbar v_{\text{F}} |p| \quad (1.8)$$

となり、K(K') 点付近では図 1.2(b) のような線形分散関係であることがわかる。

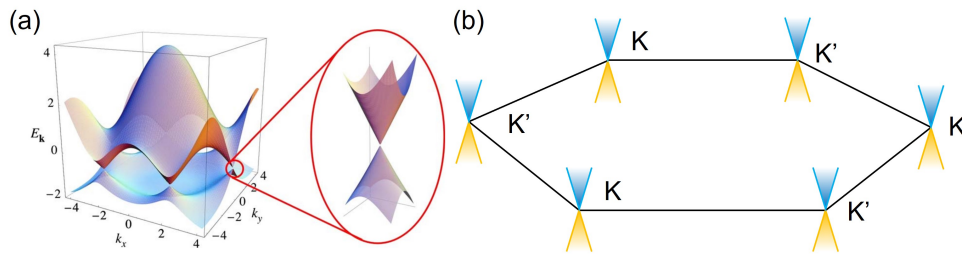


Fig.1.2 (a) タイトバインディング模型によるグラフェンのバンド構造。K 点でフェルミレベルにおいてギャップが閉じた線形分散をもっている。Adapted with permission from [9]. Copyright 2009 American Physical Society. (b) 波数空間におけるフェルミレベル近傍の模式的なバンド図。

このように単層グラフェンはバンドギャップを持たず、K 点付近において線形分散を有するゼロギャップ半導体であるため、電氣的に絶縁、および伝導状態の切り替えをすることはできない。ただし、グラフェンを細線化したナノリボン構造 [12, 13] やモアレ超格子などの超格子構造による長距離秩序構造によって対称性が破れた状態にすることでバンドギャップを誘起することも可能である [14–16]。ただしこれらの試料はボトムアップで作製することは容易ではなく、またトップダウンで作製した場合にはエッジにおける不均一性の影響などによって均一な試料を作ることは難しい。このように単層グラフェンにおいては、On/Off 状態を本質的に作り出すことは難しい為、電界制御の量子構造応用には向かない。

二層グラフェン

二層グラフェンとは二枚の単層グラフェンが弱いファンデルワールス力のみによって積層した物質であり、自然に機械剥離によって得られる二層グラフェンはほとんどすべて図 1.3(a,b) のような、AB スタックよばれる積層状態である。二層グラフェンも単層グラフェンと同様に通常状態では非常に対称性が良い物質である。

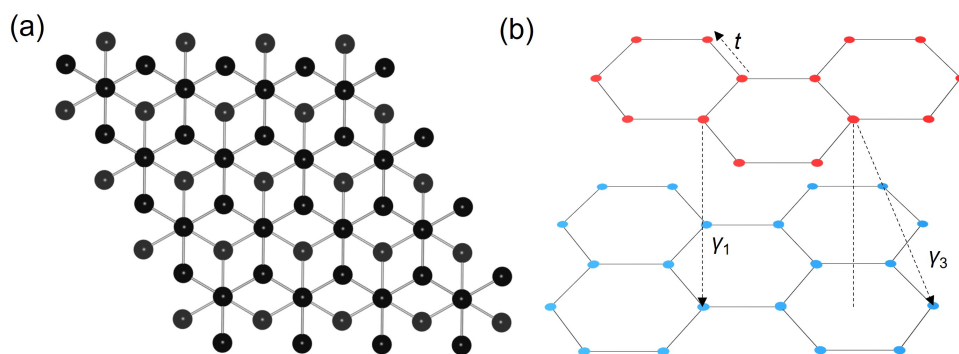


Fig.1.3 (a) AB スタック二層グラフェンの結晶構造。(b) BLG の結晶を斜めから見た模式図。 t は再隣接のホッピングパラメータ、 γ_1, γ_3 はそれぞれ層間のホッピングパラメータ。

二層グラフェンのバンド構造を議論する為、タイトバインディングモデルによる Hamiltonian を考えると、原子同士重なっているサイトのホッピングのみを考慮した最近接モデルにおいて、

$$H_{\text{TB}} = -t \sum_{\langle i,j \rangle, m, \sigma} (a_{m,i,\sigma}^\dagger b_{m,j,\sigma} + \text{c.c.}) - \gamma_1 \sum_{j,\sigma} (a_{1,j,\sigma}^\dagger a_{2,j,\sigma} + \text{c.c.}) \quad (1.9)$$

とすることができる。ここで γ_1 は片側のグラフェンから直下 (直上) のもう一枚のグラフェンの炭素原子へのホッピングレートであり (図 1.3(b))、 m は各グラフェン層のインデックスナンバーである。本 Hamiltonian における Bloch 波動関数は単層グラフェンの場合と同様に、任意の位置ベクトル \vec{R} をもちいて、フーリエ変換形式によって、

$$\begin{pmatrix} \alpha_{i,\sigma}(\vec{R}) \\ \beta_{i,\sigma}(\vec{R}) \end{pmatrix} = \frac{1}{\sqrt{N}} \sum_{\vec{k}} e^{i\vec{k}\cdot\vec{R}} \begin{pmatrix} a_{\sigma,\vec{k}} \\ b_{\sigma,\vec{k}} \end{pmatrix} \quad (1.10)$$

とすることができる。ここで簡易的に垂直電場の効果を取り込むために、二層グラフェンに対して垂直にポテンシャル差 U を印加することを考えると、二枚のグラフェンのポテンシャルはそれぞれ $+U/2, -U/2$ である。これらを用いて、波数空間におけるタイトバインディングハミルトニアンは 4×4 のスピノル表示にて、

$$H_{\vec{k}} = \begin{pmatrix} U/2 & \Delta_{\vec{k}} & 0 & -\gamma_1 \\ \Delta_{\vec{k}}^* & U/2 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & -U/2 & \Delta_{\vec{k}} \\ -\gamma_1 & 0 & \Delta_{\vec{k}}^* & -U/2 \end{pmatrix} \quad (1.11)$$

と表記可能である。よってハミルトニアンの固有エネルギーは

$$E_{\vec{k}}(U) = \pm \sqrt{\epsilon_{\vec{k}}^2 + \frac{U^2}{4} + \frac{\gamma_1^2}{2} \pm \sqrt{\frac{\gamma_1^4}{4} + (\gamma_1^2 + U^2)\epsilon_{\vec{k}}^2}} \quad (1.12)$$

と求めることが可能である。ここで $U = 0$ を仮定すると、通常二層グラフェンのバンド構造となり、

$$E_{\vec{k}}(U = 0) = \pm \frac{\gamma_1}{2} \pm \sqrt{\epsilon_{\vec{k}}^2 + \gamma_1^2} \quad (1.13)$$

のようなバンド分散関係を求めることができる。これは \mathbf{K} 点において、4 バンドのギャップレス放物線分散バンドを持つバンド構造であり、またここで垂直電場、つまり二層間にポテンシャル差がある場合 (U が有限) を考えると、 \mathbf{K} 点において二枚のグラフェン間のポテンシャル差 U に起因したバンドギャップが生まれることがわかる。これは実験的にアクセス可能な ($\sim 2 \text{ V/nm}$ 程度) 垂直電場によるポテンシャル差によって $100 - 200 \text{ meV}$ 程度のバンドギャップを有する半導体に変化することを意味する。

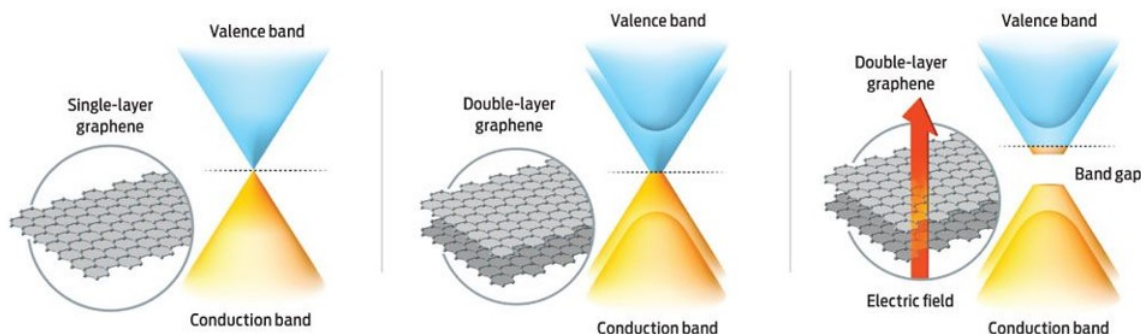


Fig.1.4 単層、二層および垂直電場が印加された二層グラフェンのバンド構造。Picture adapted from <https://spectrum.ieee.org/graphene-makes-transistors-tunable>

1.1.2 遷移金属ダイカルコゲナイド

グラフェンの単離以来、様々な二次元物質の研究が盛んに行われてきている。その中でも遷移金属ダイカルコゲナイド (TMDC) はグラフェンと同様に機械剥離や化学気相成長等によって単層物質が形成可能であり、半導体的な性質を示す二次元物質として活発に研究が行われている。特に、単層において直接遷移型のバンドギャップを示し、特異な電気的、光学的な性質を持つことが判明して以来 [4–6]、基礎物理的な研究のみでなく、次世代半導体材料としても期待されている [17–19]。

TMDC は遷移金属原子 (Mo, W など) がカルコゲン原子 (S, Se, Te) に挟まれた構造を持つ二次元物質であり、その単位格子は三角プリズム構造であるが、面外から見るとハニカム格子を持っている。グラフェンと異なり、A サイトおよび B サイトの原子がそれぞれ異なる原子で構成されている為、空間反転対称性が破れた構造となっており、これによってバンドギャップが存在していると考えられることもできる。TMDC は結晶多型を有する物質であり、半導体的な性質を持ち安定相である 2H 構造、準安定的な構造であり金属的な性質を持つ 1T' 構造がある。2H 構造の TMDC は各層がそれぞれ 180 度ずつ回転して積層された結晶であり、それぞれの層間は物質によって異なるが、およそ 7 Å 程度である。二層 2H の TMDC は単層の A サイト上の原子ともう一層の A サイト上の原子が異なる原子となっている為、全体で見ると空間反転対称性が守られた構造になっている [20–22]。

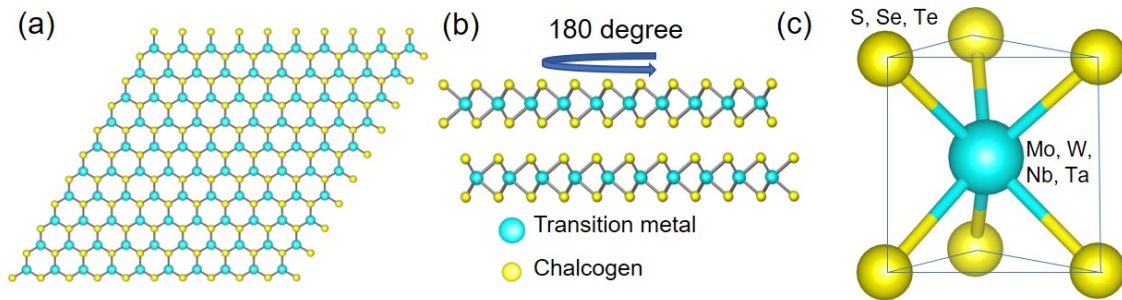


Fig.1.5 (a) 単層遷移金属ダイカルコゲナイドの H 型結晶構造。上部から見ると自発的に反転対称性の敗れたハニカム格子となっている。(b) 2H スタックの遷移金属ダイカルコゲナイドの結晶構造。各層がそれぞれお互いに 180 度回転して積層している。そのため、空間反転対称性は破れていない。(c) H 型結晶の単位格子模型。三角プリズム型の結晶構造である。

単層 TMDC のバンド構造は遷移金属の d 軌道がカルコゲン原子との結合によって、結晶場分裂を起こすことによって形成されており、6 族の遷移金属 (Mo, W) などにおいては、バンドが余剰電子が 2 個あり価電子バンドが Full-filling となることで、半導体的な性質を示す。5 属 (Nb, Ta) 遷移金属からなる TMDC は 6 族遷移金属に対して余剰電子が 1 つ少ないため、価電子帯が完全に充填されず金属的な性質を示す。TMDC のバンド構造は d 軌道の結晶場分裂によって構成されている為、有効質量が物質によって異なるが $0.4 \sim 0.6 m_e$ 程度あり、移動度があまり高くない。また、結晶場分裂によってバンドが形成されている為、歪みや格子欠陥の影響によってバンド構造が容易に変化することが知られており、歪みが少なく、欠陥密度の少ないデバイスを作製することが物質本来の性質を探求するために必須である。

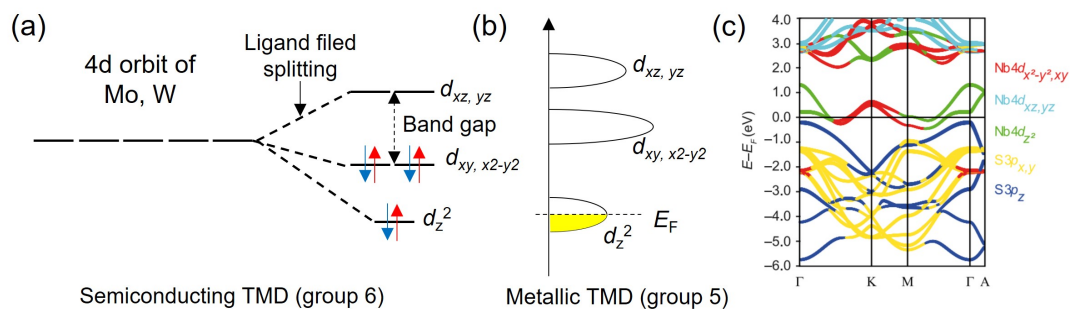


Fig.1.6 (a) 6 族原子 (Mo, W) とカルコゲン原子 (S, Se, Te) で構成された 2H 型遷移金属ダイカルコゲナイドのバンドダイアグラム。6 族遷移金属ダイカルコゲナイドの価電子および伝導帯は遷移金属の d 軌道が結晶場分裂することで形成される。(b,c) 5 族遷移金属 (Nb, Ta) によって構成された 2H 遷移金属ダイカルコゲナイドの状態密度とバンド構造。5 属遷移金属を用いているため、単位格子あたりの余剰電子が 1 個少なくなり、価電子帯中にフェルミレベルが位置するため金属的な性質を示す。Fig. (c) Adapted from [7].

TMDC を構成する遷移金属はグラフェンを構成する炭素原子に比べて原子番号が大きく、

遷移金属の d 軌道によって誘起されるスピン-軌道相互作用 (SOI) はグラフェンに比べて非常に大きい。その為、TMDC では K, K' 点において価電子及び伝導帯ともにスピン縮退が分裂した状態になっており、これらのスピン分裂したバンドは K および K' 点においてバレー自由度と結合した $|K, \uparrow\rangle$ や $|K', \downarrow\rangle$ のような状態へスピン-バレーロッキングを起こす (図 1.7)。スピン分裂バンドの大きさは伝導帯と価電子帯で大きく異なり、価電子帯において非常に顕著に観測される。また、SOI の強度は遷移金属およびカルコゲン原子の種類によっても大きく異なり、 WSe_2 などの重たい原子によって構成された TMDC においては、価電子帯において数百 meV 程度のスピン偏極がみられる。

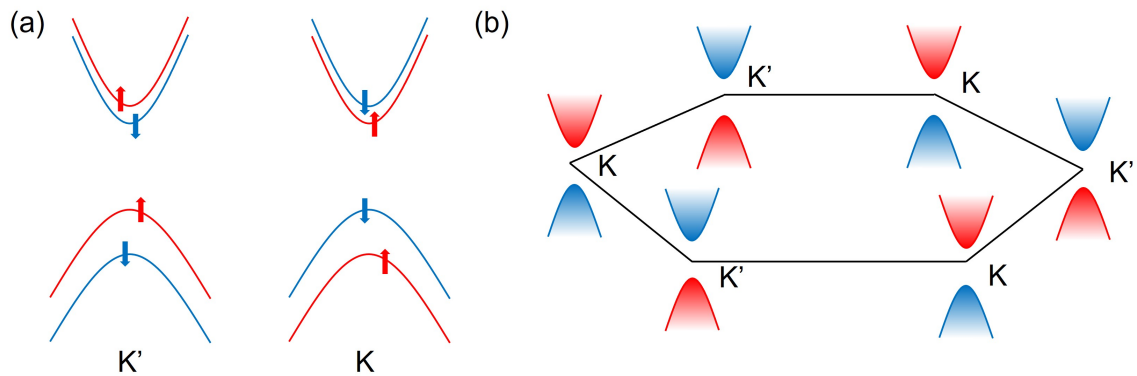
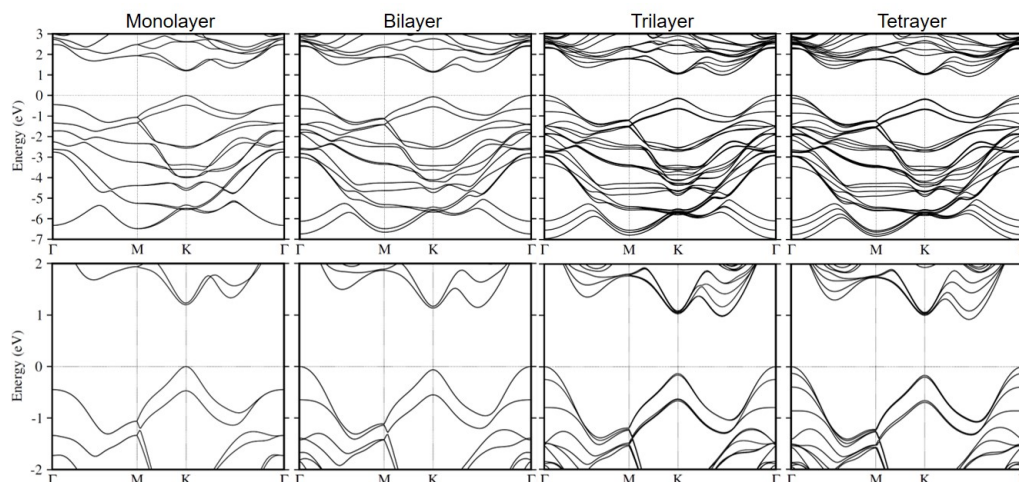


Fig.1.7 (a,b) K 点付近における価電子帯と伝導帯のバンド図。強いスピン-軌道相互作用によってスピン偏極したバンドが存在する。

TMDC は単層限界において K 及び K' 点にて直接遷移型のバンドギャップを有する半導体であり、そのバンドギャップエネルギーはおよそ 1.1 eV から 2.5 eV 程度であるが、層数の増加に伴って図 1.8 の様にバンドギャップの縮小及び直接遷移型から間接遷移型のバンドギャップを有する半導体への遷移がみられる。二次元性を保つことが可能な層数は 4 層程度までといわれており、5 層以上の TMDC 物質は基本的にバルクと同様の性質を示す。

Fig.1.8 DFT 計算による単層から4層までの2H-WSe₂のバンド構造

TMDC 物質は物質によって図 1.9 のように異なる伝導帯オフセット及びバンドギャップを持つため、物質同士の組み合わせによって容易に Type II 型などのバンドアライメントを形成することが容易であり、ダイオード素子などの形成がこれまでに盛んに行われてきている。また、ドーピング技術を組み合わせることによって Type III 型のアライメントも可能となり、トンネルダイオード素子や縮退半導体を用いたオーミック接触の実現なども可能となる。

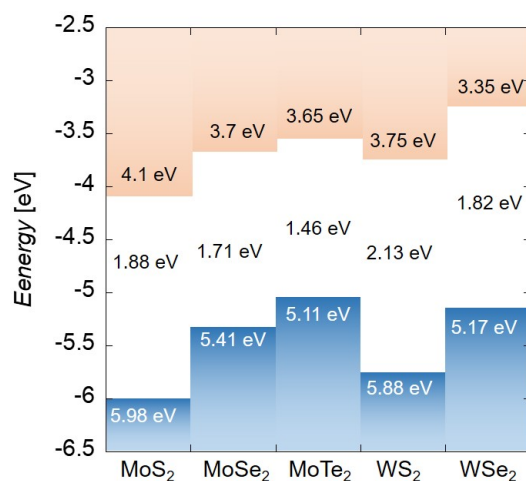


Fig.1.9 6族TMDCの伝導帯および価電子帯のエネルギーダイアグラム図。[23,24]を参考に作製。

1.1.3 六方晶窒化ホウ素

六方晶窒化ホウ素 (hBN) はグラフェンと同様にハニカム格子を持つ二次元物質であるが、窒素とホウ素によって構成されたグラフェン状物質である。ホワイトグラフェンともよばれ、面

内の空間反転対称性が破れていることから、単層及び多層において 5 eV 以上のバンドギャップを持つ [25]、絶縁体的な二次元物質として知られている。hBN は二次元層状物質であるために、面外方向にダンダリングボンドを持たず、他の二次元物質と組み合わせた際にバンド混成が起きにくく、また界面トラップなどの問題が一切発生しない良好な界面特性を得ることができる。また、NIMS の渡邊博士、谷口博士が成長したバルク結晶は非常に高純度、および高品質であることが知られており、格子欠陥及び不純物共に検出限界以下の品質である。劈開によって得られる二次元物質の表面は通常非常にクリーンであり、また原子レベルで平坦な表面であるため、異なる二次元物質の基板やパッシベーション膜として非常に良好な特性を示す。また熱伝導率は二次元物質の基板として多用される SiO_2 よりも非常に高く、光学フォノンのエネルギーが大きい為、二次元物質の基板として非常に適している [3, 26, 27]。

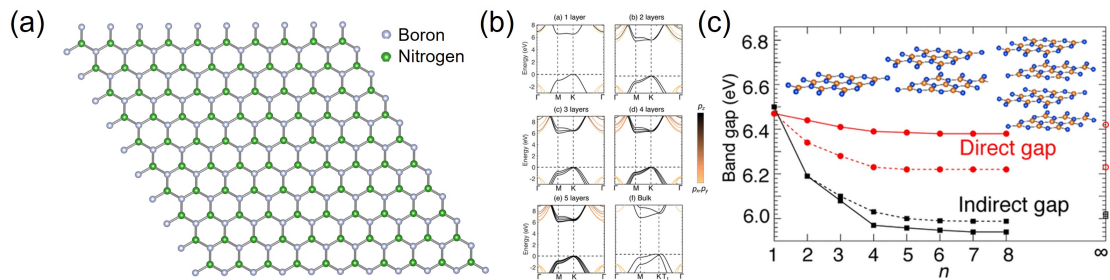


Fig.1.10 (a)hBN の結晶構造。(b,c)hBN のバンド構造とエネルギーダイアグラム。Adapted with permission from [25]. Copyright 2018 American Chemical Society.

実際に多層の hBN をグラフェンの基板として用いた場合 (図 1.11) において、 SiO_2 を基板として用いた場合と比べて、グラフェンの平坦度及び電荷不純物による揺らぎが改善していることがわかる [15]。またグラフェンの移動度は室温においておよそ $2,000 \text{ cm}^2/\text{Vs}$ 、低温においても $30,000 \text{ cm}^2/\text{Vs}$ 程度に制限されてきたが、グラフェンを完全に hBN によって挟み込み、ソース-ドレイン電極をエッジコンタクト法によって形成した試料においては室温において移動度が $140,000 \text{ cm}^2/\text{Vs}$ 、極低温においては $1,000,000 \text{ cm}^2/\text{Vs}$ 以上で平均自由行程が $10 \mu\text{m}$ 以上に到達している [26]。

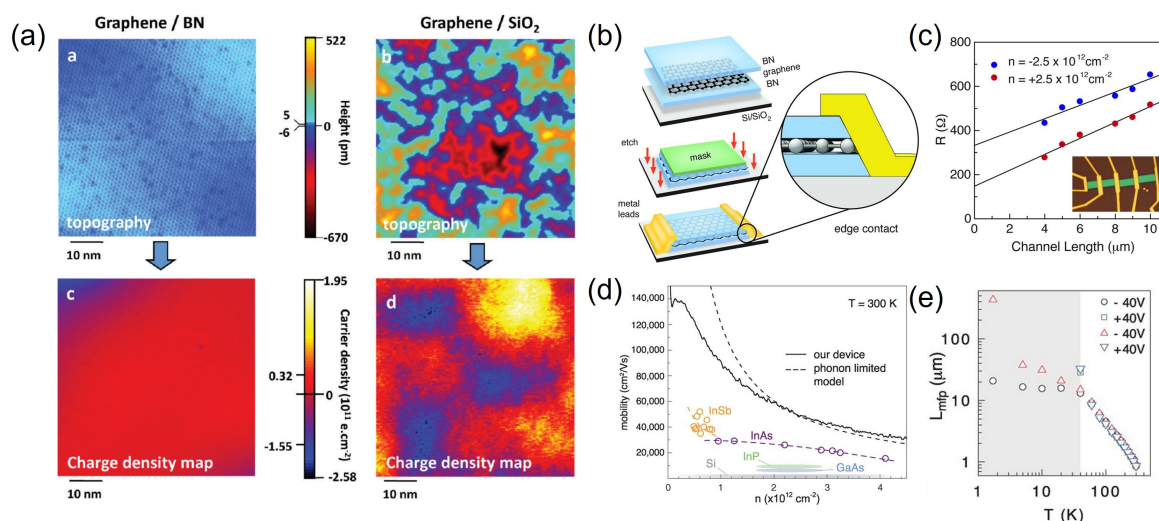


Fig.1.11 (a)hBN 上と SiO₂ のグラフェンの高さと同電荷揺らぎ像。Adapted with permission from [15]. Copyright 2011 American Chemical Society. (b)hBN によるカプセル化とエッジコンタクト。(c) 低接触抵抗化の実現。(d) 室温における移動度。(e) 平均自由行程の温度依存特性。 Fig. b-e were adapted with permission from [26]. Copyright 2013 AAAS.

1.1.4 ファンデルワールスヘテロ構造

グラフェンをはじめとする二次元物質はダングリングボンドを持たない為、既存の半導体ヘテロ構造における分子線エピタキシーと異なり、格子整合にとらわれず異なる物質同士を自在に積層可能である [28,29]。グラフェンと同様に単層、もしくは数層程度まで薄膜化可能である物質には、金属、超伝導、磁性体、半導体、絶縁体、トポロジカル物質など多くの種類があり、それらすべてを簡易に組み合わせることができる。その為、ファンデルワールスヘテロ構造を用いて他の物質へのコンタクトを形成したり、パッシベーションを行ったり、異なるバンドオフセットを持つ半導体を重ねることでダイオードを形成したり、超伝導や磁気的な効果を近接効果によって導入することが可能となる。また、既存の物質では格子整合の問題によって実現し得ない、二次元物質同士の角度の自由度がファンデルワールスヘテロ構造には存在する為、モアレ超格子とよばれる長周期構造の実現が可能となる。モアレ超格子においては数 nm から数十 nm 程度の長いモアレ超格子が形成されるため、バンド構造が大きく変調され、新たな対称性に起因した物性や特異なバンド構造、状態密度に起因した量子物性の発現が期待される。これまでにグラフェンと hBN における格子定数の 1% ほどの違いに起因したモアレ超格子構造 [14,30] や単層グラフェンを角度をひねって積層したツイスト二層グラフェン [16,31]、遷移金属ダイカルコゲナイドにおいて格子定数の異なる物質を積層 [32–36] もしくは同じ物質をツイスト積層することによるモアレ超格子 [37,38] など多彩な系が存在している。

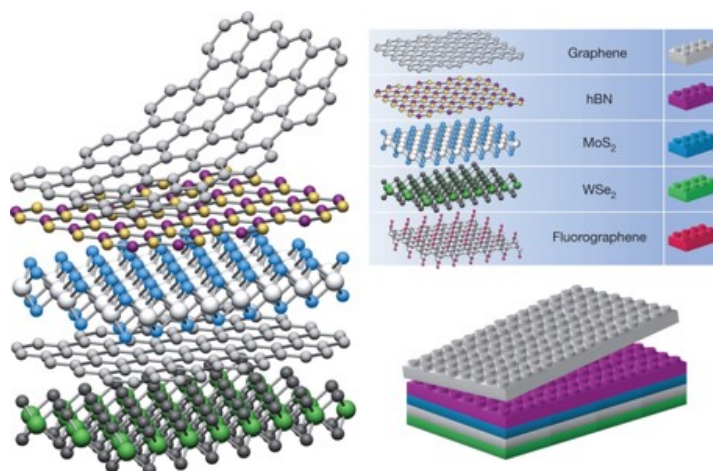


Fig.1.12 ファンデルワールスヘテロ構造のイメージ。格子定数や性質の異なる二次元物質同士を自由に組み合わせて積層可能である。実際にはレゴブロックの様に決まった方向のみではなく、回転積層角の自由度も存在するため、既存の半導体ヘテロ構造とは全く異なったヘテロ構造である。Picture adapted with permission from [28]. Copyright 2013 Springer Nature.

1.2 ナノ構造における量子輸送特性

半導体ナノ構造や超格子、低次元物質といったプラットフォームでは、オームの法則といった古典的な物理法則が成り立たず量子力学的な効果を非常に強く受けた多彩な現象が観測される。本節では二次元物質やその超格子構造といった二次元に電子が強く閉じ込められ電荷の運動量が二次元的に制限された系における特異な量子伝導現象、さらに電荷の運動量が一次元、ゼロ次的に制限された量子ナノ構造における伝導現象の解説を行う。

1.2.1 二次元電子系における伝導現象

二次元電子系における電気伝導現象において量子伝導現象を議論するにあたって重要である拡散伝導およびバリステック伝導について議論する。

拡散伝導 [39]

固体における電気伝導の担い手は電子もしくはホールであり、真空中における電子の挙動とは異なり電場を印加した場合には固体中のフォノンによる散乱や不純物による散乱、またキャリア同士の散乱など多くの抵抗を受けて、図 1.13(a) のようにキャリアは進むこととなる。このように電子が試料サイズの中で散乱を受けながら進む伝導を散乱伝導と呼び、そのキャリアの運動方程式を考えていく。このような散乱機構においては電荷は単位時間あたりに散乱を受けながら、全体としてポテンシャル勾配に則って進んでいくこととなり、その拡散電流は電荷の

ドリフト運動によって決定されるため、運動方程式は

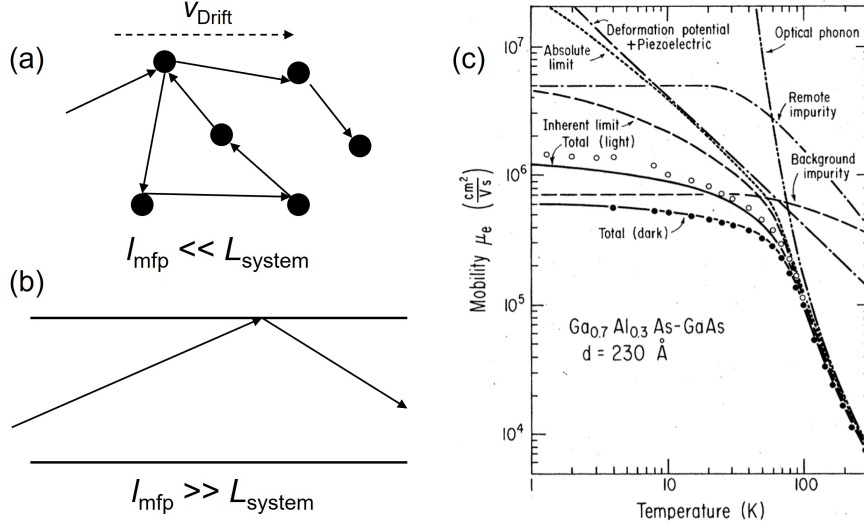


Fig.1.13 (a) 散乱伝導様式の模式図。キャリアがシステム内で多くの散乱を受けながら進む。(b) バリステック伝導の様式図。平均自由行程がシステムよりも十分長い場合、電子は散乱を受けずに弾道的に伝達する。(c) GaAs ヘテロ構造における移動度の温度依存性。いくつかの散乱要因の Matthiessen 則によって足し合わされることによって移動度が決まる。Adapted from [40].

$$\frac{d\vec{p}}{dt} = q\vec{E} - \frac{p}{\tau} \quad (1.14)$$

となる。ここで q は荷電粒子の電荷素量であり、 $q = -|e|$ の場合は電子であり、 $q = e$ の場合はホールである。また τ はキャリアの散乱時間である。本運動方程式にてキャリアの有効質量 m^* およびキャリアのドリフト速度 \vec{v}_{Drift} をあらわに用いて書き直すと、

$$m^* \frac{d\vec{v}_{\text{Drift}}}{dt} = q\vec{E} - \frac{m^* \vec{v}_{\text{Drift}}}{\tau} \quad (1.15)$$

とすることができる。ここで $\vec{E} = 0$ の平衡状態を考えると、キャリアのドリフト速度は

$$\vec{v}_{\text{Drift}} = \frac{q\tau}{m^*} \vec{E} \quad (1.16)$$

となる。移動度 $\mu = q\tau/m^*$ を用いて上記式を書き直すと、

$$\vec{v}_{\text{Drift}} = \mu \vec{E} \quad (1.17)$$

とすることができる。

電流密度を単位時間、単位断面積あたりの電荷の通過量と定義でき、

$$\begin{aligned} \vec{j} &= q\vec{v}_{\text{Drift}}n \\ &= \sigma \vec{E} = \frac{1}{\rho} \vec{E} \end{aligned} \quad (1.18)$$

と表すことが可能である。ここで σ, ρ はそれぞれ電気伝導率および抵抗率であり、 n はキャリア密度である。ここでドリフト速度 v_{Drift} を代入すると、

$$\begin{aligned}\vec{j} &= q\mu n \vec{E} \\ &= \sigma \vec{E}\end{aligned}\tag{1.19}$$

となるため、電気伝導率は $\sigma = q\mu n$ と定義される。ここで抵抗率および移動度は強く散乱時間 τ に依存していることがわかる。また平均自由行程 l_{mfp} はキャリアのフェルミ速度を用いて

$$l_{\text{mfp}} = v_F \tau\tag{1.20}$$

と表される為、図 1.13(b) のような散乱を受けずに電子が弾道的に伝導するバルスティック伝導を実現するためには散乱時間を延ばす、つまり散乱を抑制する必要がある。

散乱現象

キャリアが散乱される要因として室温付近において最も顕著なものが格子振動に起因したフォノン散乱であり、これらの散乱は低温に近づくにつれて無視できるものとなっていき、半導体超格子や二次元物質中においてはフォノン散乱のほかに以下のように多くの散乱現象があげられる [39,41]。

- 光学フォノン散乱 (高温にて顕著)
- 音響フォノン散乱
- イオン化不純物散乱 (低温にて顕著)
- 中性不純物や欠陥による散乱
- ラフネス、歪みなどによる散乱

これらの散乱の頻度はキャリア密度や温度、外部環境などに強く依存することが知られており、実際の試料中における散乱は Matthiessen 則に従い、以下のようにすべての散乱要因の足し合わせで考えられる。

$$\frac{1}{\tau_{\text{total}}} = \sum_i \frac{1}{\tau_i}\tag{1.21}$$

図 1.13(c) は GaAs の量子井戸構造における移動度の温度依存性であるが、温度領域によって影響を受ける散乱要因が違ってくる [40]。また同様にキャリア密度によっても散乱現象の原因は異なる [42,43]。本研究で扱う量子ポイントコンタクトにおける伝導現象はバルスティック伝導における伝導現象であり、これらの実現においては散乱の少ない試料作製、特に電荷不純物散乱や歪み、フォノン散乱が強く抑制された試料の実現が必要不可欠となる。

バリスティック伝導 [41, 44]

散乱が抑制された良好な試料は極低温において移動度が非常に高くなり、平均自由行程が $1 \mu\text{m}$ を超えてくるなど半導体微細加工技術を用いて実験的にアクセス可能な範囲で散乱が起こらないバリスティック伝導を実現することが可能となる。ここで二次元電子系において電子が一次元的にバリスティック伝導する理想的な量子細線を考えてみる。ここで細線の長さ L は波動関数の波長よりも十分に長いものとし、細線の幅は電荷のフェルミ波長 λ_F と同程度の大きさだとする。ここで電子の運動は細線の長さ方向に制限され、電子の波数を $k^2 = k_x^2 + k_y^2$ と定義すると、量子細線内における電子のエネルギースペクトルはソフトウォールポテンシャルによって断熱近似的に扱えるとする

$$E_n(k_x) = E_n + \frac{\hbar^2 k_x^2}{2m^*} \quad (1.22)$$

となる。ここで、 E_n は y 軸方向の各サブバンドの電子のエネルギー準位であり、このエネルギー固有値を満たす波動関数は

$$\phi_{n\vec{k}}(\vec{r}) = \chi_n(y, z) \cdot \frac{1}{\sqrt{L}} e^{ik_x x} \quad (1.23)$$

となる。ここで電子が束縛される y 軸方向のポテンシャルは調和振動子型のソフトウォールポテンシャル $V(x) = \frac{1}{2}m^*\omega_0^2 x^2$ を仮定すると、電子のとることができるエネルギー準位は、

$$E_n(k_x) = \frac{\hbar^2 k_x^2}{2m^*} + (n + \frac{1}{2})\hbar\omega_0 \quad (1.24)$$

となり、バンド内に離散化されたサブバンドを持つことがわかる。このエネルギースペクトルから理解できるように、電子波は x 軸方向に自由に伝搬可能であるが、 y 軸方向に関しては量子化されていることがわかる。またバリスティック伝導体における各モード内の電子の持つ群速度は $v_n = \frac{1}{\hbar} \frac{dE_n}{dk_x}$ であらわされる。ここでバリスティック伝導体に接続されている二対の電極である熱浴の化学ポテンシャルをそれぞれ μ_L 及び μ_R とすると、各サブバンドが担う電流は、

$$I = nev = e \sum_{n=1}^N \int_{\mu_R}^{\mu_L} dE \rho_n(E) v_n(E) T_n(E) \quad (1.25)$$

と表すことができる。ここで $\rho_n(E)$ は各サブバンドの状態密度、 $T_n(E)$ は各サブバンドにおける透過確率である。また 1D サブバンドエネルギーの状態密度は電子の自由度 g を用いて $\rho_n(E) = g/2\pi(dE_n/dk_x)^{-1}$ と記述できるため、電子の群速度 $v_n(E) = \frac{1}{\hbar} \frac{dE_n}{dk_x}$ と打ち消しあい、その積は

$$\rho_n(E) \cdot v_n(E) = \frac{g}{2\pi\hbar} \quad (1.26)$$

のようなエネルギーに依存しない形になることがわかる。

また各端子の化学ポテンシャル差は印加されたソース-ドレイン電圧 (V_{SD}) を用いて、

$$\mu_L - \mu_R = eV_{SD} \quad (1.27)$$

とすることができる為、線形応答領域^{*2}における電流は最終的に、

$$\begin{aligned} I &= \frac{ge}{h}(\mu_L - \mu_R) \sum_{n=1}^N T_n \\ &= \frac{ge^2}{h} \sum_{n=1}^N T_n V_{SD} \end{aligned} \quad (1.28)$$

となる。

ここで伝導度が $G = I/V_{SD}$ で計算可能であるため、最終的な伝導度は

$$G = g \frac{e^2}{h} \sum_{n=1}^N T_n \quad (1.29)$$

と表すことが可能である。ここで絶対零度および後方散乱などの起こらない極限 $T_n \sim 1$ を考えると、 $\sum_{n=1}^N T_n(E_F) = N$ となるため^{*3}、最終的な電気伝導度は

$$G = g \frac{e^2}{h} N \quad (1.30)$$

となり、電子の量子自由度 g と電子のモード数の倍数に量子化されることがわかる [45]。伝導度は $G_Q = e^2/h$ 及び電子のモード数 N 、電子の量子自由度 g の倍数となり、このような単位を量子化伝導度と呼び、その G_Q の値は $38.5 \mu S$ である。ここで電子モード数は量子井戸近似を用いることでおおよそ、

$$N \sim \frac{W}{\lambda_F} \quad (1.31)$$

で近似可能であり、実効的な閉じ込めポテンシャル幅 W を推測することも可能である。また電子の量子自由度 g は通常、電子スピンの $g_s = 2$ のみであり GaAs 系などの従来型の半導体において観測されている。またグラフェンや遷移金属ダイカルコゲナイドなどのハニカム格子系二次元物質においてはバレー自由度 $g_v = 2$ が加わり、 $g = g_s \cdot g_v = 4$ となることが予測されるが、実験的な検証は未だ十分ではない。

^{*2} eV_{SD} がサブバンド間エネルギー及び熱励起エネルギーよりも十分小さい場合

^{*3} N は電子モード数

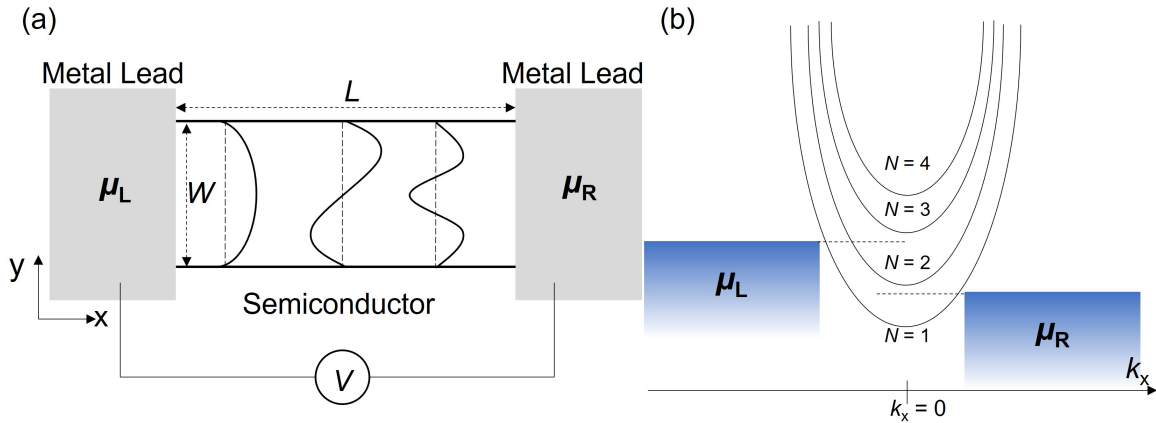


Fig.1.14 (a) 平均自由行程よりも十分短い系において、幅 W とフェルミ波長が同等のオーダーの場合における伝導様式の模式図。(b) k_x 軸方向に対するエネルギーダイアグラム。

1.2.2 量子ポイントコンタクト

前述のようにバリスティック伝導領域における量子細線はコンダクタンス量子 G_Q の倍数で量子化される。量子ポイントコンタクト (QPC) とは van Wees [46–48] などによって独立に達成され、二次元電子ガスに対してゲート電圧を用いることによってチャンネルを電氣的に空乏化させて形成した量子細線構造であり [49]、波動関数の透過確率をできるだけ 1 へと近づけるために、チャンネルの長さを小さくし、なだらかに狭窄構造へとリザーバーが接続された量子細線構造である。QPC ではゲート電極にキャリアと同じ極性の電圧を印加することで電荷をゲート近傍から排斥し細線構造が形成され、電圧を精密に制御することによって細線幅を自由に制御することが可能となる。そのため、電荷のフェルミ波長と同様のオーダーまで細線幅を狭めることによって、QPC におけるポテンシャルは

$$U(x, y) = -\frac{1}{2}m_x^*\omega_x^2x^2 + \frac{1}{2}m_y^*\omega_y^2y^2 \quad (1.32)$$

のような鞍型ポテンシャル (図 1.15(d)) と呼ばれ、電子波の進行方向に対してトンネル障壁、狭窄構造方向に対して閉じ込めポテンシャルとなっている。このようなポテンシャル中では各サブバンド中の電子の透過確立 $T_n(E)$ は、

$$T_n(E) = \frac{1}{1 + e^{-2\pi\epsilon_m}}, \epsilon_m = (E - \hbar\omega_y(m + \frac{1}{2}))/\hbar\omega_x \quad (1.33)$$

と表すことができ、 $\hbar\omega_y$ が $\hbar\omega_x$ および $k_B T$ に比べて十分大きい場合には QPC の透過確立がほぼ 1 の状態であるため、断熱近似的な鞍型ポテンシャル構造を形成することが可能となり、電気伝導度は式 1.30 の様に量子化され、理想的な量子化コンダクタンスが観測されることとなる。この際に、電荷の平均自由行程は QPC チャンネルの長さよりも十分大きくなければ、QPC

チャンネル内にて散乱を受ける為、良好な量子化コンダクタンス特性を得ることはできない。また、QPC における量子化コンダクタンスの単位は外乱および内因性の散乱に非常に弱く、QPC の構造や QPC 内部のポテンシャル揺らぎ、磁性不純物の存在などによってその特性は容易に変化することが知られている。

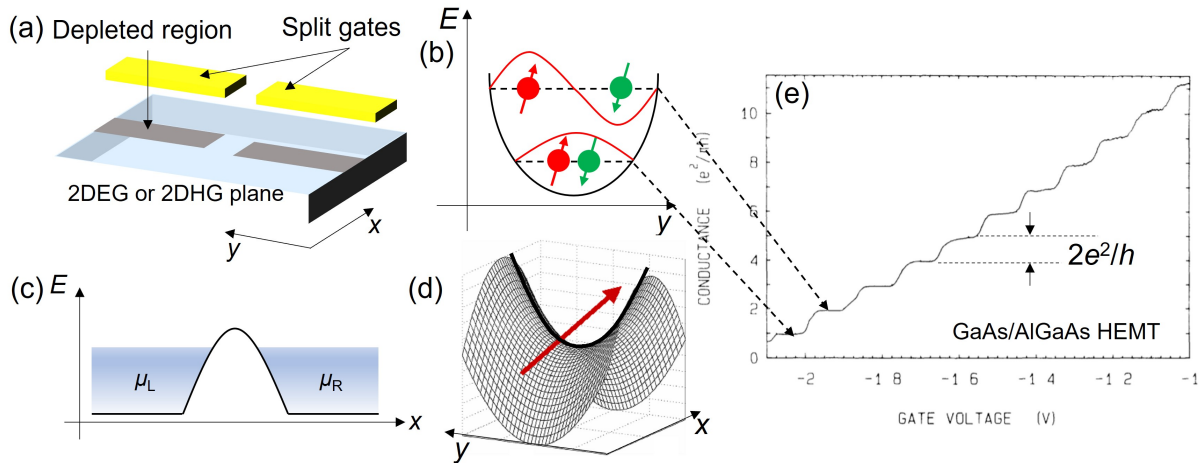


Fig.1.15 (a) 量子ポイントコンタクト素子の模式図。二次元電子ガスもしくは二次元ホールガスに対してスプリットゲートを用いてゲート電圧を印可することで電子もしくはホールを排斥することで、空乏化させ細線構造を作製できる。(b) y 軸方向に対する離散エネルギー準位。(c) 電子波の進行方向に対するエネルギーダイアグラム。(d) QPC における鞍型ポテンシャル。(e) GaAs-HEMT 基板における典型的な量子ポイントコンタクト素子の伝導特性。Reprinted with permission from [46]. Copyright 1988 by the American Physical Society.

通常、半導体等ではスピン縮退がある為、QPC における各サブバンドは二重縮退しており、各サブバンドの持つ状態密度から伝導度の量子化は 2 を単位として起こることがわかる。しかし、高磁場が印加された場合、時間反転対称性が破れ、各サブバンドは磁場および Lande の g 因子 (g^*) に比例してゼーマン分裂 $\Delta E_Z = g^* \mu_B B$ を起こす為、伝導度はスピン分裂した各サブバンドの状態密度に起因した 1 の倍数の縮退度で量子化される。実際にはゼーマン分裂の大きさは固体中の g^* に比例し、数 μeV 程度であることが多いが、各サブバンド間のエネルギー間隔程明瞭に分裂しないことが多いが、正孔伝導系やスピン-軌道相互作用が大きい系など大きな g^* の値を持つ物質においては磁場の印加とともに非常に明瞭なスピン偏極状態を示すことが知られている。また、強い Rashba 型のスピン-軌道相互作用を持つ系においては、QPC ポテンシャル内における強いポテンシャル勾配に起因した、無磁場下での $N = 1$ モードの自発的な分裂なども観測されている。また TMDC の K 点におけるバンドは図 1.7 にあるように、ゼーマン型のスピン-軌道相互作用によってスピン偏極した状態であることが知られており、スピン-バレーロッキングを起こしているが、これが何らかの要因、例えば電場の印加や磁場の印加、QPC 内の電荷揺らぎによる遮蔽効果などによってバレーの縮退が分裂した場合、図

1.16(c) のようにスピン偏極した QPC 内においてすべてスピン偏極したサブバンドが形成される可能性があり、その場合、無磁場下においてもすべての縮退が分裂した 1 の縮退度での量子化コンダクタンスが観測される可能性がある。

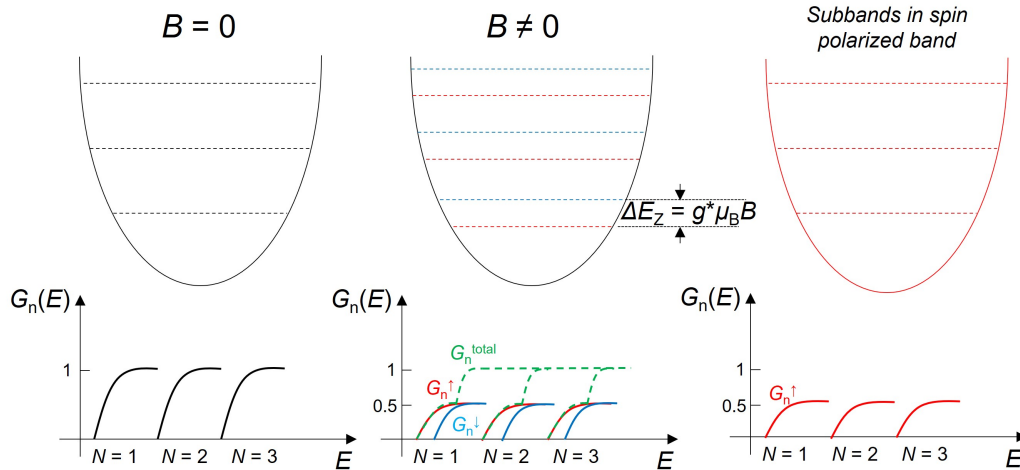


Fig.1.16 各種 QPC の状態におけるサブバンドと伝導度の模式図。

1.2.3 磁場中での電気伝導

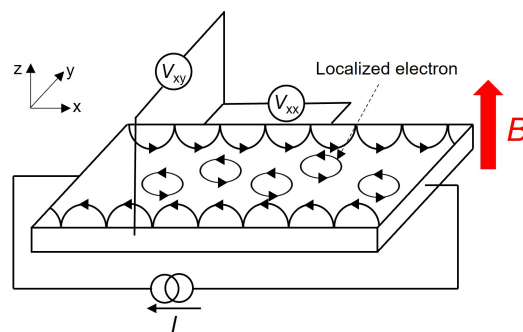


Fig.1.17 磁場中の二次元電子ガス試料の模式図。高磁場化では電子がサイクロトロン運動を行って局在化し、試料エッジでは電子がサイクロトロン運動しながら進むスキッピング軌道によるエッジチャンネルが構成される。

図 1.17 の様に、二次元電子系に対して十分強い垂直磁場を印加した場合、電子はローレンツ力を受けて軌道が曲げられ、円軌道を描くようになる。このように垂直磁場中の円軌道電子が持つ状態密度は二次元的なエネルギーに依存しない状態密度から、0 次元的な構造へと変化する為、状態密度は量子化しランダウレベルと呼ばれるデルタ関数的な構造へと変化する。この際にランダウレベル間のピーク間隔は $\omega_c = \frac{eB}{m^*}$ で表される振動数によって決定されるエネル

ギ-差 $\Delta E = \hbar\omega_c$ によって決定され、エネルギー固有値は

$$E_n = \hbar\omega_c(n + \frac{1}{2}) \pm \frac{1}{2}g^*\mu_B B \quad (1.34)$$

となる。ここで μ_B はボーア磁子である。ここで一定のフェルミレベルにおいて、占有されたランダウレベルの数をフィリングファクターとよび、フェルミレベルにおけるキャリア密度を用いて、

$$n_L = \frac{eB}{h}, \nu = \frac{n}{n_L} = \frac{hn}{eB} \quad (1.35)$$

と表される [41, 50]。これはフェルミレベル以下においていくつのランダウレベルが充填されているかを意味している。

バルクがランダウ量子化された状態において、試料端のエッジにおいては電子はサイクロトロン運動をしながら試料端を伝導していくスキッピング軌道をとるため、エッジにおいて伝導チャンネルが形成されることがわかる。実際の試料においては欠陥や不純物などによる散乱による影響で、理想的なランダウ量子化ではなく、状態密度は有限の幅 $\Gamma = \sqrt{\frac{\pi\hbar\omega_c\hbar}{2\tau_q}}$ を持つ。ここで τ_q は不純物散乱による無磁場下における散乱時間である。このように離散的なランダウ準位において、フェルミレベルが二つのランダウ準位間にある場合、整数個のランダウ準位が充填されていることと等価であり、 Γ および熱励起エネルギー $k_B T$ が十分ランダウ準位間エネルギー ΔE よりも小さな場合、各ランダウ準位間において遷移が起こらないことを意味する。その為、二次元電子系の縦抵抗は完全に消滅することとなる (局在状態)。またフェルミレベルが完全にランダウ準位スペクトル頂点と重なる点においては (ν が整数)、電子は非局在状態となり電流パスがつながるため縦抵抗が復活する (非局在状態)。このように磁場掃引によってランダウ準位間エネルギーが変化する、もしくはキャリア密度が変化することによってフェルミレベルが変化した場合に、縦抵抗が振動することになる。これは Shubnikov-de Haas (SdH) 振動と呼ばれる現象である。また乱れの強い系では、各ランダウ準位の広がりが大きく、ランダウ準位同士が明瞭に分離されない為、縦抵抗が完全にはゼロにならない。TMDC のような移動度が低く (最高でも $20,000 \text{ cm}^2/\text{Vs}$ 程度)、散乱の強い系においてはスペクトルの有限の幅が広がり、各ランダウレベルが十分に分解されない為、電気伝導においては抵抗値の完全な消失 (Fully-resolved state) は見ることができず、抵抗値の振動のみが観測され、低磁場での明瞭な QHE の観測にはいまだに至っていない。[51–54]

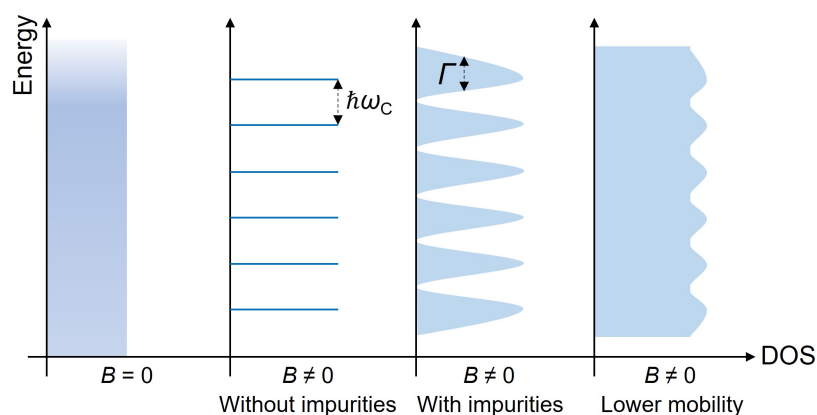


Fig.1.18 二次元電子系に対する垂直磁場の影響。ゼロ磁場下では二次元電子系の状態密度はエネルギーに対して一定 (グラフェンの場合は異なる) であり、垂直磁場の印加に伴ってゼロ次元的な構造に移行し、ランダウ量子化が起こる。実際の試料では有限の散乱が存在するため、デルタ関数的なスペクトルから有限の幅 Γ をもった構造となる。

1.3 バレー自由度と量子デバイス

グラフェンや TMDC 物質は K 点においてエネルギー的に等価な、異なる運動量を持つ K および K' 点のバレー自由度を持つことを議論した。バレー自由度は Si をはじめとする半導体においても存在し、そのエレクトロニクス素子への応用が議論されてきたが、Si 等におけるバレー自由度は電場の印加などによって簡単に縮退が解け、1重縮退に変化するためその電氣的制御は容易ではなく、これまで複雑な Si/SiGe ヘテロ構造などに限って試みられてきた [55, 56]。二次元物質においては非常に強靱なバレー自由度が存在し、外部電場 [20, 57] や外部磁場 [58]、光 [59]、微細構造 [60, 61] などによって制御可能であることが示唆されており、エレクトロニクス、スピントロニクスに次ぐ次世代超低消費電力および高速デバイスへと期待されている、バレー自由度を新たな情報媒体として用いる新奇エレクトロニクス素子への応用が進められている (バレートロンクス素子)。また、バレー自由度は等エネルギーにおいて運動量空間において全く反対の運動量を有する性質のため、異なるバレーへの散乱 (Intervalley scattering) が比較的起きにくい性質を持ち、電荷やスピンを用いて制御を行っている量子ドット型の量子ビットのコヒーレンスを劇的に向上させる可能性を秘めている*4。しかし、現状、二次元物質における微細構造デバイスの形成はほとんど行われておらず、不均一性に起因した局在効果などによる閉じ込め構造などの制御性の低いものが多く [62–64]、また試料構造に関する研究も数が少なく、本分野の研究はまだ始まったばかりであると言える。

*4 GaAs などでは核スピンなどによる影響によってスピン量子ビットのコヒーレンスはすぐに失われてしまう。

第 2 章

実験手法

第三章では、本研究にて用いた実験手法について詳細に述べる。なお、各量子ポイントコンタクト素子に関する詳細な構造は各章において個別に述べる。

2.1 二次元層状物質の単離と評価

グラフェンをはじめとする二次元物質は、2004年にスコッチテープを用いた単層剥離 (ME: Micro-mechanical Exfoliation) 以降、単結晶金属基板やサファイヤ基板、二酸化ケイ素基板などの基板に直接単層から数層程度の薄膜を大面積に成膜が可能な化学気相成長 (CVD: Chemical Vapor Deposition) [65–69] や超高真空中にて原料ガスを高温にして飛ばした分子線を用いて製膜する分子線エピタキシー (MBE: Molecular Beam Epitaxy) [70, 71] など様々な手法が提案されている。ただし、CVD や MBE で製膜した結晶は一般的に欠陥密度が高く結晶の品質が低い、ドメインの制御が難しく多結晶物質になる、製膜できる基板が限られており結晶をトランスファーする際にひずみや破れなどが発生するなど多くの問題がある。そのため、本研究で用いた二次元薄膜は主に機械剥離を用いて製膜されている。

2.1.1 グラフェンおよび六方晶窒化ホウ素の機械剥離と評価

本研究で用いた単層グラフェン、原子レベルで均一な厚さを持つゲート電極として用いるグラファイト、および各種二次元物質の基板として用いる六方晶窒化ホウ素の三種類の結晶はスコッチテープ法を用いた機械剥離を用いて製膜する [1, 2]。

グラフェンをはじめとする二次元物質を剥離する際に重要とされるのが基板の親水性である。二次元物質を一般に剥離する基板は単層限界においても光学干渉によって判別可能である 300 nm の熱酸化 SiO_2 膜付きの Si 基板を用いるが、通常の SiO_2/Si 基板は工場出荷時においては基板表面は hidrocarbon などによる汚染により疎水性を主に示す。基板の親水化処理方

法には硫酸と過酸化水素水を混合したピラニア溶液やセミコクリーン 23(フルウチ化学)のような溶液を用いたウェット法、UV オゾンクリーナーや反応性イオンエッチング (RIE) を用いた酸素プラズマエッチングなどのドライプロセスが存在する。その中でも RIE を用いたドライプロセスは基板に残った有機残渣の除去および親水化処理の効果が高いため本研究では酸素プラズマエッチングを基板処理に使用している。以下が二次元物質へき開用の基板の切り出し及び洗浄、表面処理方法である [72]。

1. 300 nm の熱酸化 SiO_2 膜をもつ p ドープ Si 基板をウェハーよりダイヤモンドスクライバーを用いて切り出す。
2. 切り出した基板をアセトン中にて 10 分間超音波洗浄を行い、その後 10 分間 IPA 中にて超音波洗浄を行う。
3. ドライエアブローによって基板を乾かした後、 110°C 以上に加熱したホットプレート上にて 1 分以上ベーキングを行う。
4. 自作 RIE 装置において酸素プラズマエッチングを行い基板の親水化処理を行う。(O₂: 40 sccm, プロセス真空度: 3 Pa, Power: 20 W, 周波数: 13.56 MHz, 時間: 120 sec)

グラフェンおよびグラファイトの機械剥離および特性評価

グラフェンおよびグラファイト結晶は以下の方法によって剥離および特性評価を行う。詳細な剥離方法は図 2.1 にて解説する。

1. 洗浄および表面改質を行った SiO_2/Si 基板を 110°C に加熱したホットプレート上においてベーキングを行っておく。
2. スコッチテープを図 2.1 のように広げ、比較的大きく結晶表面が平坦なキシュグラファイト (Covalent Materials) をスコッチテープの一方の端付近に置く。この際、バルク結晶が厚すぎる場合はピンセットを用いてバルク結晶をはがすことによって薄膜をテープ上に残す。
3. グラファイトがついたテープの端を折りたたみ、テープの粘着面同士を貼り付け、剥がすことを繰り返すことでグラファイトバルク結晶を薄膜化する。この際、10 ~ 11 回程度結晶同士が重ならないようにテープ全体に結晶を剥離する。
4. ベーキングした SiO_2/Si 基板の表面をテープにつけて、綿棒やピンセットなどで表面を弱くこすり、基板が室温に戻るまで待つ。
5. 基板が室温に戻り次第、ゆっくりとテープから基板を引きはがす。

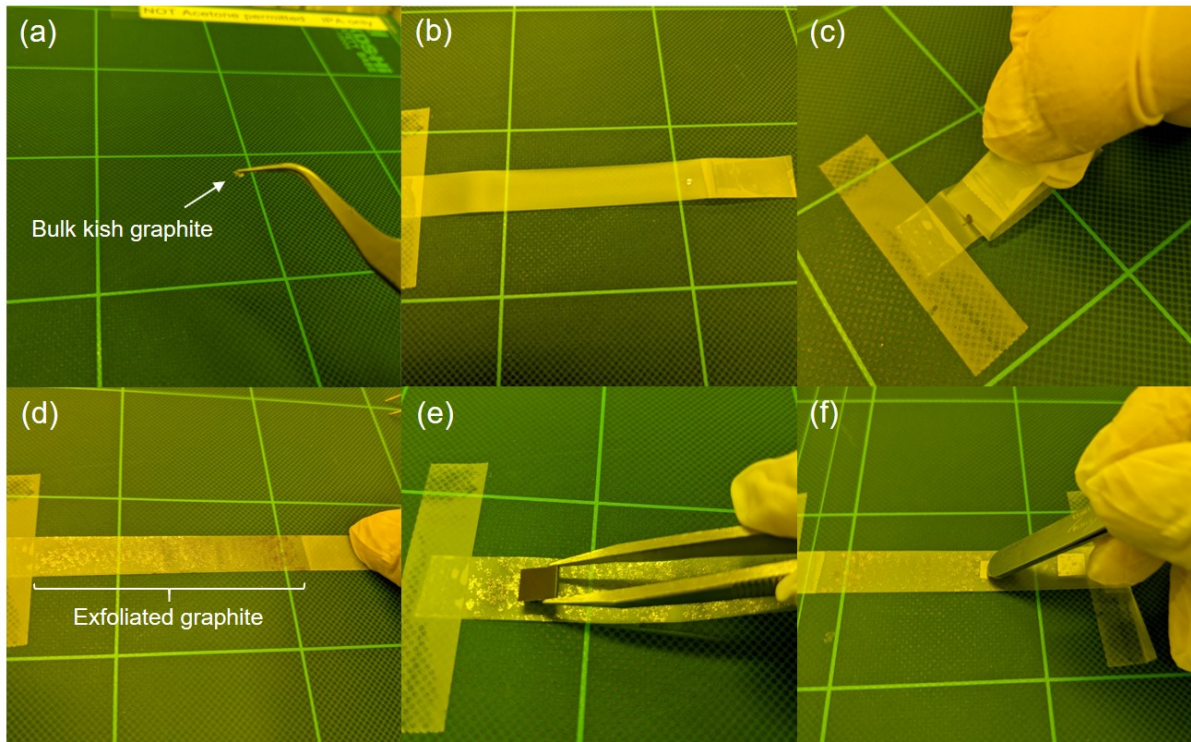


Fig.2.1 スコッチテープを用いたグラフェンの機械剥離法。キッシュグラファイトを持ち手を作ったスコッチテープ状に乗せ、折りたたむように10から15回程度、結晶同士が重ならないように剥離することによって薄膜をつくる。その後ホットプレート上にて110°Cに加熱されたSiO₂/Si基板の酸化膜面をテープにつけてピンセット等でやさしくこすことで基板に転写剥離する。その後、ピンセットを用いて基板をゆっくりと引きはがすことで、単層から数層、およびバルクの単結晶得ることができる。

機械剥離によって得られたグラファイトは単層物質から厚さが100 nmを超えるバルク結晶までさまざまであり、また大きさも数 μm 程度から150 μm 程度と様々である。これらのグラファイトの層数は基本的に、光学顕微鏡画像における300 nmの熱酸化膜を有するSi基板とのカラーコントラストによって判別することが可能である。特に光学顕微鏡画像のRGBカラースケールにおけるGチャネルのカラーコントラストが特に明瞭であり、単層、二層、三層程度までのグラフェンであればGチャネルのコントラスト差によって簡易に層数判定が可能である(図2.2(a,b)) [73]。その際には、基板やグラフェンのGチャネル強度は光学顕微鏡の光量やCCD, CMOSカメラのホワイトバランスに依存するため毎回ホワイトバランスや照度のキャリブレーションが必要である。光学顕微鏡画像のカラーコントラストから求めた層数は前述のキャリブレーションが必要であるため、実際には数パーセント程度の確率で層数判定に失敗することがある。その為、カラーコントラスト測定に加えて顕微ラマン分光測定を行うことによってグラフェンの層数を正確に決定する。顕微ラマン分光は日本分光社製のRMP-510分光器及び電子冷却CCDカメラ、オリンパス製BX-51金属顕微鏡と緑色波長のレーザーダイオード(532 nm)によって行う。レーザー光のパワーはグラフェンへのダメージを最小限にするた

め 0.5 mW 程度までアッテネーターを用いて減衰している。グラフェンは通常 1500 cm^{-1} 及び 2700 cm^{-1} 付近にそれぞれ G および 2D ピークが観測される。その 2D ピークと G ピークの強度比及び 2D ピークの半値幅 (FWHM) によって図 2.2(c) のように、容易に単層及び二層グラフェンの層数判定が可能である [74, 75]。なお剥離および顕微鏡による探索、積層構造の作製までは 1 週間以内に行うことで余計なコンタミネーションの防止及び良好な積層構造の作製が可能となる。

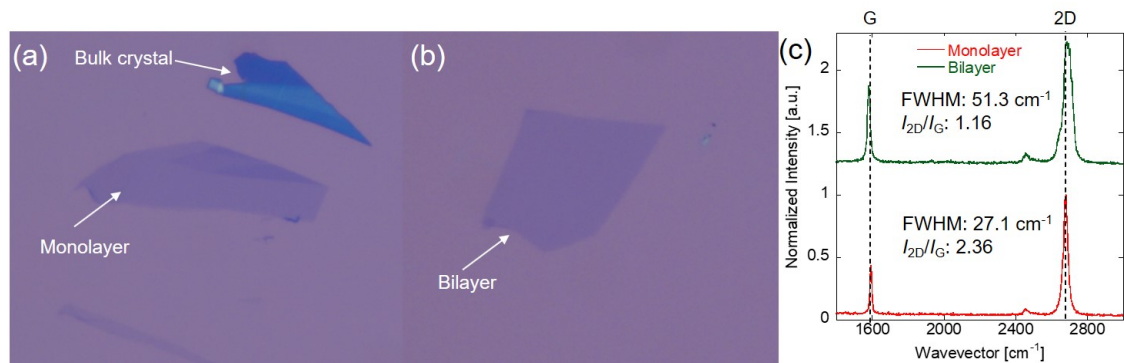


Fig.2.2 (a) 単層グラフェン及びバルクグラファイト結晶の光学顕微鏡像。(b) 二層グラフェンの光学顕微鏡像。(c) 単層及び二層グラフェンの Raman 分光法によるスペクトルデータ。 I_{2D} と I_G ピークの強度比、及び 2D ピークの半値幅によって二層以下は容易に層数判定が可能である。

六方晶窒化ホウ素の機械剥離および特性評価

hBN の剥離方法は基本的にグラフェンの剥離方法と同様であるが、hBN は単層ではなく数 nm から数十 nm 程度のバルク結晶を主に用いる。また、ラマン分光等で層数を判定することができない為、光学顕微鏡画像と原子間力顕微鏡 (AFM: atomic force microscopy) を複合して厚さを決定する。また hBN は光学バンドギャップが 5 eV 以上と大きく、可視光をほとんど透過する為、単層から数層などの厚さの結晶やバルク結晶内での層数の違いを光学干渉のみで判断することは難しく、特に hBN は FET のゲート絶縁膜として使用する為、電界強度やキャリア密度が一定であることを保証するために AFM を用いた厚さの決定および原子オーダーでの平坦性の担保が必要不可欠である。

2.1.2 遷移金属ダイカルコゲナイドの機械剥離と評価

TMDC 結晶は遷移金属及びカルコゲン原子からなる化合物半導体であり外的な要因に非常に弱く、またバルク結晶の結晶性の悪さや小ささなどによってグラフェンや hBN に適応したスコッチテープを用いた剥離手法は用いにくい。またグラフェンや hBN といった結晶は剥離後、デバイス作製やヘテロ構造作製時に Ar/ H_2 フォーミングガス雰囲気下における高温アニー

ルを行うことによって、清浄表面を得ることができ一方、TMDC 結晶はテープ残渣などの有機物残渣が除去可能な高温においては、容易に格子欠陥が生まれるほか、結晶多型による構造変化誘起の可能性を有している。そのため、本実験では TMDC 結晶の剥離の際にできるだけフレーク上、もしくはフレーク周辺に有機物残渣を残さない為、ブルーテープ (NITTO ELP BT-150P-LC) を用いて剥離を行っている。また、TMDC 結晶はモノカルコゲナイド結晶や MoTe_2 や WTe_2 といった TMDC を除いて比較的、大気中においても安定であるが、長時間の大気暴露によってデバイス性能が劣化する為、剥離後できるだけ素早く hBN や絶縁膜、レジストなどを用いてパッシベーションおよびデバイス化を行うか、剥離後にグローブボックス等の不活性雰囲気下において保存する必要がある。実際の剥離は以下のように行われた (図 2.3)。

1. ダイヤモンドスクライバー等を用いて、ダイシングした基板をアセトンおよび IPA 中にそれぞれ 10 分間超音波洗浄を行う。
2. 110°C 以上に加熱されたホットプレート上にてベーキングを行った後、RIE 装置にて 20 W, 120 sec の条件にて O_2 プラズマエッチングを行う (O_2 flow rate: 40 sccm)。
3. ブルーテープにバルク結晶を載せて、図 2.3 のように保護シート上から指で押し付けて、薄膜をテープにつけて、バルク結晶をテープから引きはがす。その後、テープ全体に結晶が広がるように 5 から 10 回程度、結晶同士が重ならないように剥離を行う。
4. 新しいブルーテープを用意し、剥離したブルーテープから結晶を図 2.3 のように転写し、膜厚が厚い場合は数回さらに剥離する。その後、洗浄後の基板をテープ上に乗せて、綿棒等で優しくこすりつけを行う。
5. 基板がついたブルーテープごと 70°C に加熱されたホットプレート上に置き、密着性を高める為、1 分間ベーキングを行い [72]、その後基板を室温まで冷ます。室温まで冷めた基板を、テープから引きはがす。

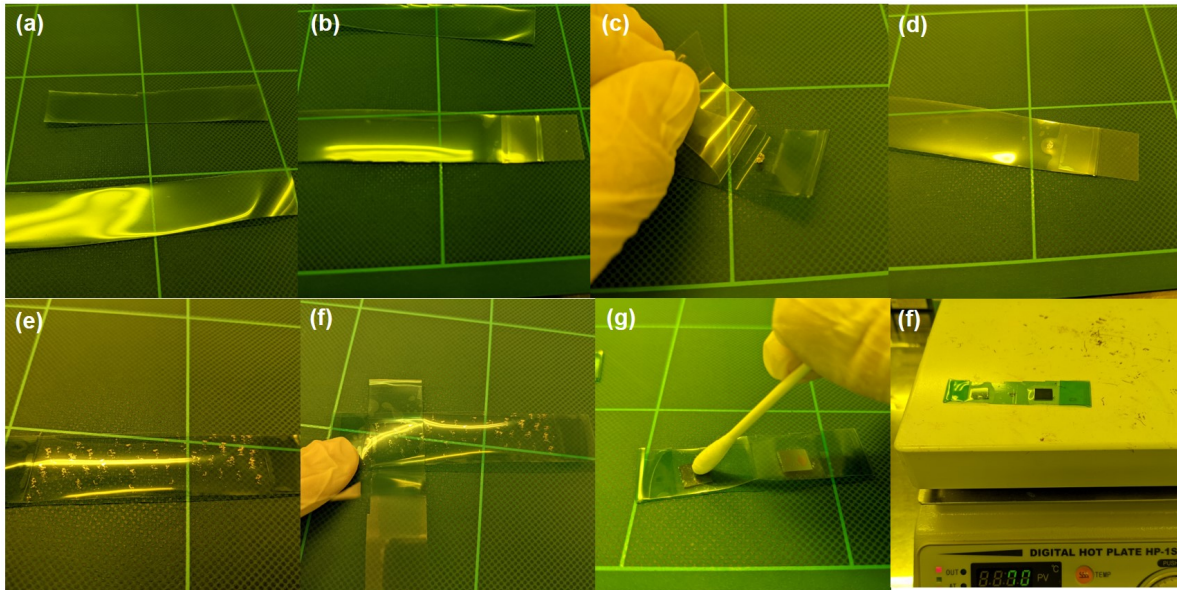


Fig.2.3 (a) 剥離に使用するブルーテープ。(b) ブルーテープの保護テープを少しだけ剥がし片方の端を折りたたみ、ハンドリングしやすくしたブルーテープ。(c) できるだけ平坦な TMDC バルク結晶をブルーテープに置き、ブルーテープの保護テープの上から優しく指で押して、ブルーテープに結晶をつけたもの。(d) バルク結晶をテープからピンセットを用いて引き剥がした状態。(e) グラフェンや hBN と同様に 5 から 10 回程度重ならないように剥離を行い、薄片が広がったブルーテープ。(f) 剥離したテープに別の新しいブルーテープを押し付け転写した、新しいブルーテープ。(g) 転写したブルーテープに基板を載せて、綿棒などを用いて優しく擦って転写している状態。(h) 基板がついたブルーテープを 70 °C に加熱されたホットプレート上に置き、1 分間のベーキングを行っている状態。

剥離後の TMDC 結晶の評価方法はグラフェンと同様に光学顕微鏡像のカラーコントラストを用いた層数判定法 [73]、顕微フォトルミネッセンス (PL)、ラマン分光、および AFM を用いた膜厚測定などがあげられるが、単層から 3 層程度の試料の評価にはカラーコントラストを用いた評価法が容易であり、また PL によって正確に判断可能である (図 2.4)。またラマン分光法によっても数層までの層数判定が可能であるが、一般にラマン分光のスペクトルは PL 発光に比べて格段に弱く、十分な励起光の強度が必要であるため、TMDC 結晶の加熱による格子欠陥の原因となる。PL 測定には励起光として発光ピークからエネルギー的に離れており、TMDC の一般的なバンドギャップよりも十分大きなフォトンエネルギーを持つ 532 nm の緑色レーザーをアッテネーターを用いて 50 μ W 以下まで減光して使用している。

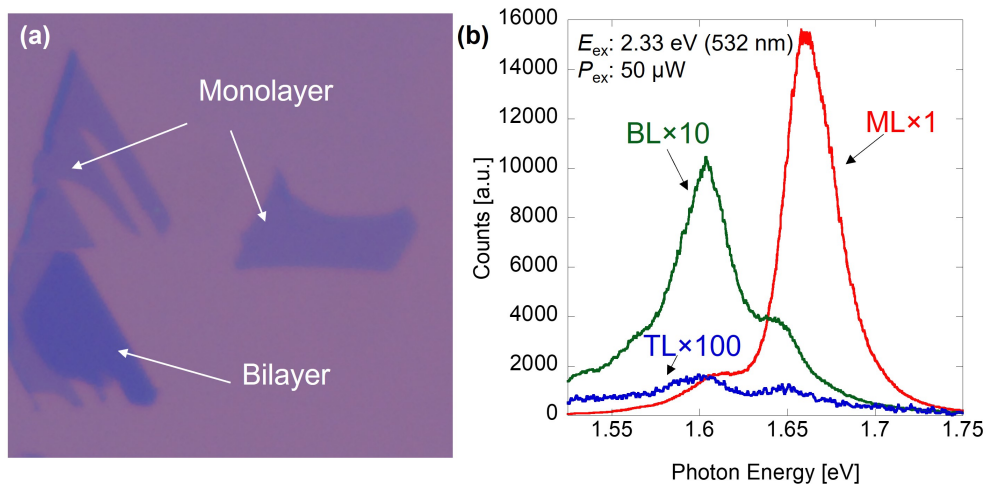


Fig.2.4 (a)WSe₂ 結晶の単層および二層の光学顕微鏡画像。(b) 単層、二層、三層 WSe₂ の PL 発光スペクトル。

結晶成長法の違いによる品質の差

高純度な遷移金属ダイカルコゲナイドは二硫化モリブデン (MoS₂) を除き、天然結晶は存在せず主に結晶成長によってバルク単結晶を得る。そこで主に使用される手法が化学輸送気相成長法 (CVT) と呼ばれ、管状炉などによってモリブデン化合物及びカルコゲン粉末を輸送材 (主にヨウ素系) によって輸送させてバルク結晶を成長させる方法であり、簡易で一度に大量の結晶を成長可能である。しかし、成長後の温度クエンチによる結晶へのひずみ誘起や欠陥の生成が起るため、薄膜へと剥離時に表面の欠陥密度は 10^{13} cm^{-2} 程度以上の欠陥を持つことが知られている。また、結晶の純度は原料に大きく依存してしまい、また輸送材にヨウ素系ガスを使用する為、多くの不純物を内包し純度は高々 99.9 から 99.99% 程度である。Flux 結晶成長法はアンプル内に高純度原料を高真空下で封止を行い、その後昇温し、室温まで長い時間をかけてゆっくり冷やすことによって行われる結晶成長法であり、1 アンプルにつき数か月から半年ほどの時間をかけてゆっくり結晶成長を行う為、格子欠陥が形成されにくく、また原料内の不純物は一か所に凝集していくため、99.999 から 99.99999 % 程度の高純度で欠陥密度が 10^9 cm^{-2} 程度の高品質な結晶を成長可能であり、図 2.5 の様に走査トンネル顕微鏡などによって確認されている [76]。また、現在では MBE 法によって、直接薄膜を基板に成長させる方法も試みられている。MBE 法では、超高真空において高温で in-situ な状況下によって高純度に精製された原料を用いることによって、高品質な薄膜を直接成長させる手法も行われているが、スループット及びコスト面での問題により、主流とはなっていない [70, 71]。本研究では高品質化を目指して主に Flux 法で結晶成長された結晶をチャンネル材料として使用している。

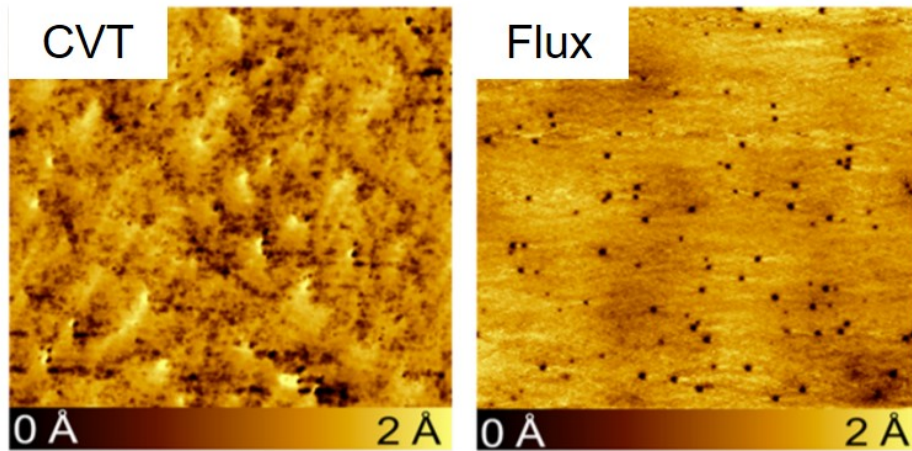


Fig.2.5 CVT 法及び Flux 法によって成長された MoSe_2 結晶のへき開面の STM 像。500 nm \times 500 nm フィールドでスキャンされている。Adapted from [76].

2.2 ファンデルワールスヘテロ構造の作製

グラフェンや TMDC などの二次元物質は各層がそれぞれ弱いファンデルワールス力のみで結合した物質であるため、バルク結晶から容易に単層まで作り出せることを示した。本節では、剥離によって単層もしくは数層から数十 nm 程度の薄膜になった物質同士を角度や位置を正確に制御しながら積層し、ファンデルワールスヘテロ構造を作製する手法を紹介する。これまで二次元物質では図 2.6 のように、ポリジメチルジシラサン (PDMS) ポリマーフィルムを用いたドライトランスファー法や Polyvinyl Alcohol(PVA)/PMMA 膜を用いたウェットトランスファー法などの多くの手法が開発されており [3]、すべての手法に長所及び短所が存在する。本研究では量子デバイスといった高品質及び高性能な FET デバイスの作製が必要不可欠である場合に用いられる、Poly Bisphenol A Carbonate (PC)/PDMS のポリマースタンプを用いたドライトランスファー法と二次元物質同士のファンデルワールス力を用いたファンデルワールススタンプ法を用いたため紹介する [26]。

	PDMS dry	PMMA wet	PC dry transfer
Throughput	○	×	△
Cleanness	△	×	◎
Yielding rate	△	◎	○

Fig.2.6 原子層物質の各種トランスファー方法の比較。

2.2.1 ファンデルワールススタンプ法

PC ポリマーなどをはじめとする粘着性のポリマーは二次元物質を基板から持ち上げることに非常に強力な手法であるが、目的となるチャンネル物質 (グラフェンや TMDC など) に直接ポリマーが付着した場合、それらが不純物として電気伝導などに大きな影響を与えることが知られている。そこで、二次元物質を異なる二次元物質を用いて、ファンデルワールス力のみで持ち上げることによって、原子レベルでフラットかつ Self-assembled な清浄界面を得ることができるファンデルワールススタンプ法が用いられる。ファンデルワールススタンプ法では、一層目の支持膜となる原子層物質 (ほとんどの場合 hBN 結晶) をポリマーの粘着性を用いて持ち上げ、二層目以降の結晶をほかの二次元物質とのファンデルワールス力のみで持ち上げる。

PDMS レンズによるバブルの低減

二次元物質を積層する際に、PC フィルムのサポート用として透明で、弾性があり温度によって熱膨張するポリマーである PDMS をスライドガラス上に設置して使用する。その際に、図 2.7 のように PDMS は各辺数 mm 程度の大きさのブロック状に切り出し、その上に PC ポリマーを製膜することが主に行われている。

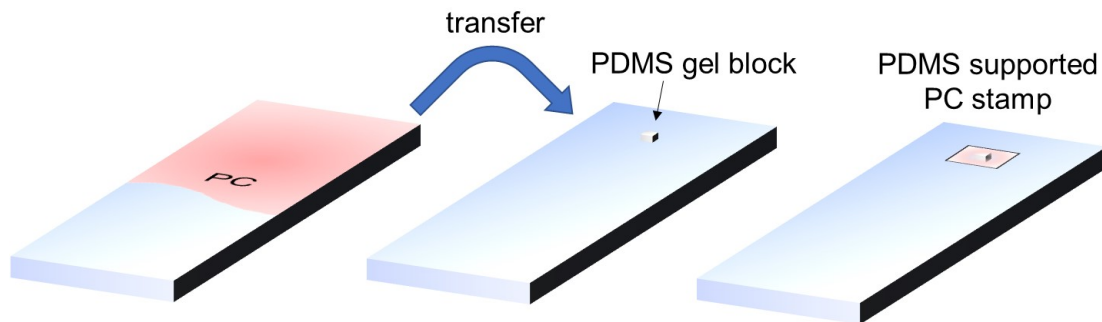


Fig.2.7 従来型の PC/PDMS ポリマースタンプの模式図。

しかし、このようなブロック状の PDMS を用いたトランスファー法は粘着性ポリマーが基板に広範囲にわたり密着するため、基板側に不要なポリマーが接着してしまい、ポリマーが PDMS スタンプからはがれてしまったり、目的の二次元物質フレーク以外の結晶を多く持ちあげてしまう為、その後のデバイス作製プロセスに大きな影響が考えられる。また、これらの問題に加えて、二次元物質のファンデルワールスヘテロ構造の界面にバブルが混入しやすくなるといった問題が考えられる。バブルとは図 2.8 に示すような、ファンデルワールスヘテロ構造の各層の間に封止された有機物や大気などであり、これらは有機物や大気中の水分や酸素を含むため、デバイスに悪影響を及ぼす。有機物残渣 (図 2.8(a)) はヘテロ構造作製前に十分フレー

クをアニール処理するなどの方法によってほとんど回避することができるが、大気バブル(図 2.8(b))は、完全には取り除くことが難しい。またこれらのバブルは数 nm から数十 nm 程度の高さを持つため(図 2.8(c,d))、ゲート構造などを作製した場合に、電界が一様にかからなくなる問題が考えられる。そこで用いるのが PDMS レンズと呼ばれる手法である [77,78]。

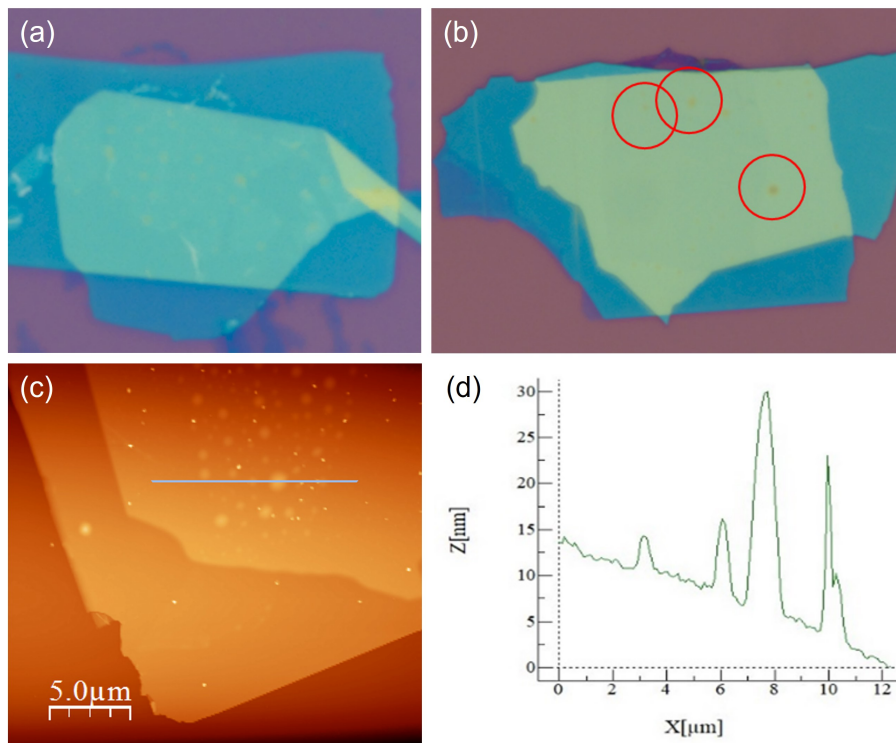


Fig.2.8 (a) 有機残差を含んだ hBN/グラフェン/hBN ファンデルワールスヘテロ構造の光学顕微鏡像。(b) 大気バブルを多く含んだファンデルワールスヘテロ構造の光学顕微鏡像。赤色で囲まれている部分に大きな空気バブルは混入している。(c) バブルを多く含んだヘテロ構造の AFM トポグラフィー図。(d) 図(c)の AFM トポグラフィーにおけるラインプロファイル。数 nm から数十 nm 程度の高さを持っている。

図 2.9 のように、曲率をつけたポリマースタンプを用いることにより、局所的に二次元物質に粘着物質をコンタクトすることができるだけでなく、二次元物質同士を貼り合わせる際にゆっくりと空気を追い出すように貼り合わせることが可能となり、バブルの混入の可能性が非常に低くなる。

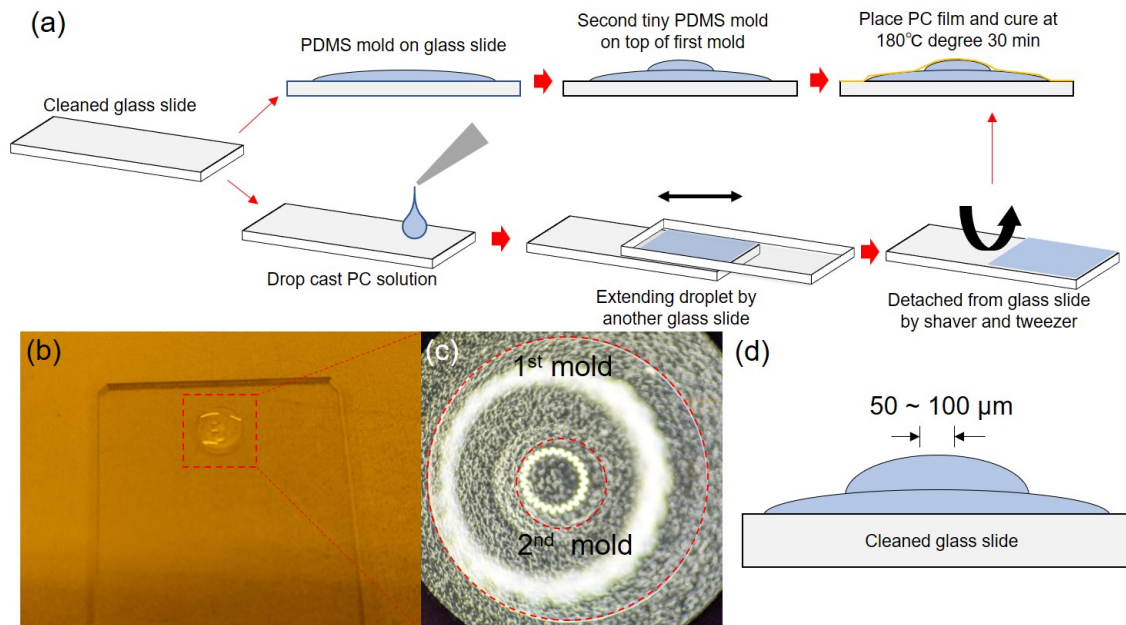


Fig.2.9 (a) PDMS レンズを用いた PC/PDMS スタンプの模式的な作製手法。(b) スライドガラス上の PDMS レンズ。(c) 図 (b) の実体顕微鏡による拡大図。(d) PDMS レンズの断面模式図。

以下に PDMS レンズを用いた具体的な二次元物質のトランスファー用スタンプの作製方法を記載する。

1. PDMS レンズの原料となる Sylgrad 184(東レダウコーニング) の基材及び硬化剤をそれぞれ 10:1 の割合でプラスチックシャーレに入れ、よくかき混ぜる。
2. 真空容器内にて 15 分程度真空引きを行うことによって、PDMS 溶液内に混入した気泡を除去する。
3. 溶液及びオゾンクリーニングなどによって清浄化されたスライドガラス表面にマチ針などを用いて PDMS 溶液をたらし、130 °C に加熱されたホットプレート上にて 5 分間ベークを行う。
4. $\phi 1 \mu\text{m}$ 程度の太さを持つタングステンプローブ (東陽テクニカ) に PDMS 溶液をつけ、先ほど形成した PDMS レンズの上に二段目の小さな PDMS レンズを形成する。これによって、一段のみに比べて曲率を大きくすることが可能である。
5. 130 °C で 5 分ベークを行う。

このように作製された PDMS レンズはホコリなどが付かなければ、数か月程度使用可能である。また、PC フィルム及び PC/PDMS スタンプは以下のように作製されている。

1. Poly Bisphenol A Carbonate(PC) ビーズ (Sigma-Aldrich) をクロロホルム溶液中に 6-8 % 程度の濃度で溶かす。

2. PC 溶液を清浄化したスライドガラス上に数滴たらし、スライドガラスを張り合わせるようにして PC 溶液を挟んで伸ばし、素早くスライドさせることにより、PC 溶液の薄膜をスライドガラス上に作製し、10 分ほど溶媒が飛ぶまで室温で静置する。
3. PC 薄膜をスライドガラスからカミソリ及びピンセットを用いてはがし、平坦な領域を選んで PDMS レンズがついたスライドガラス上にシワができないように移す。この際、PC は PDMS からはがれやすく、一方でスライドガラスには強固に接着する為、PC 薄膜ができるだけ PDMS レンズ以外のスライドガラス上に接するようにする。
4. ホットプレート上で 180 °C で 25 - 30 分程度ベーキングを行う。

PC を持ちいたドライトランスファー法

PC/PDMS ポリマースタンプを用いた二次元物質のファンデルワールススタンプ法の具体的な手法 (詳細は図 2.10 に記載) を以下に示す。なお、hBN およびグラフェンが剥離された基板は、すべて Ar/H₂ 雰囲気酸化で 500 °C の高温アニール処理を行っている。TMDC 試料は、高温で格子欠陥が大量に誘起されるため、アニール処理は行わない。

1. PC/PDMS ポリマースタンプがついたスライドガラスを顕微鏡下のマニピュレータ、一層目 (トップの hBN) のフレイクがついた SiO₂/Si 基板をステージにそれぞれセットをする。この際、基板温度は 80 °C で真空チャックする。
2. 顕微鏡下でポリマースタンプの中心付近と基板上の目的のフレイクをアラインし、徐々に近づけて付着させる。この際、フレイクを PDMS レンズの中央から少し離れた場所に設定することで、二層目以降をスタックする際にバブルの混入を防ぐうえで有効である。
3. しばらく待った後、ゆっくりと基板からポリマースタンプを引きはがす。ポリマー側に hBN が転写される。今後この hBN が他の二次元物質をファンデルワールス力で持ち上げる際のスタンプとなる。
4. 基板を二層目の物質がへき開された基板に変え、ポリマー上の hBN と基板上の目的のフレイクを顕微鏡下でアラインさせる。
5. 基板とポリマースタンプをゆっくり近づけて、hBN とフレイクを張り合わせる。この際、できるだけゆっくりと張り合わせることでバブルの混入が抑制される。また、場合によってはポリマースタンプが基板に付着したタイミングで基板温度を 120 °C まで昇温させ、PDMS の熱膨張によって十分に hBN とフレイクが密着した後、基板温度を 70 °C まで下げることによって、PDMS が熱収縮し、基板からポリマーがはがれる為、スタンプを行うことができる。この場合の転写成功率はほぼ 100 % であり、またバブルの混入率を非常に下げることが可能である。
6. 目的のヘテロ構造が完成するまで、5 を繰り返し行う。

7. 完成したポリマースタンプ上のヘテロ構造を 190 °C に加熱した洗浄済みもしくは、事前に電極パターンなどが形成された基板にゆっくりと下すことによって、PDMS から基板側に PC ポリマーが溶けて落ちる為、基板の上にヘテロ構造を形成できる。
8. PC ポリマーがついたヘテロ構造をクロロホルムにつけることで PC ポリマーを除去する。この際、クロロホルムには約一晩、次に IPA に数時間、その後、新しいクロロホルムに数時間つけた後、IPA でリンスすることで PC ポリマーの残留を低減できる。
- 9.

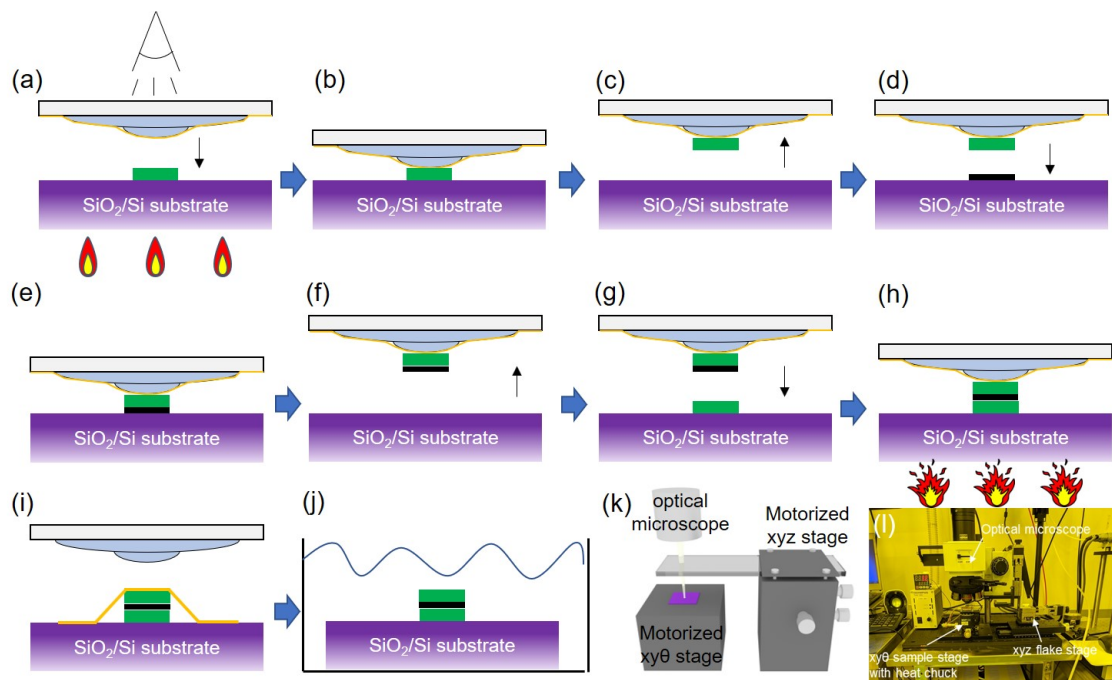


Fig.2.10 (a) 80°C に加熱した基板上的 hBN フレークとポリマースタンプを顕微鏡下でアライン。(b,c) ゆっくりと張り付けたのち、ゆっくりと引きはがしポリマースタンプ上に hBN を転写。(d,e,f) 同様の手順で異なる物質を hBN とのファンデルワールス力で積層する。積層時に 80°C → 120°C → 70°C の温度サイクルをとることで成功率、バブル混入率を大幅に下げることが可能である。(g,h) 目的の基板もしくは事前に加工された電極、基板上の二次元物質を 180°C まで加熱し、ポリマースタンプをゆっくりと張り付ける。(i,j) 基板に溶けて張り付いた PC ポリマーをクロロホルムおよび IPA につけて除去する。(k) 模式的なトランスファー装置の図および (l) 実際に使用した自作トランスファー装置

2.3 二次元物質に対する電極形成手法

二次元物質は既存の MBE などによって成長された超格子構造による二次元電子ガスや二次元正孔ガスと異なり、キャリアそのものが層内、もしくは物質表面に強く局在している構造で

ある為、外部の影響を強く受ける。特に電気特性評価の為に使用する電極も電子物性に大きく影響を与えるだけでなく、良好な電氣的接触をとること自体もそもそも難しい。本節ではグラフェン及び TMDC 物質に対するオーミックコンタクト形成の手法について説明する。

2.3.1 エッジコンタクト法

高移動度化のため hBN などに挟み込まれたグラフェンデバイスに対して強力なコンタクト形成手法がエッジコンタクト法である。従来のグラフェンデバイスに対しては露出したグラフェン表面に対して二次元的にコンタクト電極を形成する手法であるトップコンタクトが主な手法でありオーミック接触を取得することが可能であるが、電子線リソグラフィー (EBL) などのプロセスに起因したダメージや試料汚染がグラフェンに誘起されるため、グラフェンデバイスの性能を大きく下げる要因となってきた。また、チャンネル領域を hBN で完全に挟み込み、大気に露出した部分のみに電氣的接触を取得する方法なども考案されてきたが、電極からのドーピング効果などによってチャンネル内にキャリア密度の異なる領域が生まれ、極低温環境下において伝導度ゆらぎなどの原因になるなど大きな問題である。そこで開発された手法が図 2.11 のように hBN に完全に保護されたグラフェンの一次元的なエッジを EBL および RIE を複合して露出させ、そのエッジに対して準一次元的に電氣的接触をとるエッジコンタクト法である [26]。エッジコンタクト法ではグラフェンが完全に hBN に挟み込まれている為、プロセス誘起のコンタミネーションなどが最低限に抑えられるほか、電極からのドーピング効果や電極構造によるストレイン誘起なども排除することが可能となる。またグラフェンは面直方向にダンダリングボンドを持たず、トップコンタクトなどではファンデルワールスギャップが形成されるため、接触抵抗が高くなる傾向があり、また Ni などを用いることで合金化させて低接触抵抗を得る手法も考案されているが、電子ドーピングの影響によって極低温で伝導度ゆらぎの原因になるなど問題が多かった。エッジコンタクトでは二次元シートに対して横からコンタクトを形成するため、これらの問題を回避可能である。

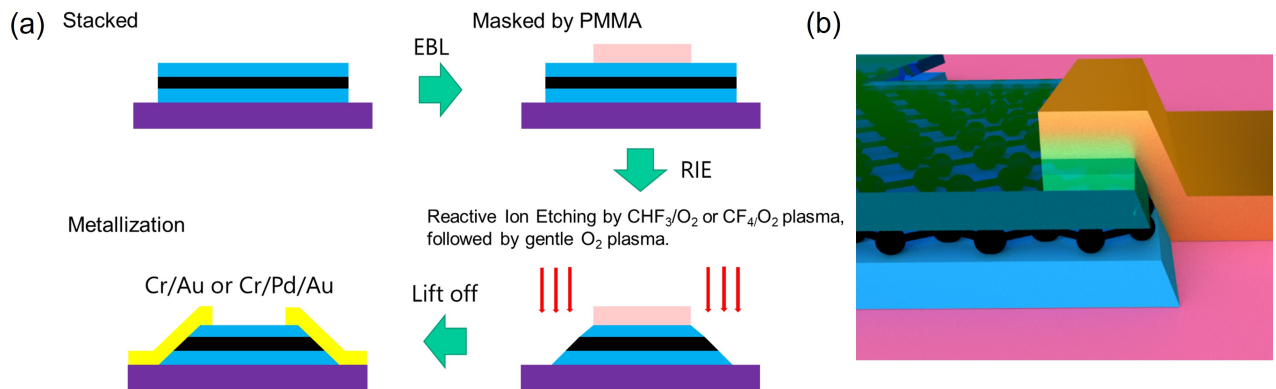


Fig.2.11 (a)hBN にカプセルされた二次元物質試料 (主にグラフェン) に対するエッジコンタクトによる電極作製手法の模式的なフロー図。(b) グラフェンエッジコンタクト試料の模式図。

エッジコンタクト法においてグラフェンの接触抵抗はおよそ $100 - 200 \Omega \cdot \mu\text{m}$ 程度まで減少し、移動度は室温にて音響フォノンによる理論限界値である $14,0000 \text{ cm}^2/\text{Vs}$ 程度、極低温環境下においてはフォノン散乱の抑制によって $1,000,000 \text{ cm}^2/\text{Vs}$ 以上の値を示すなど、イオン化不純物散乱の影響をほとんど受けない、既存の半導体ヘテロ構造における二次元電子ガスと同等レベルの移動度を示すことが知られている [26]。

エッジコンタクト法には主に Type1 構造及び Type2 構造の二種類が存在し (図 2.12)、それぞれ特色が存在する。

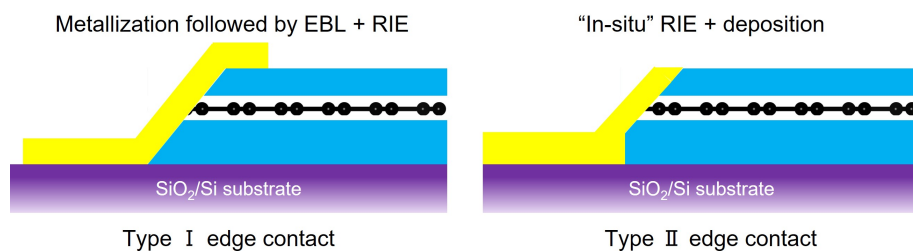


Fig.2.12 (左)Type1 エッジコンタクト法と(右)Type2 エッジコンタクト法の断面模式図。

Type1 構造においては hBN/グラフェン/hBN vdW ヘテロ試料を PMMA を用いたポジ型マスクや EBL および電子線蒸着を複合した Al マスクなどを用いて任意構造にグラフェンのエッジが露出するように CHF_3/O_2 プラズマを用いて削り出し、図 2.13(a) のようにその後さらに EBL および電子線蒸着を用いて電極パターンを形成する手法である。この手法は非常に簡便な手法であるが、電極パターンを形成する際にグラフェンのエッジに電子線レジストである PMMA が付着する為、コンタクト抵抗が少し高くなる問題がある。また電極がヘテロ構造の上部にまで形成されるため、ソースドレイン電極を形成した際に、グラフェン自体の高移動度

の為、セルフゲート効果が起こり、コンタクト電極付近のキャリア密度に変調が起こることが知られている。また、ヘテロ構造のエッジにおいて電極の断絶が起こりやすい問題もある (図 2.13(b,c))。

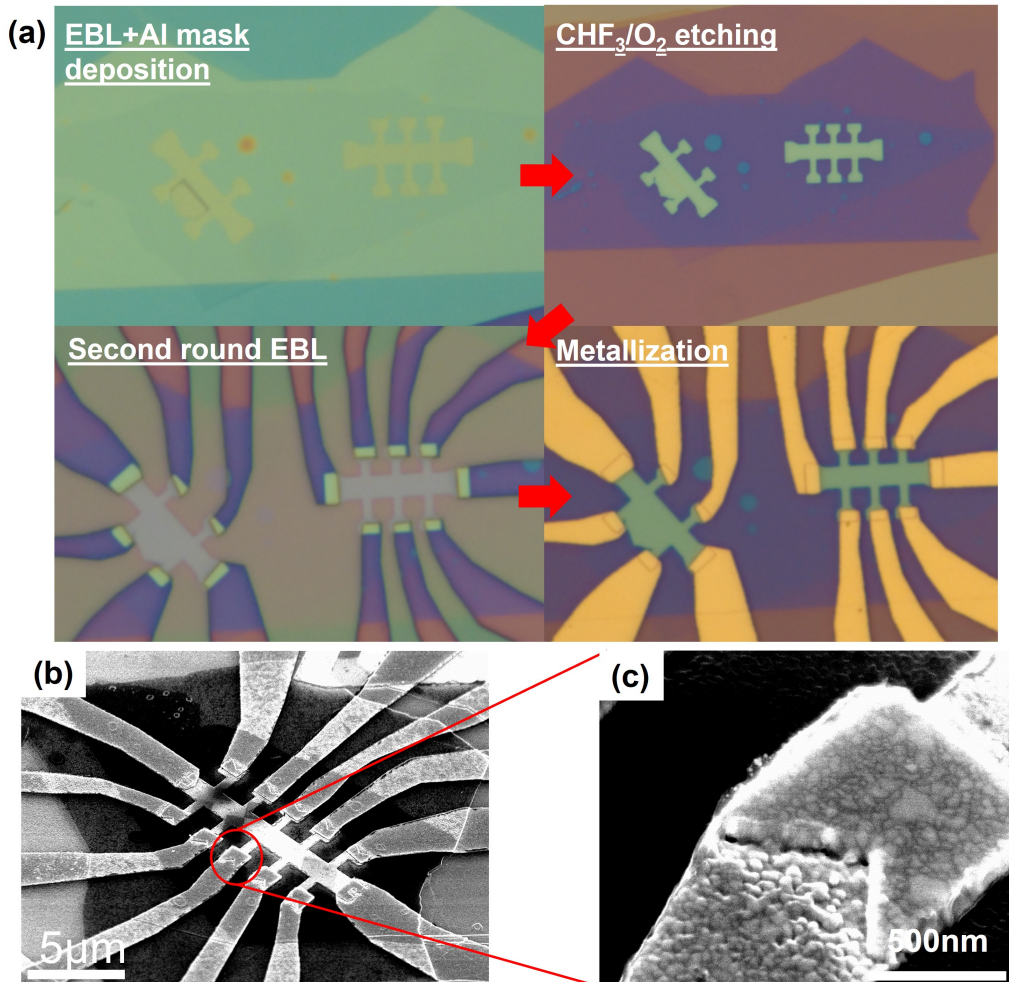


Fig.2.13 (a) Type1 エッジコンタクト法のプロセスフロー。EBL と金属蒸着を用いて Al のネガ型マスクを作製し、その後 RIE を用いてエッチングを行い、水酸化テトラメチルアンモニウム水溶液 (TMAH) 溶液を用いて Al マスクを除去する。次に EBL および金属蒸着を行いコンタクト形成を行う。(b) Type1 エッジコンタクト法によって作製したホールバーデバイスの SEM 像と (c) そのコンタクト部の拡大図。エッジが斜めになってコンタクトが形成されていることがわかる。

Type2 エッジコンタクト手法では前述のグラフェンエッジへの有機物残渣堆積およびセルフゲート効果の抑制の為、コンタクト形成の為の RIE によるエッチングおよび電極形成を同じ PMMA マスクで行う手法である [79]。この手法の場合、エッチングによる暴露されたエッジは RIE によって清浄化されており、図 2.14 のようにそのまま高真空環境下で金属蒸着を行うことによって、非常に良好なコンタクト形成が行える。また、エッチングマスクと電極形成の

PMMA マスクが同一の為、ヘテロ構造上に電極が形成されず、セルフゲート効果が抑制される。ただし、PMMA はエッチング耐性があまり高くなく、高パワーの RIE によって PMMA マスクにクロスリンク現象やパターンの倒壊などの問題が起こりリフトオフなどが正常に行えないこともあるため、各種条件導出が必須である。

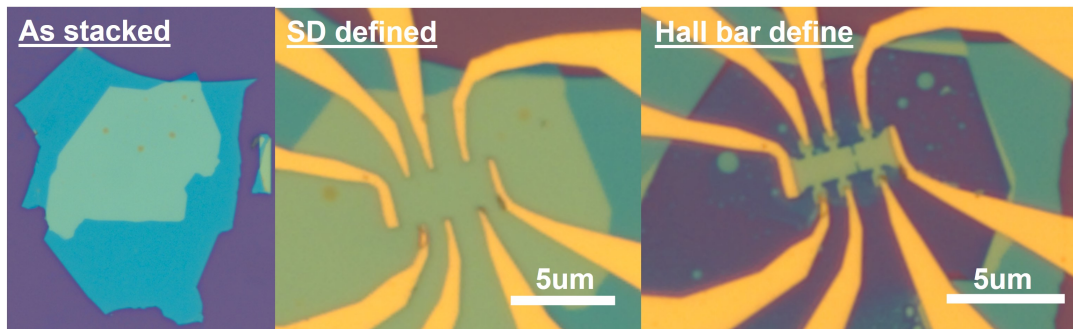


Fig.2.14 (左)PC ドライトランスファーを用いて作製された hBN/グラフェン/hBN ファンデルワールスヘテロ構造。(中央)Type2 のエッジコンタクト法を用いて埋めこまれた金属ソース-ドレイン電極。(右)PMMA マスクおよびドライエッチングによって整形された完成デバイス。Type2 によるコンタクト形成が行われた試料。

2.3.2 遷移金属ダイカルコゲナイドに対するコンタクト法

二次元半導体物質である TMDC も高移動度化のためには hBN によるカプセル化が必須である。しかし、TMDC に対して良好なコンタクトをエッジコンタクト法で取得することは後述の理由により非常に難しい。そのため、ボトムコンタクト法やファンデルワールスコンタクト法などを用いる。これらの手法に関しては、第 5 章で詳細に議論する。

2.4 微小ゲート構造の作製手法

二次元物質に量子構造を形成する場合には、電界を用いて空乏層を誘起することによって微細構造を発現させるための微小ゲート構造が必須である。本節ではファンデルワールスヘテロ構造に対する微小電極の形成の試みについて議論する。

通常グラフェンや TMDC、それらのヘテロ構造は SiO_2/Si 基板上に形成される場合が多く、その場合には基板がそのままバックゲート構造として機能する。また、さらなる平坦化を狙いボトム hBN の下にグラファイトを敷くことによって原子レベルで均一な界面およびフラットなバックゲート構造を作製することが多くあり、その場合には電界閉じ込め構造用の微細ゲート電極はトップ hBN 上に形成することになる。しかし hBN はダングリングボンドが存在せず、原子レベルできわめてフラットな表面を有しており、また絶縁体であるため、電子線レジ

ストである PMMA の接着性が悪いため現像時にレジストが割れたり部分的に剥離されてしまうといった問題が発生し、またチャージアップ、蒸着した金属の横滑りやはがれなど多くの問題が存在する。hBN 上の PMMA レジストの接着性の低さは電子線描画後の現像時、通常の MIBK:IPA 混合溶液の代わりに低温 (0°C 以下) に冷やした IPA: DI water (7:3) 溶液にて現像を行うことによって、ゆっくりと現像が進行し高精度で滑りやクラックなしで描画可能である。ただし、前述の蒸着後のリフトオフ時に金属が滑ったりはがれてしまう問題は、蒸着前に hBN 表面を O_2 プラズマなどを用い、表面に原子一層レベルの粗さを導入することで接着性を高める方法で解決可能ではあるが、欠陥の導入による電荷不純物によって量子閉じ込め構造内においてヒステリシスや電荷再結合などの問題を引き起こす可能性がある [54,80]。そのため、本研究ではファンデルワールスヘテロ構造上に微細構造を形成するのではなく、ヘテロ構造の下部に微細構造を先に形成することで再現性良く微細構造を作製することを試みた。

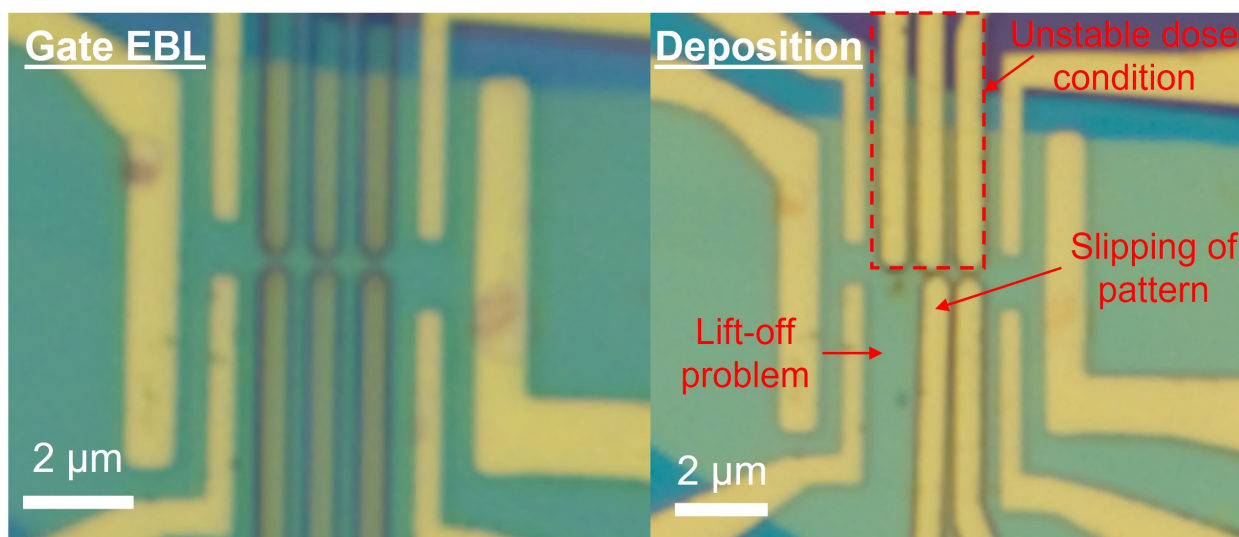


Fig.2.15 (左)hBN/グラフェン/hBN 上に EBL を用いてパターンニングされたスプリットゲートパターンの現像後と(右) 金属蒸着およびリフトオフプロセス後の光学顕微鏡像。絶縁性 hBN によるチャージアップの影響やリフトオフ後の金属の剥がれやずれが発生している。

2.4.1 量子閉じ込め構造に向けたフラットボトム電極の形成

ヘテロ構造の下部に微細ゲート構造を作製するにあたり重要なことはできるだけフラットな表面を持ち、金属ゲート端においてバリを持たないゲート構造を作製することである。金属は蒸着時に基板上における多数の核形成を経て製膜されるため多結晶であり、連続膜として製膜可能な薄膜 (8 nm 程度) においては大きな凹凸を持つ。そのため、hBN などを用いたヘテロ構造と組み合わせる場合、ミクロスコピックに見ると電界が一様に印加されないなどの問題が発

生ずる。蒸着金属の代わりにグラファイト薄膜を金属の代わりにエッチングなどで成形し、微細構造を持つゲート電極として用いることも可能であるが、この場合もグラファイトの厚さなどにより大きく EBL の条件が異なる為、再現性の高い構造を作製することは難しい。そこで本研究では原子レベルで平坦な構造に近い金属ボトム電極として金とパラジウムの合金である AuPd をゲート電極として用いることとした。合金系は一般にドメインが単元素系に比べて小さくなる傾向があるため、フラットな表面が得られやすい。ただし、AuPd は電子線蒸着時に組成が変化してしまう為、再現性が取りにくいなどの問題がある。そのため、AuPd の代わりに同様の効果を得ることができる Pd のみでゲート電極を作製した。また、平坦なゲート構造を作製しても電極端において図 2.16 のようなプロセス由来のバリが立ってしまうと電極端においてチャンネル物質に対する歪みの印加、チャンネル領域への不均一な電界印加、および電極/二次元物質界面へのコンタミネーション混入の可能性などが考えられる。

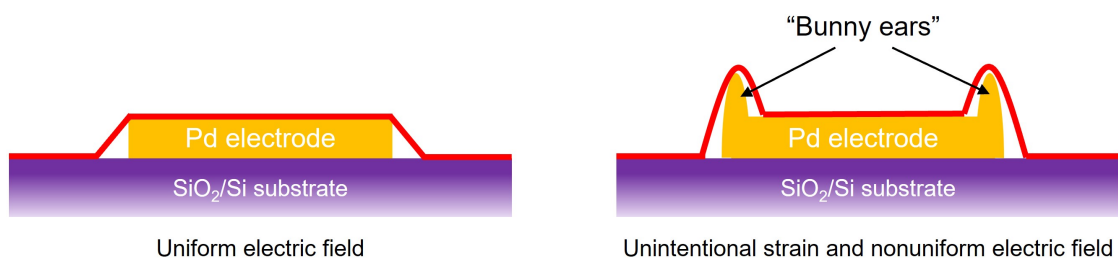


Fig.2.16 (左) フラット電極上の二次元物質の模式図。(右) バリのある電極上における二次元物質試料の模式図。

二層レジストを用いた電極形成

実際にバリの少ない金属電極を作製する手法として一般的に用いられるのが二層レジストを用いた手法である。二層レジストとは二つの分子量が異なる PMMA レジストを二層にして製膜し、電子線レジストとして使用する手法であり、下層のレジストは分子量の小さなものを使用する。分子量が小さいレジストは分子量の大きなレジストに比べて、電子線に対する感光度が高いので現像時に上層のレジストよりも大きく削られることとなるため、逆メサ型の断面プロファイルを得ることが可能となり、金属蒸着後にバリの少ない電極が得られる。しかし、二層レジストは十分な逆メサ型の断面を得るには、十分なレジストの厚さ、高い電子線加速電圧 (50 kV 以上) などの条件が必須であり、本研究で用いた LaB₆ フィラメントの汎用 SEM では条件が決まらず、またドーズ量が不足する微細構造部分では図 2.17 の様に、バリができる問題があった。

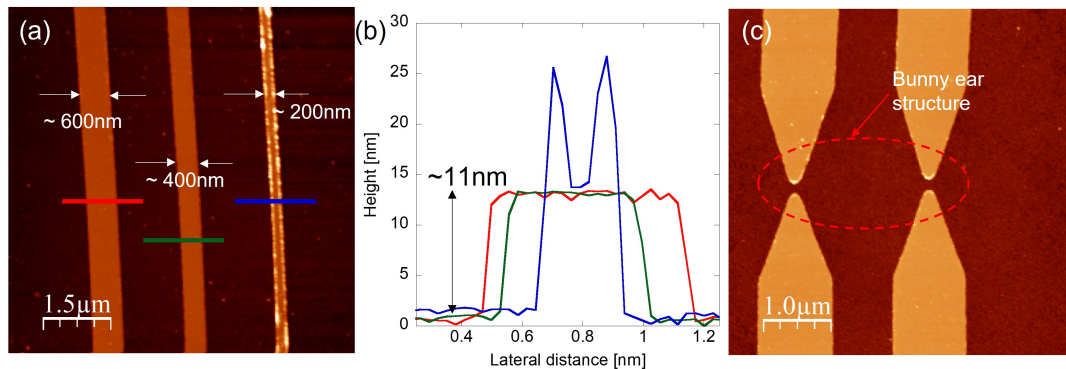


Fig.2.17 (a) 二層レジストによって作製された Pd 電極の AFM 像。左から 600 nm, 400 nm, 200 nm の幅で作製されており、200 nm の細線で非常に大きなバリができており、ラインプロファイル (b) からわかる。(c) 二層レジストを用いて量子ポイントコンタクトの実現にむけて作られた実際のスプリットゲート構造の AFM 像。スプリットゲート先端においてドーズ量不足によりバリが立っている。

薄い単層レジストを用いた平坦電極の形成

前述の二層レジストの問題点を解決するために使用した手法が薄い EB レジストに対して低加速電圧、高ドーズの電子線を照射し、比較的弱い現像液にて現像する手法である。薄い電子線レジストを使用することで電子線の前方散乱をできるだけ抑えることにより EBL の分解能を向上させることができるが、高ドーズの電子線及び比較的弱い現像液 (IPA:DI Water) による現像によって前方散乱によって生まれた電子線レジスト内のドーズ分布を利用して逆メサ型の断面プロファイルを形成する手法である。この手法によって 100 nm 以下の構造を再現性よく実現しながら、バリのない試料の作製が可能となる。以下が具体的なフローである。

1. アセトン, IPA バス中にてそれぞれ 10 分間超音波洗浄した 300 nm 熱酸化膜付きの Si 基板を RIE 装置にて O_2 プラズマ洗浄を行う (20 W, 40 sccm, 20 sec)。
2. 洗浄済みの基板に PMMA (Mw = 950k, A4) を 5000 rpm, 30 sec の条件でスピコートして製膜し、180 °C に加熱したホットプレート上にて 2 分間プリベークを行う。これによって 200 nm の厚さのレジスト膜を製膜できる。
3. PMMA を製膜した上にチャージアップ防止用の Aqua Save^{*1} をスピコート (5000 rpm, 30 sec) で製膜し、80 °C で 1 min プリベークする。これによりチャージアップが防止可能となる。
4. EBL 装置にて加速電圧 20 kV, 適正ドーズ量の 10 % 程度大きなドーズ量、対物絞りのアパーチャー 10 μm 、低電流にて描画を行う。
5. DI Water 内にて 1 min プリリンスを行い Aqua Save を除去する。この際現像は進まな

*1 三菱ケミカル製。PEDOT:PSS 分子が DI Water 中に溶解。

い。その後、0 °C 付近まで冷却した IPA:DI Water (7:3 volume ratio) を用いて、1 min 現像を行う。

6. EB 蒸着機を用いて Cr 1 nm/Pd 9 nm を蒸着し、60 °C に加熱した N-methyl-2-pyrrolidone (NMP) 中にて数時間程度リフトオフを行った後、新しい NMP およびアセトン、IPA 中にてそれぞれ 10 min 超音波洗浄を行う。

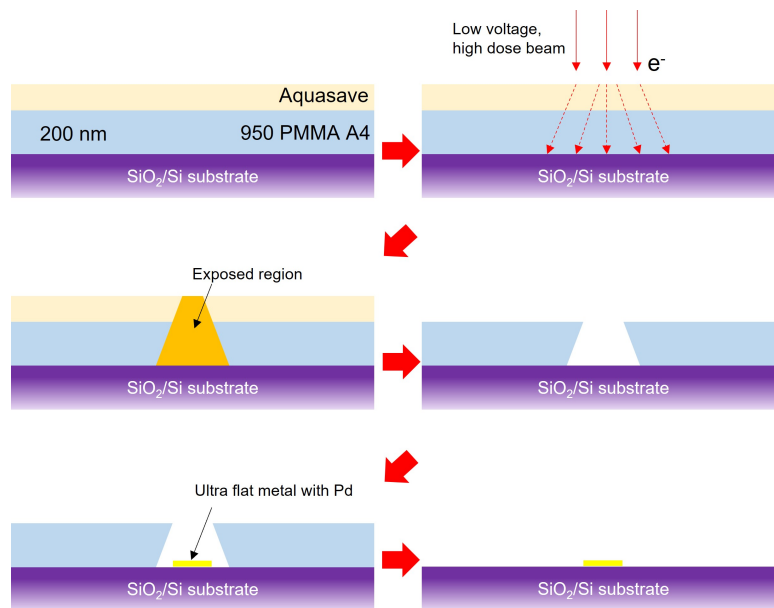


Fig.2.18 薄い電子線レジストを用いたバリの少ないフラットボトム電極の形成方法の模式的なフロー図。薄い電子線レジストを用いることによって分解能を維持しながら、低加速電圧、高ドーズ量、および弱い現像液を用いることによって逆メサ型のプロファイルを形成する。

このように作製された微細ゲート構造が図 2.19 であった。図 2.19(a) の AFM 像のように全体的にバリの立っていない電極の作製ができており、また図 2.19(b,c) のように 100 nm 程度のギャップを持つスプリットゲート構造の作製に成功している。本方法を用いて作製できたフラットボトム電極はギャップ幅 40 nm 程度の電極まで再現性良く作製でき、量子ドット構造 (図 2.19(e-g)) なども形成可能である。

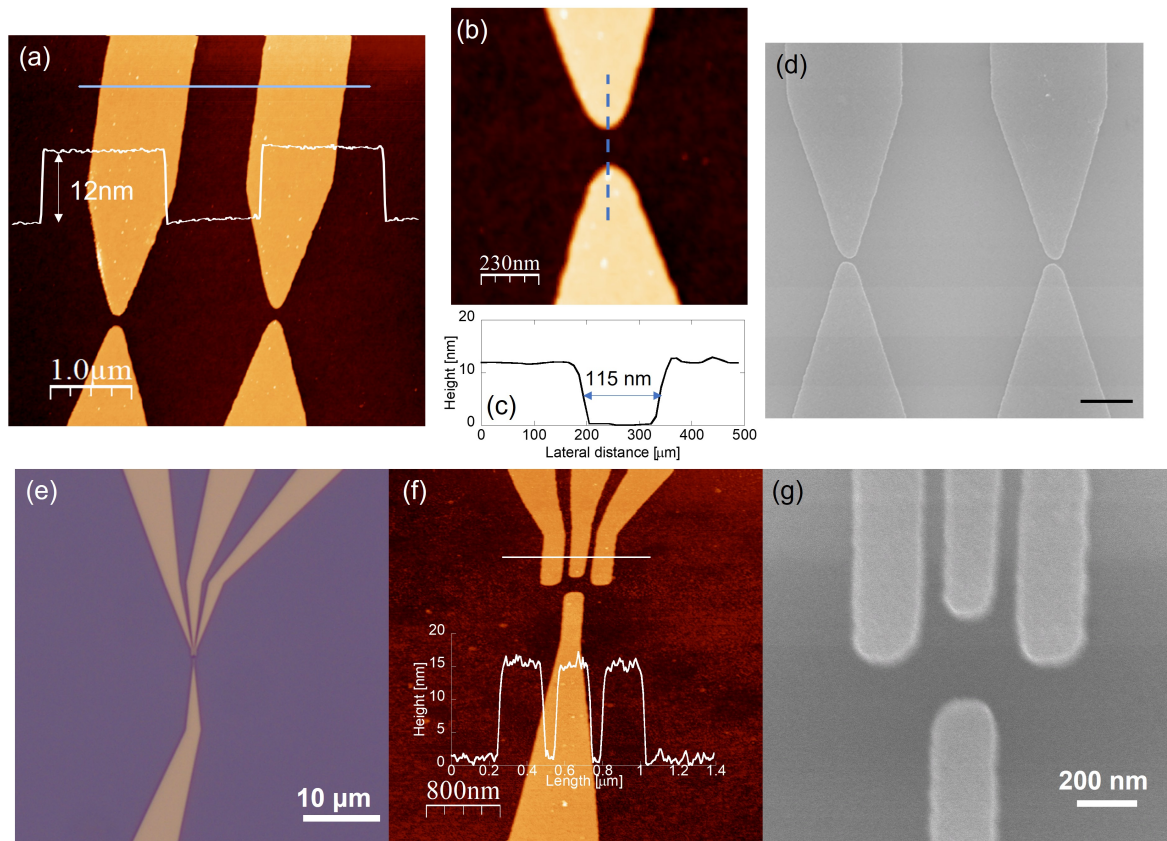


Fig.2.19 (a) 単層薄膜レジストを用いた量子ポイントコンタクトに向けたスプリットゲート電極のAFM像。(b) 図 2.19(a) のギャップ部の拡大図。(c)(b) 内の点線部のラインプロファイル図。(d)FESEM 像。(e-g) 量子ドット構造に向けたゲート電極。

2.5 極低温環境下における測定手法

一般に半導体における電子のフェルミ波長は数 nm から数十 nm 程度であり、電界によって形成される量子構造の大きさは電子波長と同じオーダーとなる。そのエネルギースケールは長さの逆数の二乗に反比例するため、一般的に数 μeV から数 meV 程度と室温における熱揺らぎ ($\sim 26 \text{ meV}$ 程度) に比べて非常に小さい。また、室温などの高温領域における電子はフォノン散乱による散乱が支配的となり、移動度が非常に低い為、その平均自由行程は格子定数の高々数倍程度であるため、量子構造内においてもバリスティック伝導ではなく散乱的な伝導様式となる。そこで、本研究では量子デバイス構造の測定はすべて一気圧における液体ヘリウム温度 (4.2 K 程度) 以下で行い、また場合によっては図 2.20 のような ^3He インサートを用いて 300 mK 程度の極低温で行っている。

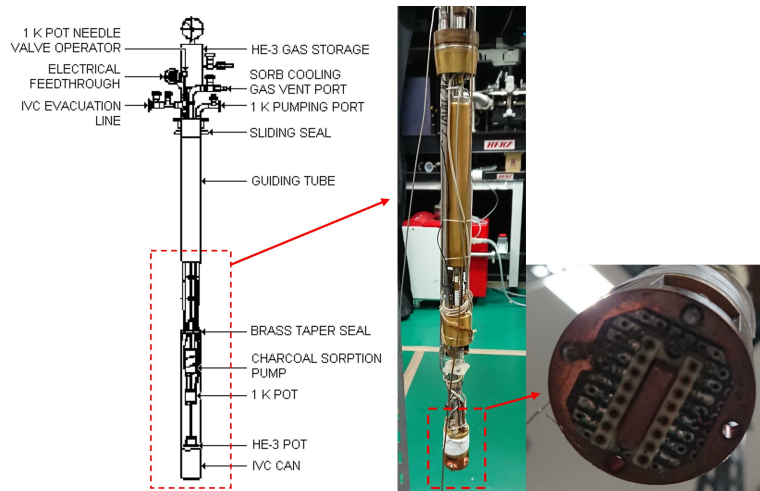


Fig.2.20 ^3He インサートの概略図および、試料マウント部の拡大写真。概略図は JANIS ULT 社のホームページ (https://www.janult.com/home/products/he-3-svsvd_helium-3_cryostat/) より引用。

2.5.1 極低温測定に向けた実装方法

極低温環境下において電気測定を行う際に、図 2.20 にあるようなインサート下部にある ^3He ポットに熱接触をとる為に、DIP パッケージのチップキャリアにデバイスを実装している。通常、チップキャリアに実装する際には超音波を用いたボールボンダーやウェッジボンダーを使用して DIP パッケージとデバイス上のボンディングパッドを金線もしくはアルミニウム線を用いてつなげるが、その際に超音波によってボンディングパッド直下の熱酸化膜が絶縁破壊をおこし、図 2.21 のようにリークを起こしたり、平行伝導を引き起こす可能性がある。

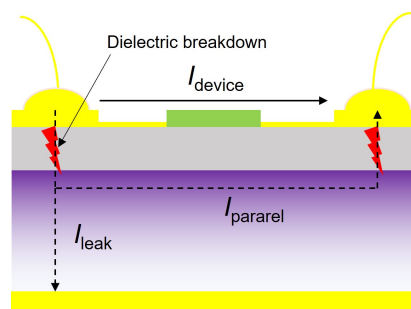


Fig.2.21 ワイヤーボンディングによってリークを起こした場合の電気伝導模型。

そのため本研究ではワイヤーボンディングを行う際に、DIP パッケージのみに超音波ボールボンダーによってボンディングを行い、チップ上のボンディングパッドに対しては金線を銀ペーストで固定する手法をとった。この手法によってワイヤーボンディングによる絶縁破壊の

可能性は非常に低くなる。また、グラファイトバックゲート構造や金属バック/トップゲート構造を採用することで、基板をゲート電極として使用する必要がなくなるため、場合によっては絶縁性のシリコン上に熱酸化膜が成長された絶縁性基板を用いている。

2.5.2 微小信号および低ノイズ測定

極低温で測定を行うためにはインサートの下部に試料を設置する必要があるため、通常の電気測定のようにテスターやプローブステーションのように直接試料に対して計測器を接続することはできない。また、インサート内の測定用導線は室温からの熱流入を抑制するために、熱伝導率がよい Cu 線ではなくマンガニン線を使用するため、有限の寄生抵抗および付随する寄生容量が無視できないレベルで存在する。量子デバイスのエネルギースケールは一般に数 μeV 程度から数 meV 程度であり、外部からの電磁ノイズや測定機器からのポンプアウトノイズなどによって容易に量子系は壊れてしまう。そのため微小信号を測定するには多くの注意が必要である。本研究で用いた測定系はシールドルーム内に設置しており、すべての測定装置はクリーニングラウンドによって接地されている。これによって外部からの電磁ノイズおよびグラウンドループによるノイズの回避が可能である。また、測定ケーブルはすべてツイストペア構造になっており、インサートと電磁遮蔽されたブレイクアウトボックスをつなぐフィッシャーケーブルはフェライトコアランプによって高周波ノイズのカットを試みている。また、ロックインアンプ (LI5640 を主に使用) の AC 電圧源などの低周波信号源や AC インプットなどにはすべて 400 Hz のカットオフ周波数をもつ Passive LC フィルタ、ゲート電圧を出力するための DC 電圧源 (Keithley 2400 SMU) に対してはカットオフ周波数 30 Hz の Passive RC フィルタを設置している。ゲート電圧ラインの RC フィルタには 100 $\text{k}\Omega$ のインライン抵抗が組み込まれており、ゲートリーク時や素早い電圧掃引時に発生する変位電流をカットオフする機能がある。ロックインアンプによる低周波測定時において、 μV オーダーの電圧、 pA オーダーの電流の測定が必要な場合にはそれぞれ電圧プリアンプ (NF LI-75A もしくは SRS SR560) および電流プリアンプ (DL Instruments 1211 もしくは SRS SR570) を使用することで低ノイズ測定を行えるようにしている。

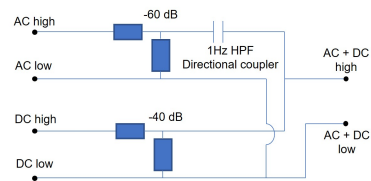


Fig.2.23 DC 電圧を AC 電圧に重畳するためのパッシブ回路。

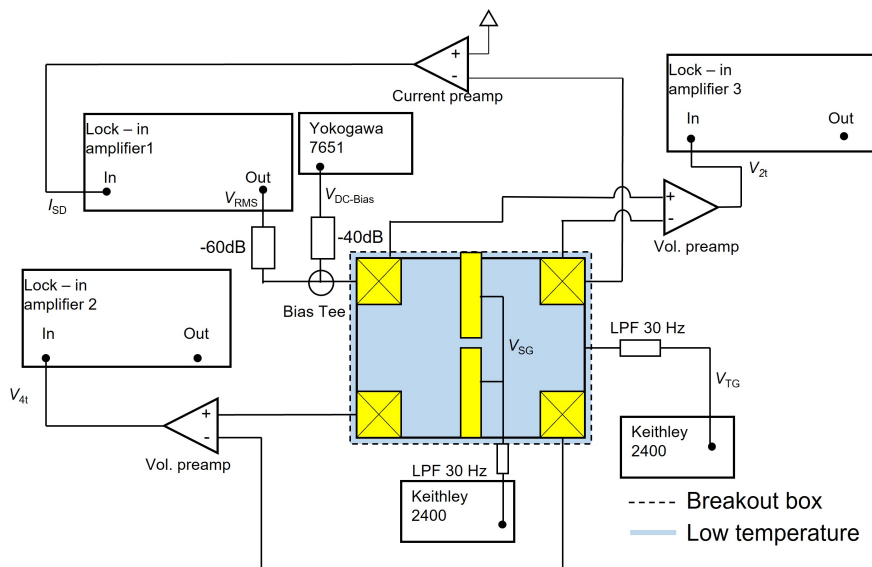


Fig.2.22 典型的な測定回路

またロックイン測定において DC 電圧を重畳する場合には高性能 DC 電圧源を Passive 素子のみで組み上げた Voltage adder を介して AC+DC 電圧を印加する (図 2.23)。この回路においては DC 電圧源および AC 電圧源の電圧をそれぞれ 40 dB と 60 dB で減衰する Voltage divider 回路および AC 電圧が DC 電圧源に向かうのを防ぐカットオフ周波数が 1 Hz 程度のハイパスフィルターが設けられている。

第3章

二層グラフェンにおける量子ポイントコンタクト

本章ではデュアルゲート構造によって垂直電場を印加することで、二層グラフェン (BLG) 中にバンドギャップを導入することによって電界閉じ込め構造の一つである量子ポイントコンタクトを実現した研究に関して議論する。

3.1 二層グラフェンにおける量子デバイス

二層グラフェンは、単層グラフェンと異なり、線形分散ではないバンド構造を有しているが、グラフェンと同様にバレー自由度を有し、層間反強磁性や電界による制御可能なバンドギャップおよびバンド分散関係、非自明なベリー位相によるバレーホール効果など豊かな物性を示す [81, 82]。特にこれまでグラフェンにおいてはバレートロンクス素子を実現するために必須なバレーバルブやバレーフィルターといったスピントロニクス素子におけるスピバルブやスピフィルターのアナロジーの実現が期待されており、その実現可能なデバイス構造として量子ポイントコンタクトが提案されてきた [60, 61]。しかし、実験的に単層グラフェンにおいてバンドギャップを誘起し、量子ポイントコンタクトを実現することが難しく [83]、ナノリボン構造など散乱が大きな試料における実験のみが行われてきた [84–86]。二層グラフェンは電界によって制御可能なバンドギャップを有することから電界閉じ込め構造による量子デバイス化が期待されてきていたが、単層グラフェンに対して相対的に移動度が低く、また理論予測されたバンドギャップの大きさに比べ実験的に実現されるバンドギャップが小さいといった問題があった^{*1}。近年発達したファンデルワールスヘテロ構造によって hBN を用いた二層グラフェン (BLG: bilayer graphene) の移動度は劇的に向上し、低温において平均自由行程は 100

^{*1} 基板表面の乱雑さや電荷不純物、印加電界の不均一性などによって絶縁状態があまりとれない。

nm を超えており、また電荷不純物やトラップ準位、ポテンシャル揺らぎの低減によって電界誘起のバンドギャップの大きさは向上した [87,88]。

これまでに QPC や量子ドット構造の実現が BLG ファンデルワールスヘテロ構造において電界閉じ込めによって試みられてきているが [89–96]、50 nm 程度の極小幅のスプリットゲートを用いても GaAs-HEMT 等に比べて極端に短いグラフェンのフェルミ波長の影響により、十分にピンチオフをとることができないといった問題があった。これは BLG に十分なバンドギャップを誘起するためには最低でも 0.5 V/nm 程度の電界強度が必要であり、このような大きな電界強度を得るために非常に大きなゲート電圧を印加することでキャリア密度が大きくなってしまふといった問題に起因する。ETH Zurich および Aachen 工科大のグループでは、150 - 200 nm 程度の幅を持つスプリットゲート上に ALD による絶縁膜を形成し、その直上に量子細線内のキャリア密度を独立に制御するチャンネルゲートを形成することで、QPC 内のキャリア密度を低減させ、サイズ量子化の効果を使用してピンチオフおよび伝導度の $4e^2/h$ 単位での明瞭な量子化の観測に成功している [89–91,93,94]。しかしデバイス構造やデバイス性能に依存して $2e^2/h$ や $8e^2/h$ のステップにおいて量子化が観測されるなどデバイス特性は一貫性はない。これらは垂直電場印加時に BLG のバンド構造が”メキシカンハット”型に変化することによるミニバレーの効果による新たな量子自由度の可能性やバレー間散乱によるバレー自由度の分裂、チャンネル内の垂直電場による非自明なベリー位相によるバレー縮退の分裂など様々な可能性が考えられる [89,97]。

本研究ではトップおよびボトムスプリットゲートの間隔を 100 nm 以下に設定し、強電場を印加することでチャンネルゲートを用いた際に比べて細い狭窄構造を作った場合の伝導度の量子化現象について議論する。

3.2 高品質二層グラフェンデバイス

量子デバイス、特に QPC のようなバリスティック伝導現象の実現には十分長い平均自由行程、つまり高移動度が必要である。本研究で用いたグラフェンはすべて機械剥離法によって製膜された BLG を hBN によって挟み込み、エッジコンタクト法 [26] によって電極を形成することで作製されている。これらの試料は SiO_2/Si バックゲート構造を用いた試料において移動度は極低温において平均 $50,000 \text{ cm}^2/\text{Vs}$ 程度を示しており、グラファイトや金属を電極とし、hBN を絶縁膜として使用したデバイスにおいては移動度は $70,000 \text{ cm}^2/\text{Vs}$ 以上、最高で $90,000 \text{ cm}^2/\text{Vs}$ 程度の高移動度を示している。このような試料の平均自由行程は 100 nm を超えており、100 nm 以下の微細構造である量子ポイントコンタクト内においてはバリスティック伝導が十分発現することが予測される [9]。

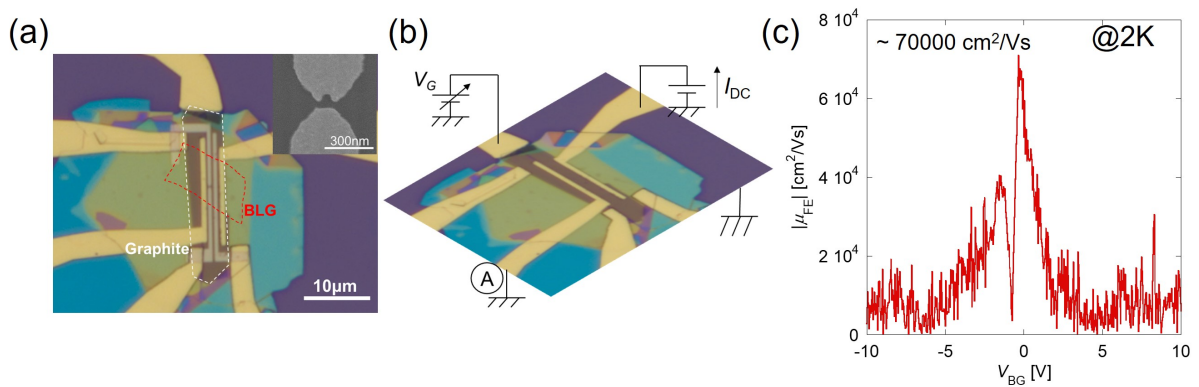


Fig.3.1 (a) hBN にカプセル化された二層グラフェン FET デバイス。(b) DC 測定の測定模式図。hBN 下部のグラファイトをバックゲート電極として使用している。(c) 2 K における移動度のキャリア密度依存特性。

このように高移動度試料の作製手法が確立された上で、作製された QPC デバイスが図 3.2 のような試料であった。図 3.2(a, b) はバックゲートやトップゲート電圧を用いて試料全体のキャリア密度の操作に加えて、垂直電場の印加によって電界閉じ込め構造を決定するスプリットゲート構造になっているゲート構造を hBN のトップにある構造 (Device A)、および図 3.2(c, d) は SiO_2/Si バックゲート構造上に金属スプリットゲートゲートを作製し、その直上に hBN/BLG/hBN 構造および金属トップゲートがある構造である (Device B)。

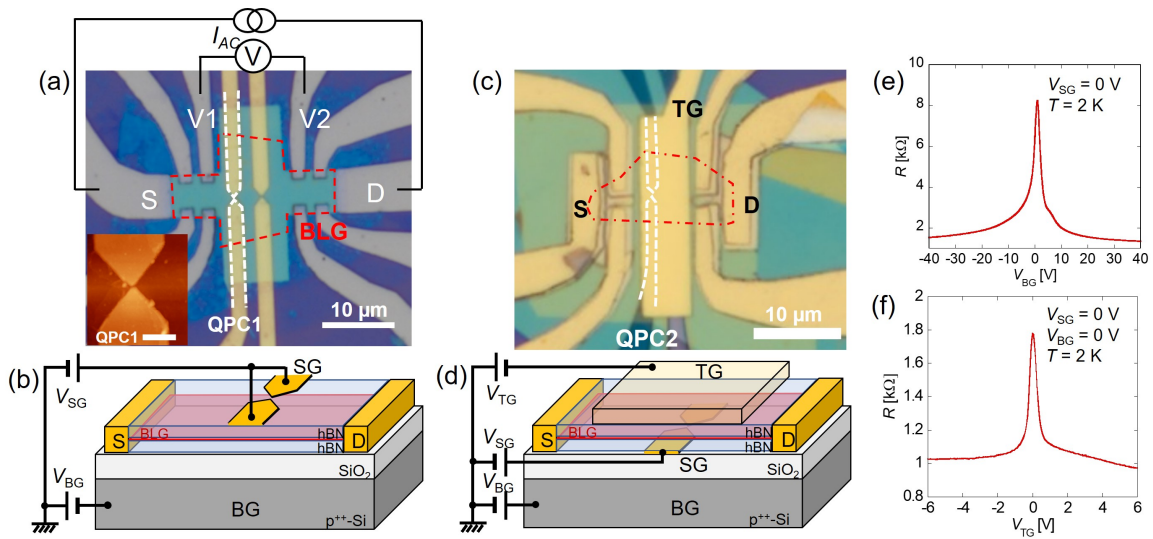


Fig.3.2 (a) SiO_2/Si バックゲート (V_{BG}) 基板上的 $\text{hBN}/\text{BLG}/\text{hBN}$ ヘテロ構造に対し、エッジコンタクトによって SD 電極が形成され、QPC を実現するためのスプリットゲート (V_{SG}) がトップに配置されている。(b) 図 (a) 試料の模式図。(d) SiO_2/Si バックゲート (V_{BG}) 基板の上に金属スプリットゲート (V_{SG}) が配置されており、その上にヘテロ構造及び SD 電極が形成されている。更に全体のキャリア密度を操作するためのトップゲート (V_{TG}) が配置してある。(d) 図 (c) デバイスの模式図。(e) 図 (a) デバイスの V_{BG} 依存特性。(f) 図 (c) デバイスの V_{TG} 依存特性。Picture reprinted from published work [98] with the permission of AIP Publishing.

デバイスに使用した BLG および hBN フレークはアセトン、IPA および O_2 プラズマ洗浄された SiO_2/Si 基板の上に機械剥離法によって製膜しており、光学顕微鏡、顕微ラマン分光、AFM を複合して層数、膜質などを観察している。ファンデルワールスヘテロ構造は PC/PDMS ポリマースタンプを用いたドライトランスファー法によって作製 [26] しており、Device A においては SiO_2/Si 基板の上に直接転写、Device B においては SiO_2/Si 基板の上に形成した金属ボトムスプリットゲート上にファンデルワールスヘテロ構造を形成している。ソース-ドレイン (SD) 電極は CHF_3/O_2 プラズマエッチングを用いた Type 2 の準一次元エッジコンタクト法によって Cr/Pd/Au (3 nm/15 nm/80 nm) 電極を形成している [26, 79]。Device A では SD 電極形成後にスプリットゲート (SG) を EBL によって形成している。また Device B においてはトップゲート (TG) 電極を SD 電極形成後に作製している。Device A では SiO_2/Si 基板をバックゲート (BG) 電極として使用しており、Device B においては SiO_2/Si は SG および TG によって形成された細線のキャリア密度を調整するためのゲートとして使用している。すべての三角形型スプリットゲート電極の先端は長さ及び幅ともに 100 nm 程度であり、電極の幅はバブルによって電極直下のリークを起こさないために 1 μm の幅を持つ。

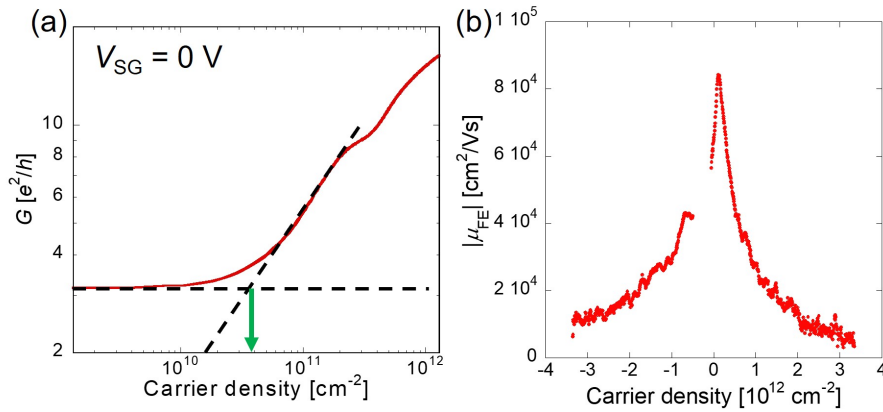


Fig.3.3 (a) Device A の 2 K における対数スケールコンダクタンスのキャリア密度依存特性。キャリア密度低下にともなってコンダクタンスが変化しなくなる点を残留電荷不純物密度としている。(b) Device A の電界効果移動度の 2 K におけるキャリア密度依存特性。Picture reprinted from published work [98] with the permission of AIP Publishing.

本研究で用いた二つの QPC デバイスは図 3.3 で示す様に、それぞれ低温で移動度が 80,000 cm^2/Vs 以上を記録し、また残留電荷密度に関しても $n^* \sim 10^{10} \text{cm}^{-2}$ 程度となっている。

3.3 量子ポイントコンタクト素子の動作

極低温環境下において高 V_{BG} を印加時の Device A における抵抗値のカラーマップが図 3.4(a) のようであった。SG 直下に印加される垂直電場 D および誘起されるキャリア密度 n はそれぞれ

$$D = (\epsilon_{\text{top}}(V_{\text{SG}} - V_{\text{CNP}})/d_{\text{top}} + \epsilon_{\text{bottom}}(V_{\text{BG}} - V_{\text{CNP}})/d_{\text{bottom}})/2 \quad (3.1)$$

$$n = C_{\text{top}}(V_{\text{SG}} - V_{\text{CNP}})/e + C_{\text{bottom}}(V_{\text{BG}} - V_{\text{CNP}})/e \quad (3.2)$$

である。ここで $\epsilon_{\text{top(bottom)}}$ はトップ (ボトム) の絶縁膜の誘電率、 V_{CNP} は試料の電荷中性点^{*2}、 $d_{\text{top(bottom)}}$ はトップ (ボトム) の絶縁膜の厚さである [87,88]。垂直電場の増加とともに図 3.4(a, b) のように、スプリットゲート構造の為、完全な絶縁化を得ることはできていないが、抵抗の増大 (コンダクタンスの低下) を観測しており、図 3.4(b) のように、垂直電場が大きい場合には階段状のステップが電荷中性点付近における高抵抗領域において観測されている。これはスプリットゲート直下が完全に絶縁化し、QPC チャネルのみで電気伝導が起こっていることを意味している。

*2 ディラック点

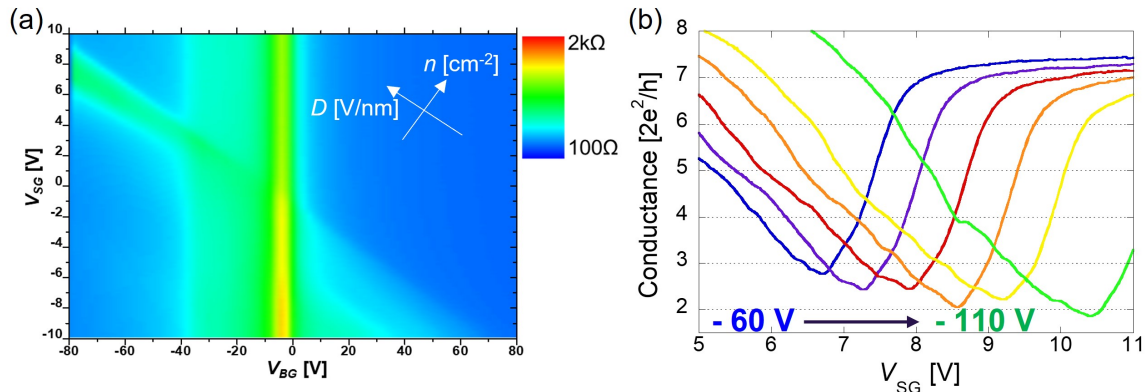


Fig.3.4 (a) V_{BG} および V_{SG} スweepにおける抵抗値のカラーマップ。(b) V_{BG} を-60 V から-110 V に固定した場合におけるコンダクタンスの V_{SG} 依存性。階段状のステップが観測される。Picture reprinted from published work [98] with the permission of AIP Publishing.

図 3.5 は $V_{BG} = -80$ V における V_{SG} 掃引時のコンダクタンスおよび微分コンダクタンスである。まず最初に SG 電圧が $0 \text{ V} < V_{SG} < 4 \text{ V}$ においてコンダクタンスは緩やかに落ちていくことがわかる。これは SG に BG と逆極性の電圧を印加することで SG 直下のホール密度が緩やかに小さくなり、 p^+pp^+ 接合が形成されることによる (領域 I)。次に SG 電圧の増加に伴い、SG 直下の 2DHG から電荷の排斥およびバンドギャップの誘起による空乏化がはじまり抵抗が大きく低下を始める (領域 II)。垂直電場 $|D| > 1 \text{ V/nm}$ によって電界閉じ込めに十分なバンドギャップが誘起され、電荷中性点付近に QPC チャンネル内のフェルミレベルが近づくことによりコンダクタンスの低下および伝導度の量子化が起こり、抵抗値の極大を迎える (領域 III)。領域 III におけるコンダクタンスおよび微分コンダクタンスを拡大したものが図 3.5(b) であり、コンダクタンスが完全に階段状になってはいないが階段状に量子化されている様子および微分コンダクタンスの振動が観測される。このコンダクタンスは 2DHG の直列抵抗 ($\sim 1000 \Omega$) を補正したものであり、その量子化コンダクタンスのステップは $2e^2/h$ の間隔で表れていることがわかる。抵抗値の極大のち $V_{SG} = 9.3 \text{ V}$ 付近にて再びコンダクタンスが増大する (領域 IV)。これは QPC チャンネルを形成している SG 直下のフェルミレベルが伝導帯の下部に到達してしまい、 p^+np^+ 接合を形成し Klein トンネリング現象が起こるためである [89]。Device A においてはキャリア密度および垂直電場両方がスプリットゲート電圧掃引によって変化しており、QPC チャンネル内のキャリア密度はスプリットゲート電圧からの漏れ電場によってのみ変調されているため、非常に電荷密度が高い状態となっており、また SG の構造および非常に小さなバンドギャップ ($\sim 100 \text{ meV}$) のため、量子化コンダクタンスは先行研究に比べて非常に不明瞭となっている。

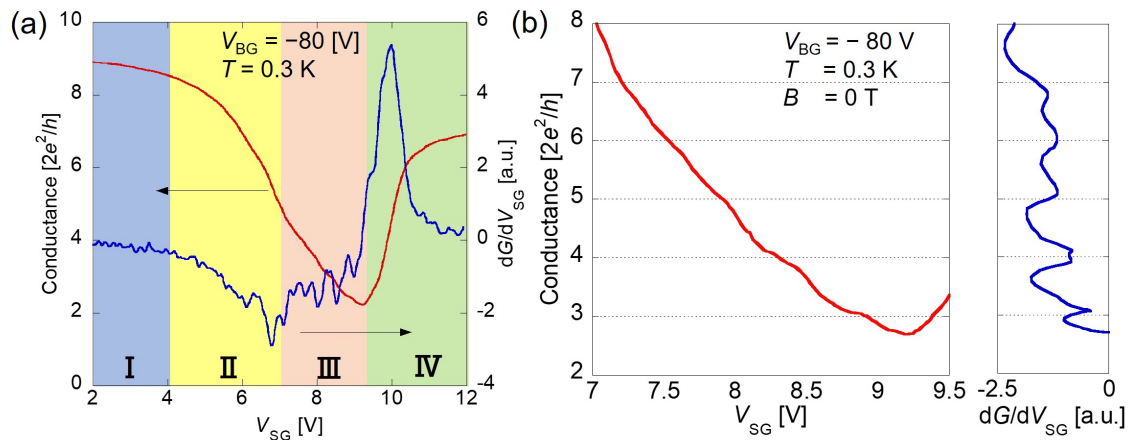


Fig.3.5 (a) $V_{BG} = -80$ Vにおけるコンダクタンス及び微分コンダクタンスの V_{SG} 依存特性。(b) 領域 III 部分のコンダクタンス及び微分コンダクタンスの拡大図。Picture reprinted from published work [98] with the permission of AIP Publishing.

本 QPC がピンチオフに至らなかった理由として、QPC を定義できるのは SG のフェルミ準位がバンドギャップ内にある V_{SG} 領域のみであり (図 3.6)、エネルギー (ゲート電圧) 窓内では有限のコンダクタンスステップ数 (図 3.4 の場合は 5 ステップ) しか観測できない。また 2DHG のキャリア密度は $5 \times 10^{10} \text{ cm}^{-2}$ と非常に高く、SG 先端から QPC チャネルへの漏れ電場はチャネル内のキャリア密度を下げ、完全に空乏化することはできない。そのため、ピンチオフ可能な QPC を実現するためには SG の間隔を非常に狭めるか、チャネルゲートを用いてチャネル内のキャリア密度を十分に下げる必要がある [89–91, 93, 94]。

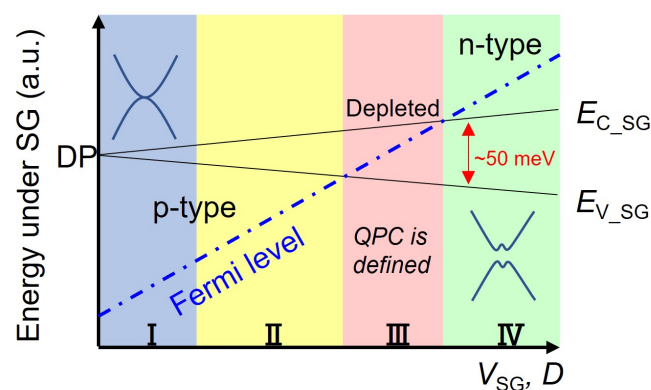


Fig.3.6 デバイス動作の模式図。Picture reprinted from published work [98] with the permission of AIP Publishing.

本デバイスでは上記の理由によってピンチオフに至ることはできなかったが、量子化現象は図 3.5 の様に観測されており、直列抵抗を $G_{QPC} = 1/(R_{4t} - R_{series})$ のように補正することで、 $2e^2/h$ の縮退度で観測されている。通常二層グラフェンの量子自由度はスピン縮退の 2 および

バレー自由度の2によって $g_{\text{BLG}} = g_v g_s = 4$ であるが、本デバイスでは $g = 2$ で観測されている。これはスピンもしくはバレー自由度のどちらかの縮退が分裂していることを示唆している。量子化コンダクタンスは

$$G_{\text{QPC}} = g_{\text{BLG}} \frac{e^2}{h} NT \quad (3.3)$$

とあらわされ、透過確率 T に対しても依存するが、本研究で用いた QPC の長さは非常に短く、グラフェンの平均自由行程に比べ十分に短いことが予測され、QPC チャンネル内における弾性および非弾性散乱は非常に少ないと考えることができる為、 $T \sim 1$ であると考えられる [84]。また、原子欠陥やエッジラフネス、ポテンシャル揺らぎなどによるバレー間散乱によって、バレー自由度の分裂が分裂することも考えられるが、本研究で実現している QPC は電界閉じ込みによるソフトウォールポテンシャルであり、これまでにバレー間散乱が報告されているエッチングによって形成された細線領域とは異なりスムーズなエッジおよびポテンシャルを有している。そのため、バレー間散乱の影響は受けにくいと考えられる。ピンチオフを得るためにチャンネルゲートを有した縮退度4で観測されている先行研究の QPC 試料では、量子細線を形成する SG の幅は 150 nm から 200 nm 程度であり本試料に比べて大きく、本研究のデバイスと同様の形状を持つチャンネル幅が小さな試料においては、本研究と同様に縮退度2のステップが観測されている [89,95,96]。垂直電場の印加によってバンドギャップが形成され、フェルミレベルがバンドギャップ内に位置する場合、スプリットゲート直下のポテンシャルは先行研究におけるシミュレーション (図 3.7) の様に十分なバリアを有しており、QPC 内におけるポテンシャルは図 3.8(a) におけるチャンネルゲート電圧 (V_{CH}) が印加されていない場合、つまり $V_{\text{CH}} = 0 \text{ V}$ の条件において調和振動子型のポテンシャル構造になっていることがわかる。

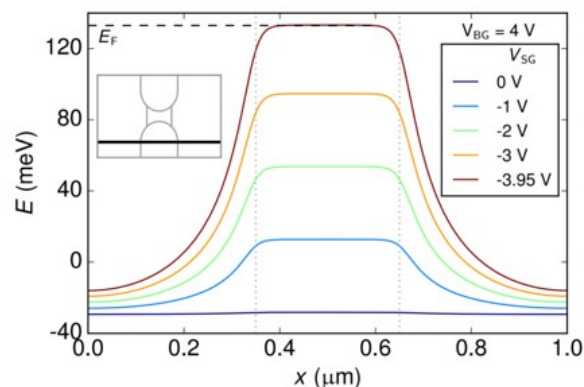


Fig.3.7 先行研究 [90] におけるスプリットゲート直下におけるポテンシャル形状。
Reprinted with permission from [90]. Copyright 2017 American Chemical Society.

また電子波進行方向に対しては、 $V_{\text{CH}} = 0 \text{ V}$ において調和振動子型のバリアになっていることがわかり、これは理想的な断熱近似的な QPC のサドルポイントポテンシャルを形成していることがわかる (図 3.8(a,b))。こちらに対して V_{CH} を V_{SG} と同じ極性に印加していった場

合、チャンネル内のキャリア密度が減少していき、また垂直電場が印加されることによって図 3.8(a) において見られるように、QPC チャンネル間のポテンシャルプロファイルが徐々に緩やかになっており、図 3.8(b) において電子波進行方向に対しても調和振動子型ポテンシャルからロングバリアへと変化していく様子が観測される。このような閉じ込めポテンシャルが緩やかに形成され、ロングバリアが形成されている場合には、 $4e^2/h$ や $8e^2/h$ の段数における量子化コンダクタンスが先行研究において観測されている (図 3.8(c))。逆に V_{CH} が 0 V、もしくは V_{SG} と逆極性に印加される場合、閉じ込めポテンシャルはさらに急峻な構造へと変化し、また電子波の進行方向へのバリアは低下していく。この場合、伝導度の量子化は先ほどまでのケースと異なり、プラトー間隔が広くなるのに加えて $4e^2/h$ にならず $2e^2/h$ やさらに複雑なパターンになっていることがわかる。本研究では SG のみを用いて閉じ込めを形成した研究であり、図 3.8(a,b) における $V_{CH} = 0$ V のような理想的なサドルポテンシャルを形成していることから、伝導様式が大きく異なりバレー偏極が生じている可能性が存在する。また本研究で用いた試料では QPC 幅はおよそ 90 nm 以下となっており、同様に 100 nm 以下の QPC 幅を持つ SG のみを有する試料では同様のバレー偏極とみられる伝導が観測されており、走査ゲート顕微鏡を用いた観測によって原子レベルでの欠陥や不純物の存在によって引き起こされる弾性散乱に起因したバレー間散乱の結果としてバレー偏極状態が観測されることが示唆されている [99]。ただしこれらの不純物による弾性散乱の問題を調べるには更なる高移動度試料が必要であると考えられる。

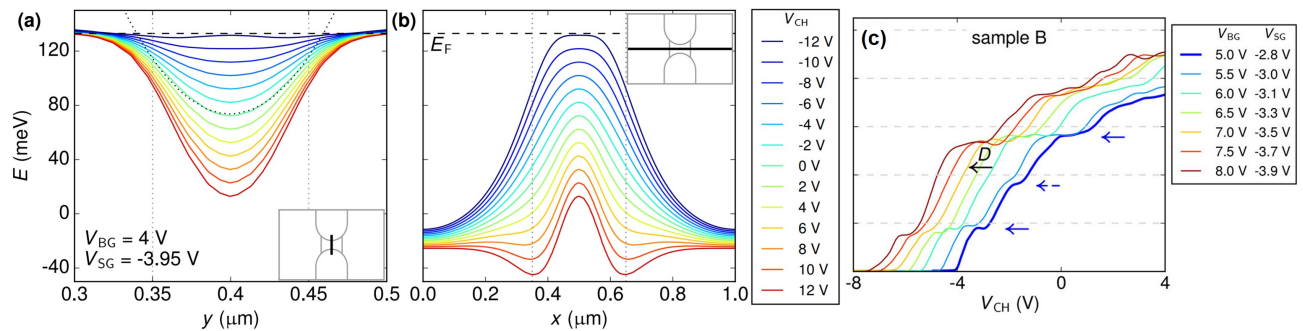


Fig.3.8 先行研究 [90] における (a) スプリットゲート電極間の y 軸方向における閉じ込めポテンシャルと (b) x 軸方向におけるポテンシャルバリアのチャンネルゲート電圧依存特性のシミュレーション結果。 $V_{CH} = 0$ V において本研究におけるポテンシャル形状と同等だと考えられる。 Reprinted with permission from [90]. Copyright 2017 American Chemical Society.

面外磁場を印加すると、低磁場ではランダウ準位の形成により、1次元の離散的なエネルギー準位が分裂したり交差したりするため、面内磁場を印加した場合に比べてコンダクタンスの段差が規則的に現れない [89–94]。しかし、 $B = 9$ T の高磁場においては、図 3.9(a) に示すように、領域 III の全ゲート電圧範囲でゼーマン分割が起こるため、コンダクタンスの量子化

単位が e^2/h となる。図 3.9(b) にあるように高磁場までの微分コンダクタンスにおいて、プラトー間の交差やランダウ量子化の影響を受けた軌道量子化の影響は本 QPC では見られなかった。これはチャンネルゲート構造を用いた従来の BLG-QPC 研究とは異なり、今回の QPC デバイスでは QPC チャンネル幅 (90 nm 未満) がサイクロトロン直径よりも狭いためであり、9 T でもランダウ量子化の影響を受けたコンダクタンスプラトーの幅の大幅な拡大は見られなかった [95, 96]。このように高磁場においてスピンおよびバレー縮退がすべて分裂した状態である e^2/h 状態からゼロ磁場における $g = 2$ の状態は量子細線形成により、バレー縮退が自発的に分裂した状態だと考えられる。

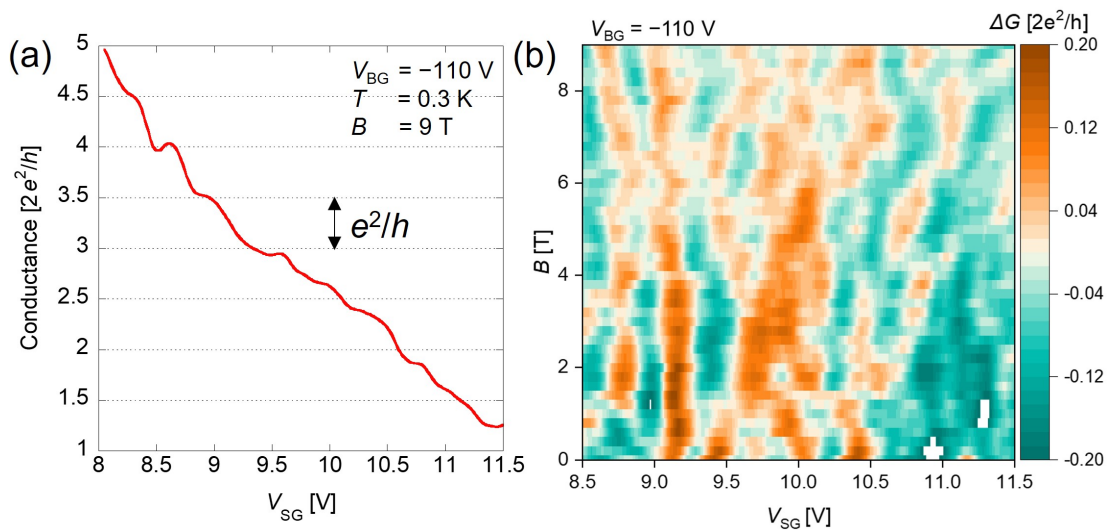


Fig.3.9 (a) $B = 9$ T における SG 電圧依存コンダクタンス。(b) 微分コンダクタンスの SG 電圧、磁場依存カラーマップ。Picture reprinted from published work [98] with the permission of AIP Publishing.

3.4 トリプルゲート構造における量子ポイントコンタクト動作

上記のような $g = 2$ によるゼロ磁場での量子化現象は、他のグループの QPC デバイスでも観測されており [95, 96]、また同様の QPC 形状で異なるデバイス構造の Device B (図 3.1(c,d)) においても観測されている。Device B は Device A と同様に幅の狭い SG が BG ゲートスタックである SiO_2/Si 基板上に形成されており、その直上にヘテロ構造を形成し、最後に TG を形成したトリプルゲート試料においても観測されている。本試料では TG と SG によって QPC を形成しながら、QPC チャンネル内における高キャリア密度状態を SiO_2/Si による BG 構造を用いてキャリア密度を低下させることが可能な試料構造となっている。

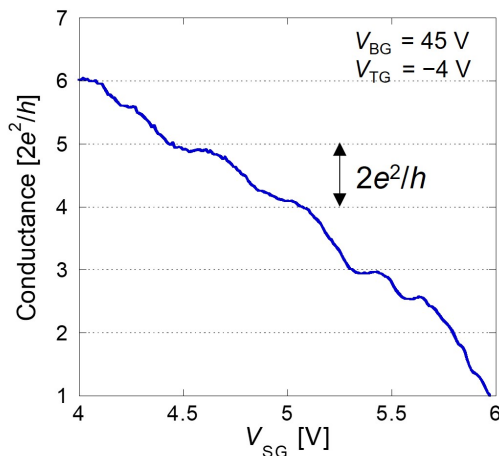


Fig.3.10 V_{BG} 印加時の SG 依存コンダクタンス。Picture reprinted from published work [98] with the permission of AIP Publishing.

図 3.10 に示すように、直列抵抗を差し引くと、 $3-6 \times 2e^2/h$ の間において $2e^2/h$ 単位の明確なコンダクタンスの量子化現象が観測されている。この実験では、チャンネルを含む 2DHG 領域に垂直電界を補助するために、TG と BG 間の垂直電場強度 $|D| = 0.7 \text{ V/nm}$ に加えて、TG と SG 間の垂直電場強度 $|D|$ も 0.7 V/nm とした。

図 3.10 に示すように、Device B の QPC において最小コンダクタンスは Device A の半部以下である $2e^2/h$ までコンダクタンスが低下したが、SG 領域における空乏層のエネルギー窓が小さいことに加え、ボトム SG 電極作製時にできた微小な電極上のバリによる不均一な空乏化によって、完全なピンチオフを達成することはできなかったものの、コンダクタンスの最小値は Device A に比べて小さな $2e^2/h$ 程度まで下げることに成功した。図 3.10 では、通常コンダクタンス量子化に加えて、いくつかの小さなコンダクタンスステップが観察されており、これらの特徴は、QPC 領域の乱れに起因する量子干渉や、不十分なゲート電圧の存在により並行伝導が生じたスプリットゲート領域の Fabry-Perot の干渉に起因するものと考えられる [100–104]。これらのコンダクタンスステップは、通常、電子間もしくはホール間の相互作用による多体効果によっても観察されるが、本デバイスの移動度及びピンチオフ特性が不十分な点などから、このような多体効果に起因する現象を議論することは難しいと考えられる [105–107]。

3.5 結論

本研究によって、静電ポテンシャルによって 100 nm 以下の微細構造に閉じ込められた二層グラフェン量子ポイントコンタクトにおいてはスピンおよびバレー自由度が縮退した $4e^2/h$ における量子化コンダクタンスではなく、少なくとも一つの自由度 (高磁場化の実験よりおそら

くバレー自由度)の縮退が解けた $2e^2/h$ 単位における量子化コンダクタンスが観測された。このようなバレー偏極状態はチャンネル内における強い垂直電場と急峻な調和振動子型のポテンシャルによってリフトされたバレー自由度によるものだと考えられ、バレーフィルターデバイスなどへの応用が期待される。しかし、本研究で用いたデバイスはすべてピンチオフを得ることはできておらず、また各サブバンド間のエネルギーの解像度が非常に低く、SD バイアス特性などを取得することはできていない。そのため、バレー自由度のゼロ磁場における分裂現象をさらに詳細に調べるには、チャンネルゲートを有した 50 nm 以下のチャンネル幅を持つ BLG 試料の作製とその詳細な測定が必要であると考えられる。

第 4 章

WSe₂ ヘテロ構造における量子ポイントコンタクトの実現

本章では半導体的な特性を示す遷移金属ダイカルコゲナイド (TMDCs) の中でも、欠陥準位の影響により主に p 型特性を示すことにより、スピン軌道相互作用 (SOC) の影響が顕著に観察可能である価電子帯への電気的なアクセスが可能となる 2 セレン化タングステン (WSe₂) に対する極低温環境下でのオーミック接触の試みとその量子デバイス構造、特に量子ポイントコンタクトへの応用を議論する。

4.1 遷移金属ダイカルコゲナイドに対するオーミック接触の検討

本節では量子閉じ込め構造に向けた TMDC 物質に対する金属-半導体接合の考察および極低温環境下における再現性のあるオーミック接触の実現に関する議論を行う^{*1}。

4.1.1 TMDC に対するオーミック接触の検討

金属-半導体の接合では、理想的な界面および界面でのボンディング、界面準位などを一切考慮しない場合、図 4.1 にあるように、金属の仕事関数および半導体の伝導帯の底、価電子帯の頂点、およびフェルミエネルギーといった単純なパラメーターのみによって決まり、接合後には金属および半導体のフェルミレベルを一致させるように半導体側のバンドが曲げられると考えられる。これは Schottky-Mott 則と呼ばれ、金属から電子もしくはホールを注入する際には Schottky バリアと呼ばれるエネルギー障壁が生まれることとなる。このエネルギー障壁は

^{*1} 長谷川英機, 「ナノエレクトロニクスにおける絶縁超薄膜技術」、第 1 編第 2 章「絶縁体超薄膜における量子界面物性の基礎的諸問題」, NTS 出版 (2012) を一部参考に執筆。

電子、ホールそれぞれに対し、

$$\begin{aligned}\phi_{bn} &= \phi_{WF} - \chi \\ \phi_{pn} &= E_{BG} - \phi_{WF} + \chi\end{aligned}\quad (4.1)$$

となる。ここで $\phi_{bn(pn)}$ 、 ϕ_{WF} 、 χ 、 E_{BG} はそれぞれ電子/ホールに対するショットキー障壁高さ、金属の仕事関数、半導体の電子親和力、半導体のバンドギャップである。Schottky-Mott による障壁の説明はバリアの存在を説明することは容易であったが、実際には金属の仕事関数を変化させてもほとんど障壁高さは変化しない。これは半導体のバンドギャップ内に欠陥準位が存在し、金属の仕事関数が金属側の電子が半導体にしみ出し欠陥準位と結合することによって金属の仕事関数が欠陥準位によってほとんど一意に決まってしまうフェルミレベルピニング (FLP) が起こるためである。FLP を初めて説明したのが Bardeen であり、Bardeen は Schottky 障壁の障壁高さと金属の仕事関数の関係を Slope parameter (S) を

$$S = \frac{d\phi_{bn(bp)}}{d\phi_{WF}}\quad (4.2)$$

と定義することによって、Schottky 障壁の高さは

$$\begin{aligned}\phi_{bn} &= (\phi_{CNL} - \chi) + S(\phi_{WF} - \phi_{CNL}) \\ \phi_{bp} &= (E_{BG} - \phi_{CNL} + \chi) + S(\phi_{WF} - \phi_{CNL})\end{aligned}\quad (4.3)$$

となることを示した [23, 108]。ここで $\phi_{CNL} = E_C - E_F + \chi$ は真空準位からの電荷中性点までのエネルギー差であり、ここで $S = 1$ (for n-type) もしくは $S = -1$ (for p-type) を仮定すると Schottky 極限と一致することがわかる。実際には S は界面のダングリングボンドや表面/界面準位、欠陥などの影響で 0 - 1 の間の値をとることが多く、これは表面準位によって界面ダイポールが形成される為であると説明される。しかし、Bardeen の説明では、界面ダイポールや FLP の発生機構に関しては明瞭の説明がなされていない [109]。

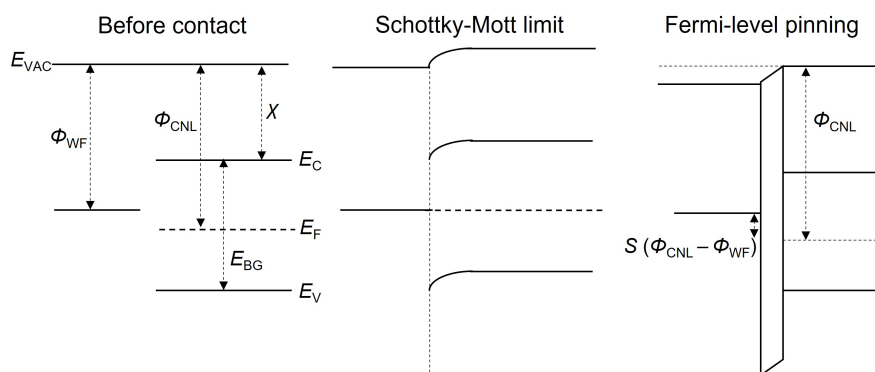


Fig.4.1 (左) 金属および半導体の接触前のバンドダイアグラム。(中)Schottky-Mott 極限におけるバンドアライメント。(右) 界面ダイポールが存在すると仮定した場合の Bardeen 極限。

Bardeen モデルでは表面準位の存在によって界面ダイポールが発生し FLP が発生するが、Bardeen による予測よりもより強力に FLP が起こることがあり、また実際には表面準位が存在しない半導体界面においても FLP は存在することがわかっている [109]。

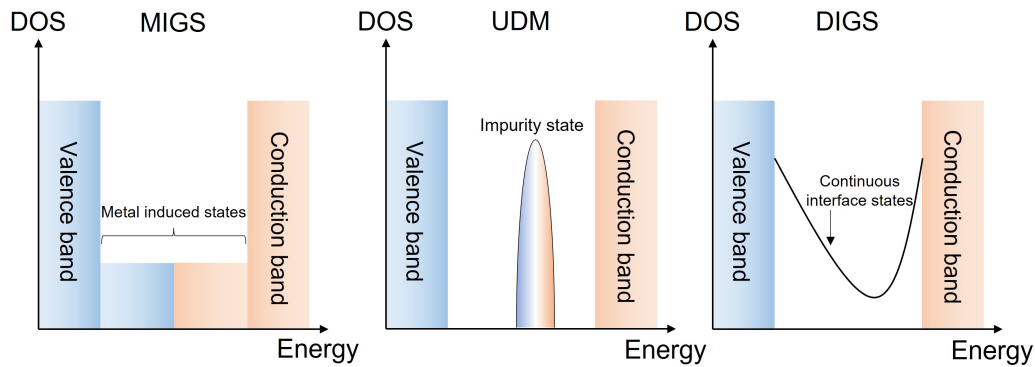


Fig.4.2 (左) 金属中の電子が半導体バンドギャップ内に侵入し、半導体内において共鳴状態を作ることによって生じる Metal Induced Gap State(MIGS) の概念図。MIGS には電荷中性準位が存在しており、伝導帯、価電子帯どちらに近いかによってドナー、アクセプタ的に振舞うか決まる。(中央) 金属の蒸着や歪みによって誘起される欠陥準位に対して金属の仕事関数がピンングされる統一欠陥モデル (UDM)。(右) 界面準位の乱れ、ボンドの揺らぎ、界面や表面への吸着などによってバンドギャップ内にて不純物準位が連続的に存在する状態を仮定したモデルである Disorder Induced Gap State(DIGS)。長谷川, ナノエレクトロニクスにおける絶縁超薄膜技術: 成膜技術と膜・界面の物性科学 第2章, NTS 出版, 2012. を参考に作成。

これは実際には表面準位のみではなく、金属の仕事関数付近の電子が一定数半導体のバンドギャップ内にしみ出し、その共鳴状態がギャップ内に誘起されることで新たな界面準位を作り出す、といった Metal Induced Gap State (MIGS) と呼ばれるモデルが考案された (図 4.2(左)) [23, 110]。しかし、実際には金属の仕事関数や種類によらず FLP は同様の位置において起こるため、MIGS のみでは FLP は完全に説明することはできない。金属-半導体接合では清浄化した半導体表面に対して金属を金属蒸着などによって堆積することによって接合を形成するが、この際に半導体側に欠陥や合金層、歪みなどが誘起されることによって強固な不純物準位が半導体バンド内に出現し、金属より漏れ出した電子の波動関数が欠陥準位に結合することによって FLP が起こるとする、Unified Defect Model (UDM) が考案されている (図 4.2(中央)) [111]。またより一般に、半導体界面には連続的な状態分布を持つ不純物準位が存在し、その準位の最小値を与えるエネルギーが電荷中性点であるとみなす、Disorder Induced Gap State (DIGS) モデルも提案されている [112]。しかし、TMDC は通常、界面準位を持たないためこれまでの議論をそのまま適応することは難しい。

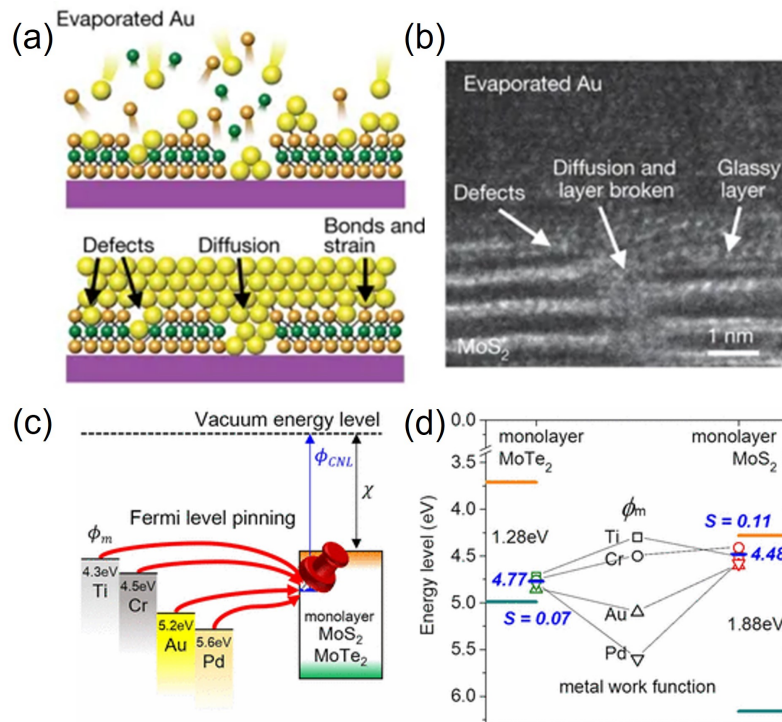


Fig.4.3 (a) 二次元半導体に対する金属蒸着の模式図。高エネルギー粒子によって結晶に欠陥、歪みが導入される。(b) 多層 TMDC に金属蒸着 (Au) を行った際の断面 TEM 像。金属が TMDC 内に拡散している部分が見受けられる。(c) フェルミレベルピンギングの模式図。異なる仕事関数の金属を接合させても、強い欠陥準位にトラップされ、オーミック接触が取れない。(d) 単層 MoS₂ および単層 MoTe₂ のピンギングサイト。Figure (a,b) were adapted under the permission from [113] Copyright 2018 Springer Nature, and figure (c,d) were adapted under the permission from [108]. Copyright 2017 American Chemical Society.

実際には二次元半導体物質は、ファンデルワールス力のみで層間が弱く結合した物質であり、面直方降にダングリングボンドを持たない為、界面準位は存在しないが、結晶成長時やへき開時に生じる不純物や欠陥による不純物準位を持ち、また金属蒸着などによる高エネルギー粒子の打ち込みによって容易に欠陥などが形成され FLP が起こる (図 4.3(a,b)) [108, 113]。そのため、通常のリソグラフィプロセスおよび金属蒸着プロセスによって形成した場合、金属の仕事関数は強く欠陥準位にピン止めされ ($S \sim 0.02$)、オーミック接触をとることは不可能となる (図 4.3(c, d)) [108]。このように二次元物質においてオーミック接触を取得することは非常に難しいが、以下のような手法を用いることによって打開することが可能である。

4.1.2 ボトムコンタクト

前節において議論した欠陥や歪み、合金化などによる界面準位の影響を排除するために開発された手法がボトムコンタクト法である。ボトムコンタクト法では二次元物質を製膜後に微細

加工プロセスを通して電極形成を行うのではなく、基板もしくは基板の代わりとなる絶縁性二次元物質 (hBN) 上に事前に金属コンタクトを形成し、その後ドライトランスファープロセスを通じて二次元物質を金属コンタクト上に配置することによって電子線リソグラフィや金属蒸着による格子欠陥の誘起や歪みの印加を防ぐ手法である [52, 53, 114–116]。理想的には二次元物質にはダングリングボンドが存在せず、ボトムコンタクトの金属を変更することによって広い範囲で仕事関数を変調可能であるが、実際には蒸着によって作製した金属電極表面は多結晶体であるため、原子レベルで平坦な表面を得ることはできず歪みが発生することや、表面への吸着物などによって仕事関数の低下の発生や TMDC への歪みの導入が避けられない。また、TMDC 物質自体の持つ格子欠陥および金属からの波動関数の染み出しによる MIGS の影響によって界面でのダイポール形成が起これ仕事関数の大幅な低下などが起こるため、良好なコンタクトが価電子帯において得られないことが多い。しかし、通常の EBL および金属蒸着に比べると金属蒸着によって誘起される欠陥準位が存在しない為、伝導帯の底の準位や欠陥準位が深い準位の試料の場合は価電子帯に対してオーミック接触を取得することができる。

二次元半導体においても良好な移動度および FET 特性を得るためには hBN によるカプセル化が必須である。その場合、先にボトムゲートとなるゲートスタックを作製後、ボトム hBN 膜を形成し、その上にボトムコンタクト構造を作製する必要がある。ボトムコンタクトを形成する場合に電子線レジストである PMMA を使用するが、PMMA はリフトオフ溶液である NMP やアセトンに長時間つけたとしても完全に除去することは難しい。また、二次元物質において一般的に使われる手法である Ar/H₂ フォーミングガスや高真空下での高温アニールは金属の表面再構成を促してしまうため、金属表面の凹凸が大きくなってしまう問題がある。そこで使用されるのがコンタクトモード AFM の探針を用いて物理的にレジスト残渣を除去する AFM クリーニング法である。AFM クリーニング法は図 4.4 の様に、コンタクトモード AFM の探針を試料に接触した状態で数回スキャンを行うことでスキャン領域より残渣を掻き出す手法であり、アニール処理などを行うことが難しい試料に使用することが可能である [52, 54, 114, 117, 118]。

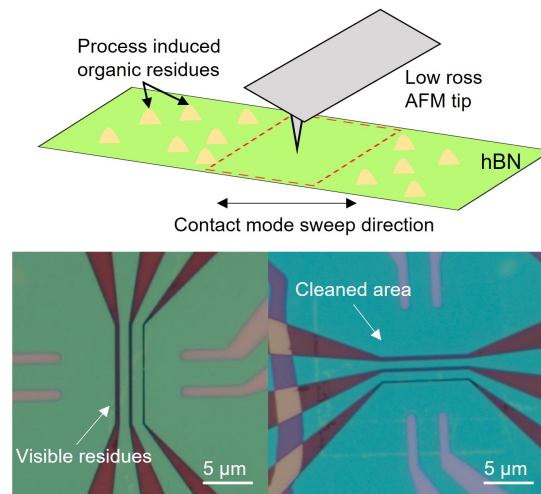


Fig.4.4 (上)AFM クリーニングの模式図。(下)AFM クリーニング前後の光学顕微鏡像。

図 4.4 および 4.5 はそれぞれ、AFM クリーニングを行う前後の光学顕微鏡像及び AFM 像である。AFM クリーニング後には光学顕微鏡像でも視認できるほどの残渣がスキャン領域の外側に掻き出されており、また AFM 像からも大量の有機残渣がほとんど見えなくなっている様子が確認される。

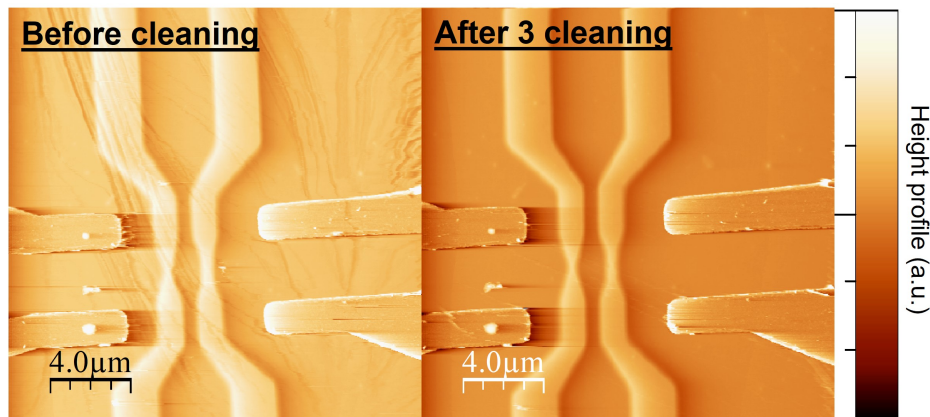


Fig.4.5 AFM クリーニング前後の AFM 像

AFM クリーニングを行った場所および行わなかった場所の AFM トポグラフィ像および位相変化像を取得したものが図 4.6 であり、位相変化像において顕著な粘弾性の違いがクリーニング前後で確認できる。また、AFM クリーニングを行った場所 (青枠) と行わなかった場所 (赤枠) における、高さのヒストグラムにおいても AFM クリーニングを行った場所は AFM クリーニングを行わなかった場所に比べて有意に高さおよびラフネスが小さいことがわかる。このように AFM クリーニングを行うことで、高温処理を行わないドライプロセスにもかかわらず、ボトム hBN の性能を最大限生かすことが可能である。

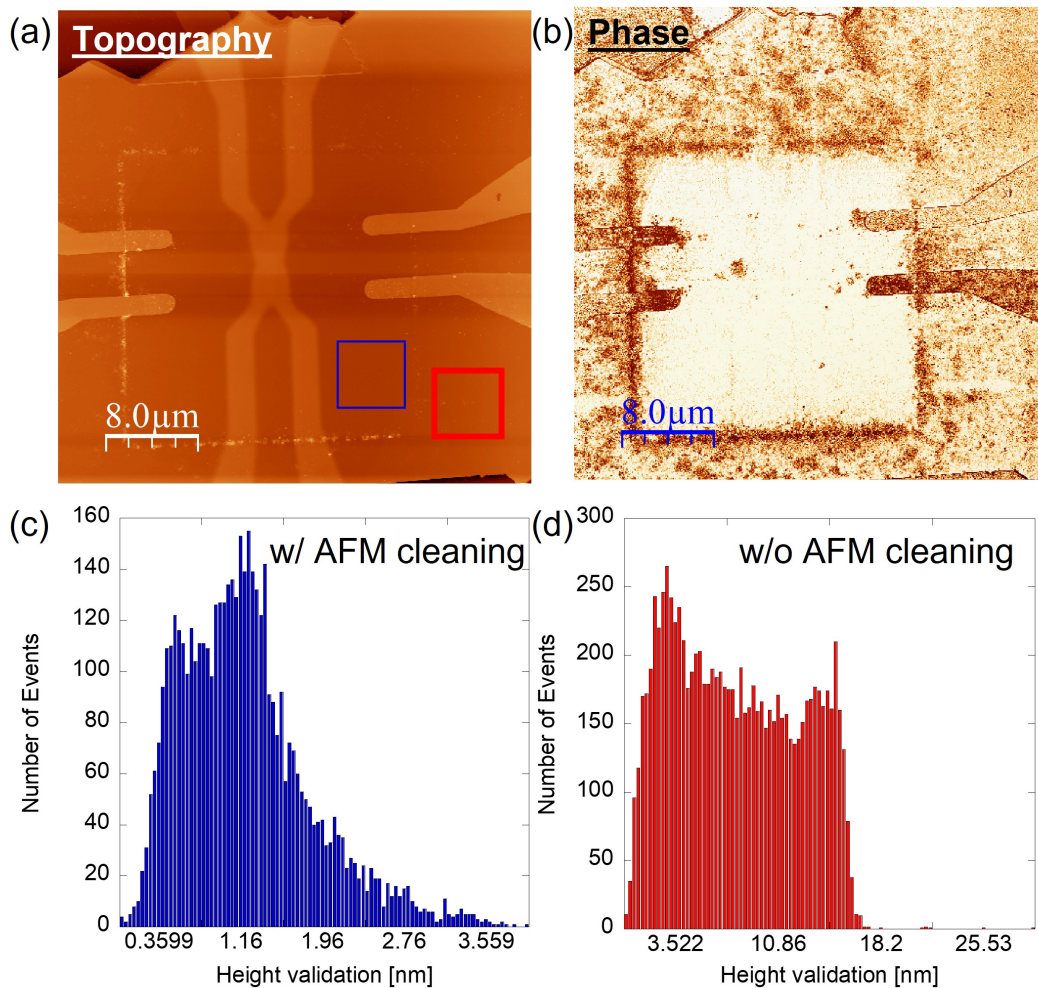


Fig.4.6 AFM クリーニング後にタッピングモードによって計測した AFM クリーニング済みおよび未処理部分の (a) トポグラフィと (b) フェーズ像。トポグラフィ像内の (c) 青枠 (処理済み部分) および (d) 赤枠 (未処理部分) における高さプロファイルのヒストグラム。

またボトムコンタクトに使用する金属は酸化の影響が少ない Au もしくは Pt を使用し、バリの少なくできるだけ平坦な表面を得るために、接着層である Ti を合わせて 15 nm 程度の膜厚とすることが最適である。このようなバリの少ない金属電極作製手法及び AFM クリーニング、ファンデルワールス構造作製手法を用いて作製した試料を図 4.7 に示す。ボトムコンタクト試料ではバックゲート電極からの電場はボトムコンタクト部の金属電極によってスクリーニングされてしまう為、コンタクト部のキャリア密度制御の為、トップゲート (TG) 電極が必須である。

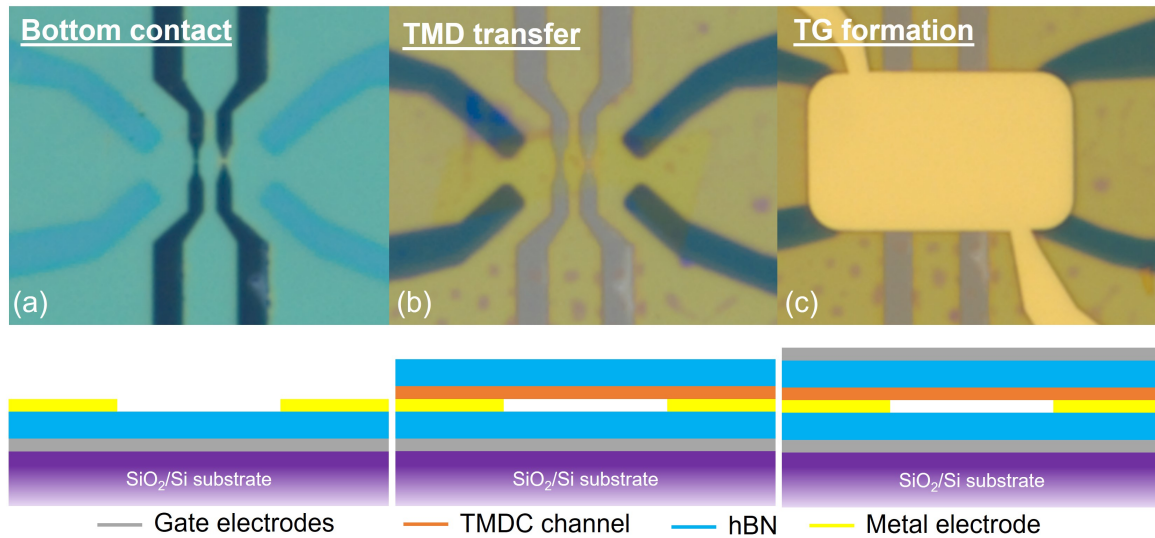


Fig.4.7 (上)hBN上に形成されたボトムコンタクト構造。(b) hBN/TMDCのドライトランスファー後。(c) キャリア密度及びコンタクト改善の為にトップゲート形成。下部はデバイス断面模式図。

図4.7の試料はhBNボトム基板およびフラットボトムコンタクト、AFMクリーニングを用いて作製したMoS₂-FET構造であり、室温においてTGスイープに対して10⁵以上のOn/Off比、120 cm²/Vs程度の二端子電界効果移動度、オーミック接触特性が十分に観測されている(図4.8)。ボトムコンタクトは非常に良好な特性を示すが、大気中などの活性雰囲気下でデバイスを作製した場合、金属表面と二次元半導体界面への水分などのトラップの影響によって、極低温環境下ではオーミック接触の再現性は取れなくなってしまう。また、AFMクリーニングといった複雑な試料作製プロセスが存在することからスループットが悪化するといった問題が存在する。

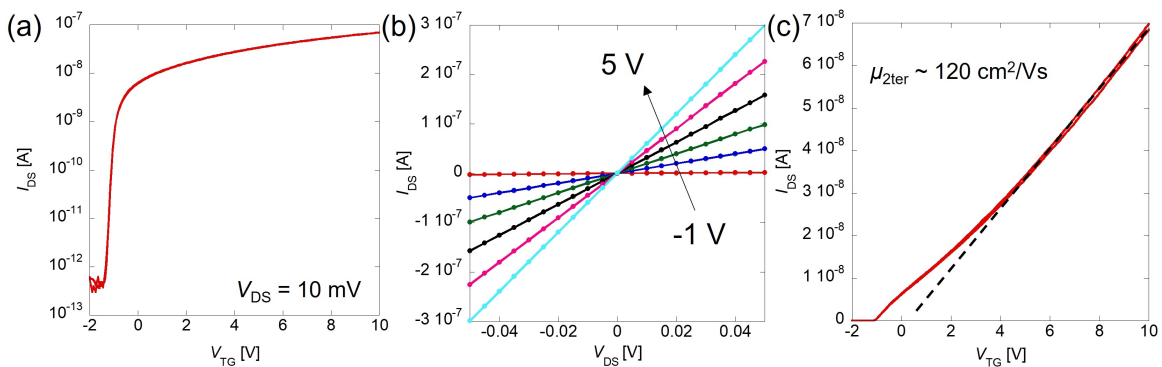


Fig.4.8 (a) $V_{DS} = 10$ mVにおけるゲート電圧依存特性。(b) 各 V_{TG} における V_{DS} 依存特性。(c) 電界効果移動度。

4.1.3 相変化を用いたコンタクト

二次元半導体である TMDC は結晶多型の性質を持ち、安定相で半導体的な性質をもつ 2H 構造のほかに、準安定相である 1T や 1T' といった金属層を持つ。相変化コンタクトではこのように金属的な特性を持つ結晶構造と半導体的な性質を持つ結晶構造を in-pane 接合で実現することによってオーミック接触を取得する手法である。準安定相である 1T' は 2H 結晶を高温加熱し、クエンチすることによって形成可能であるが、薄膜結晶において制御性良くで同様の現象を起こすために使用される手法が、プラズマもしくはレーザーを用いた局所的なエネルギー励起である。これらの手法は図 4.9 の様に面内において接合を作製可能であり、オーミック接触が室温で確認されている。しかし、これらの手法はラマン分光、EDS、TEM などの手法を複合して観察してみると、通常の 1T や 1T' とは明らかに異なる結晶構造を持っていることがわかり、またレーザーの強度分布やプラズマの高エネルギーイオンの打ち込みなどによってチャンネル領域まで大きな影響を受けることから制御性が悪く、また極低温環境下でのオーミック接触も確認されていない [119, 120]。

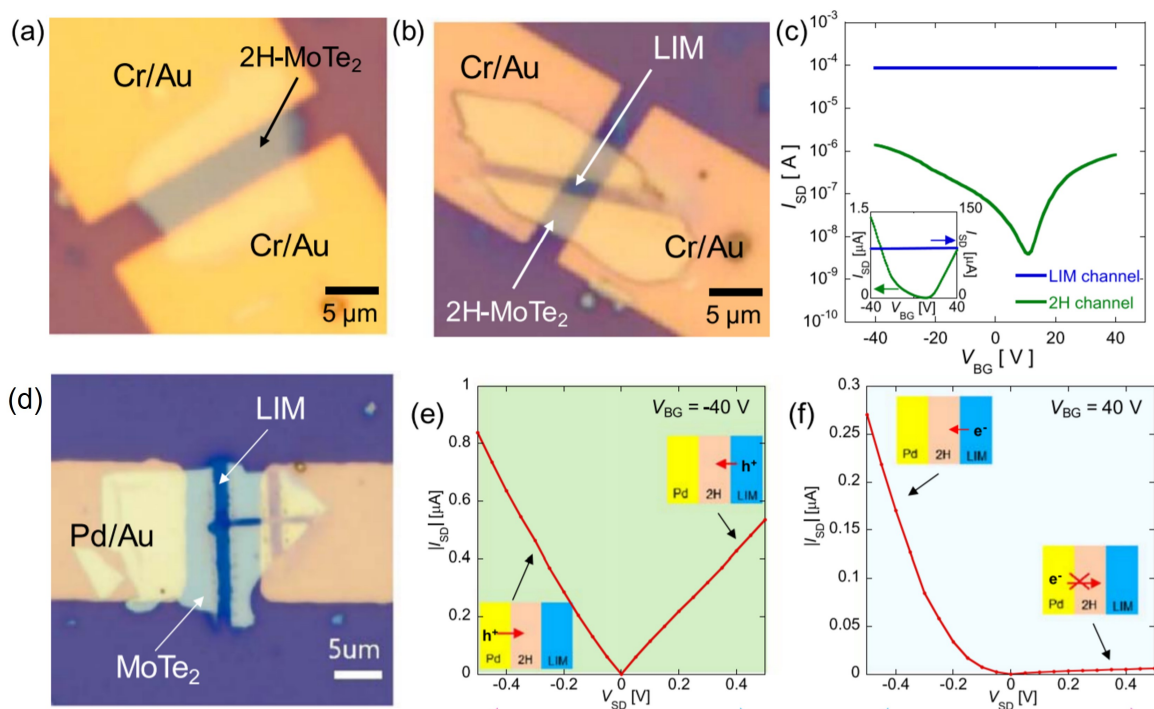


Fig.4.9 (a)2H 半導体相の MoTe_2 FET 素子。(b) レーザー誘起金属相 (LIM) 相のみでつながった 2 端子デバイスの光学顕微鏡像。(c)2H 及び LIM 相のゲート電圧依存特性。(d) レーザー照射によって LIM と 2H 半導体相を作り分けた MoTe_2 素子。(e,f) 各種ゲート電圧におけるソースドレイン電圧依存電流特性。LIM コンタクトから有意に電流が注入されている。Adapted with [119] under the permission of IOP.

4.1.4 金属ファンデルワールスコンタクト

面直方向にダングリングボンドを持たず、良好な界面特性を有する TMDC に対して電荷中性準位にフェルミレベルがピニングされる理由として考えられるのは、結晶成長および剥離時に誘起される欠陥や不純物による DIGS および金属蒸着などによって誘起された巨大な欠陥準位による UDM が考えられる。そこで、金属蒸着時に金属と二次元半導体の間において格子欠陥を誘起せず、良好な界面を形成する為に考案された手法が金属ファンデルワールス (vdW) コンタクトである。金属 vdW コンタクトとしては、

1. 低融点金属である In を電子線蒸着によって蒸着することで、二次元物質との間にファンデルワールスギャップが生まれ、良好なトンネルコンタクトを形成できる In コンタクト法 [121]
2. Au や Pt などの酸化しづらい金属を基板上に製膜し、その金属をポリマーなどで持ち上げて二次元半導体上に転写することで蒸着によるダメージフリーでコンタクトを形成する Transferd-via コンタクト (TVC) 法 [113, 122, 123]

の様な二種類存在する。後者の TVC 法はボトムコンタクト法と同様に金属-半導体界面への不純物のトラップによって大きな特性の劣化および極低温における再現性の低下が報告されている [123]。前者の In コンタクト法は通常の真空度の電子線蒸着機を用いても可能であることが示唆されており、また二次元半導体に対して通常のレジストプロセスを用いて蒸着をすればよいので非常に簡易である。

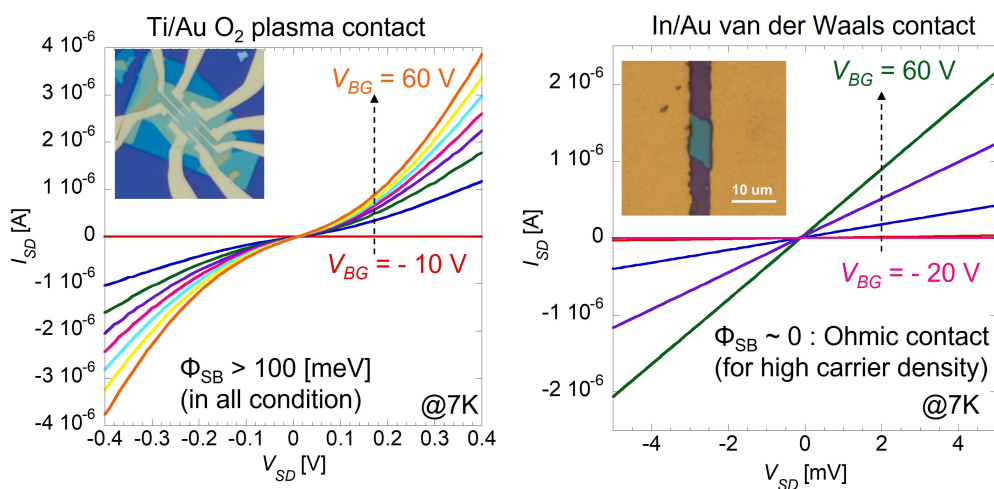


Fig.4.10 (左) エッジコンタクト法によって形成された Ti/Au コンタクト MoS₂ デバイスの低温における I_{DS} - V_{DS} 特性。(右) In コンタクトを用いた MoS₂ デバイスの低温における I_{DS} - V_{DS} 特性。

実際に、通常の Ti/Au コンタクトと In/Au コンタクトの特性を低温にて比較したものが図 4.10 である。Ti/Au コンタクト試料は低温において、明瞭な Schottky バリアダイオード特性を示しているが、In/Au コンタクト試料においては低温においてもオーミック接触を取得できている。しかし、このような vdW 金属コンタクトと hBN を用いたカプセル化技術の両立は単純ではない。hBN でカプセル化を行い、レジスト残渣やポリマー残渣、大気中の吸着物の影響を最低限にするためには、チャンネルとなる二次元物質が完全に hBN にカプセル化されているのが理想であるが、In を用いたトップコンタクト試料ではボトム hBN 上にチャンネルとなる二次元物質を製膜し、その上にコンタクトを形成する手法、もしくはチャンネル物質を hBN で完全にキャップせずに一部だけ露出した状況を作る手法が考えられるが、どちらもチャンネル物質の性能劣化は避けられない。そこで使用したのが、初めからトップ hBN に RIE を用いて SD 電極形成用のコンタクトホールを形成する手法である。このようにコンタクトホールが空いた hBN によってカプセル化され、In コンタクトが形成されたものが図 4.11 である。In コンタクトは図 4.10 の試料においては非常に良好な特性を示していたが、コンタクトホールを用いた試料においてはコンタクトの面積が小さく、またドライトランスファーやレジストプロセスにおける残渣がコンタクト領域に堆積する為、コンタクト間で非常に特性にばらつきがあり、極低温でオーミック接触を示す端子とショットキー接触を示す端子があるなど歩留まりが非常に悪い [124]。また、In は hBN に対しての接着性が非常に悪く、追加のレジストプロセスなどによって容易に電極がはがれてしまう問題がある。

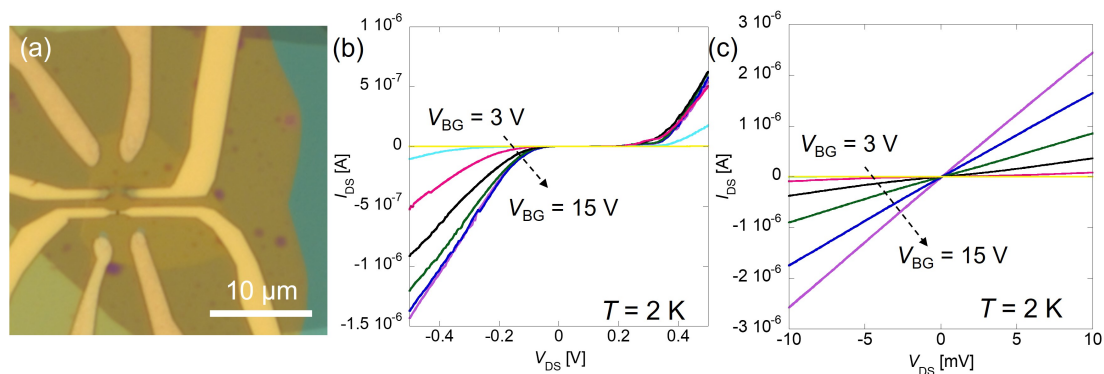


Fig.4.11 (a) In コンタクトホールを用いた MoS₂ デバイス。(b,c) 低温における I_{DS} - V_{DS} 特性。コンタクトによって大きなばらつきがある。

近年では、フェルミレベル近傍にて半金属のため特異的に状態密度が小さいピスマスをコンタクト金属として用いることによって、ファンデルワールスコンタクトにせずとも、半導体内の不純物準位と結合する状態が無い状況を作り出し、FLP の回避に成功している研究もある。ただし、半金属として考えられる金属は通常仕事関数が 4 eV 程度と非常に浅い為、p 型半導体に対しては使用できない問題点がある [125]。

4.1.5 2D/2D ファンデルワールスコンタクト

二次元物質と金属コンタクトのファンデルワールス接合を作る手法はスケーラブルな手法であり、比較的高性能を示すが、低温における歩留まりや超高性能デバイスが必要である量子デバイス応用には適応が難しかった。ここで使用するのが二次元物質と二次元物質の間において界面準位フリーな良好な特性を用いた 2D/2D コンタクト法である。はじめは半金属でありフェルミレベル付近に状態を持たない為、界面準位、MIGS フリーで非常に良好な界面特性を得ることが可能であるグラフェンが用いられた [51, 126, 127]。グラフェンをコンタクトとして用いることによって MoS₂ などの二次元半導体においても SdH の観測が可能になるなど大きなブレイクスルーとなった。グラフェンの仕事関数はおよそ $\Phi_{WF} \sim 4.1$ eV と比較的浅い為、伝導帯へのアクセスのみ可能であること、またグラフェン自体のキャリア密度が非常に低いためグラフェン自体に電荷を注入するための化学ドーピング、もしくはゲート構造などが必要になり、デバイス構造が非常に複雑となることなどが問題となる。そこで開発されたのが縮退ドーパされた TMDC 結晶をコンタクト結晶として用いる 2D/2D コンタクト法である [128–130]。MoS₂ や WSe₂ などに対して結晶成長時に微量の Nb, Re をドーピングすることによって遷移金属が置換され、アクセプタ準位として働くことによって、p 型にドーピングされることになる [131]。

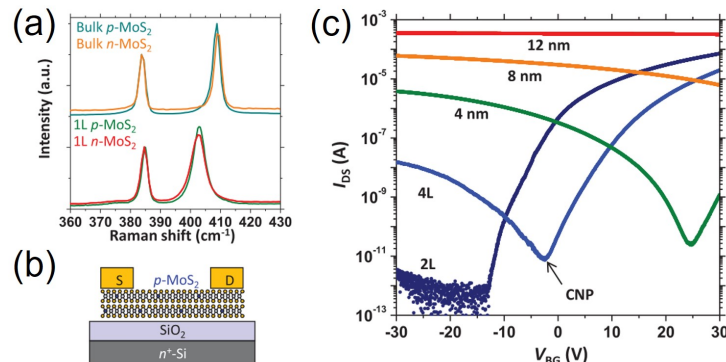


Fig.4.12 (a)n 型および p⁺-MoS₂ のラマンスペクトル。(b) デバイス構造。(c) ゲート依存特性の層数依存性。Adapted with permission from [131]. Copyright 2019 Wiley Online Library.

遷移金属置換型のドーピングで最も化学的に安定な結晶が p⁺-MoS₂ である。p⁺-MoS₂ は結晶構造などにおいて通常の MoS₂ と変わりはなく、ラマン分光などにおいても変化は観測されない (図 4.12(a))。また、MoS₂ は結晶成長や機械剥離に由来した S 欠陥を多数有しており、これらは非常に強いドナー準位として働く為、単層から数層までの膜厚において p⁺-MoS₂ は n 型または両極性の性質を示すが、多層においては図 4.12(c) の様に、ゲート電圧に依存しな

い p 型の縮退半導体的な性質を示す [131]。MoS₂ はバンドギャップが大きく、電子親和力も深いため、価電子帯の頂点が 6 eV 以上の非常に深い点にあり、金属の様に多結晶性や表面ラフネスによる仕事関数の低下、バンド端付近における低い状態密度の為 MIGS が起こりにくいなどの利点が存在する。

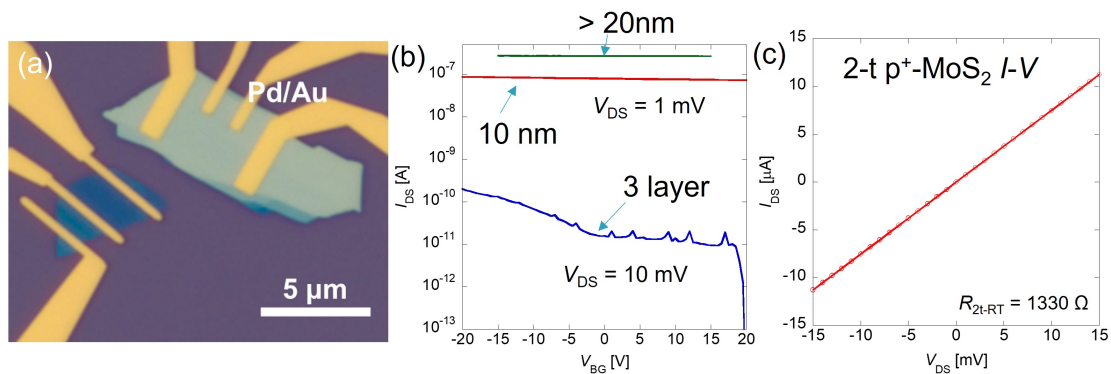


Fig.4.13 (a) 層数の異なる p⁺-MoS₂ デバイス。(b) 層数の違いによる電気伝導特性の変化。(c) 厚さ 30 nm の p⁺-MoS₂ 試料の 2 端子抵抗。Adapted with permission from [132]. Copyright 2021 American Chemical Society.

図 4.13 は実際の剥離試料における厚さの異なる試料のゲート依存特性および、厚さ 30 nm の試料における $I_{DS} - V_{BG}$ および $I_{DS} - V_{DS}$ 特性である。20 nm 以上の試料でゲート電圧依存特性は消失し、30 nm の試料においては抵抗値は二端子で 1330 Ω 程度と非常に低抵抗になっている。

このような p⁺-MoS₂ を SD コンタクトとして用いて作製したデバイスが図 4.14(a) である。すべての WSe₂ フレーク、hBN、p⁺-MoS₂ フレークは洗浄済みの SiO₂/Si 基板上に機械剥離によって製膜されており、PC/PDMS ドライトランスファー法によって hBN/WSe₂/p⁺-MoS₂/hBN ヘテロ構造を作製し、SiO₂/Si 基板上に事前に作製されたゲート電極上にトランスファーしている。使用した WSe₂ は三層である。SD 電極は p⁺-MoS₂ に対して CHF₃/O₂ プラズマによる RIE 及び Cr/Pd/Au(3/15/90 nm) を蒸着することでエッジコンタクト法によって形成している [26]。その後、キャリア密度およびコンタクト特性を制御するためのトップゲート電極を形成している。作製したデバイスの断面図を図 4.14(b) に示す。このように作製されたデバイスは室温および極低温環境下において図 4.14(c,d) の様にオーミック接触を示していることを確認した。

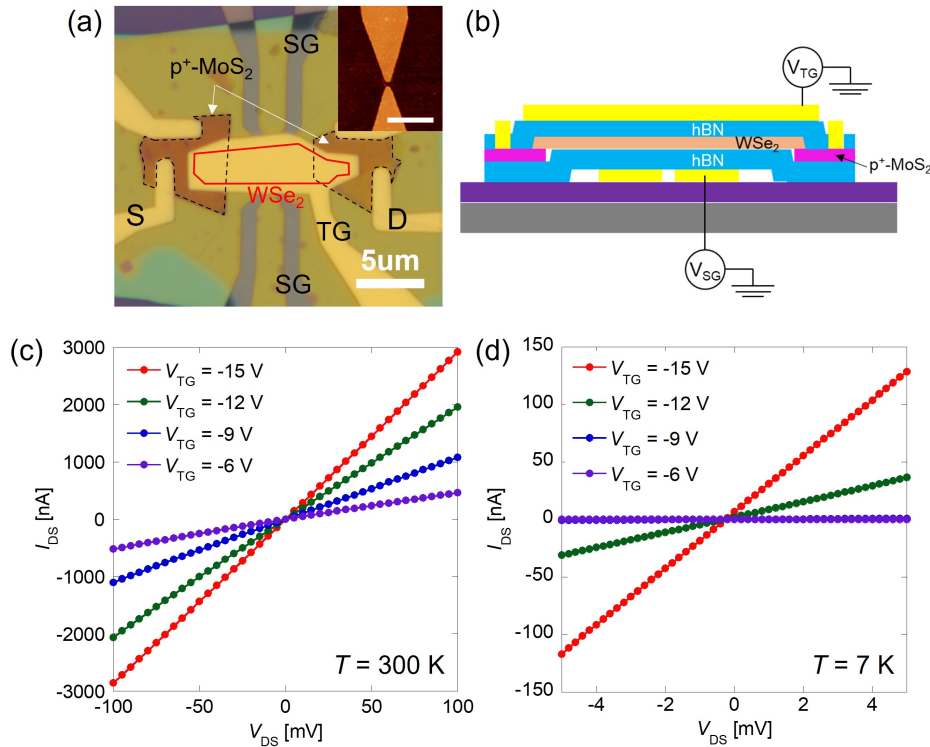


Fig.4.14 (a) 作製した三層 WSe₂-FET の光学顕微鏡像と (b) その断面図。(c) 室温における I_{DS} - V_{DS} 特性の V_{TG} 依存特性。(d) 低温 ($T = 7$ K) における I_{DS} - V_{DS} 特性の V_{TG} 依存特性。Adapted with permission from [132]. Copyright 2021 American Chemical Society.

このデバイスの各試料温度におけるトップゲート電圧依存特性をプロットしたものが図 4.15(a) である。明瞭な金属-絶縁体転移 (MIT) が観測されているが、その転移点は一定に決まっていない。本現象は四端子測定によってすべての測定を行っており、各二端子が p⁺-MoS₂ に対してコンタクトに対して取られていることに起因している。実際のチャネル材料である WSe₂ に対しては二枚の p⁺-MoS₂ によって二端子的にコンタクトが取られている為、実際の測定回路は準四端子構造 (Q4t: Quasi-4 terminal) とみなせる回路となっている。そのため、等価回路モデルで考えると Q4T 測定によってフィルターや測定回路内の抵抗、および p⁺-MoS₂ と金属コンタクト間の抵抗 (図 4.16) は除去可能であるが、p⁺-MoS₂ 自体の抵抗値および p⁺-MoS₂ と WSe₂ 間の接触抵抗値は除去することができず、p⁺-MoS₂ の抵抗および p⁺-MoS₂ と WSe₂ 間の接触抵抗も温度依存するため、このように MIT の点移転が温度に対してシフトすると考えられる。

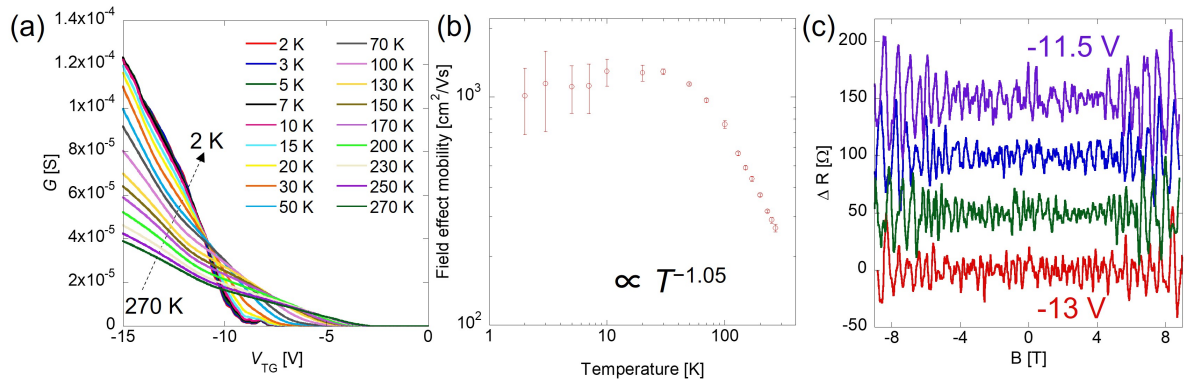


Fig.4.15 (a) コンダクタンスの TG 電圧依存特性の温度変化。(b) 温度依存電界効果移動度。(c) 各 TG 電圧における磁気振動。Adapted with permission from [132]. Copyright 2021 American Chemical Society.

本デバイスの Q4T による電界効果移動度は低温において $1000 \text{ cm}^2/\text{Vs}$ 程度 (図 4.15(a)) であったが、垂直磁場印加時の SdH 振動 (図 4.15(c)) の開始点より量子移動度 $\mu_Q \sim 1/B_C$ はおよそ $2500 \text{ cm}^2/\text{Vs}$ 程度であると予測される。この量子移動度と電界効果移動度の大きな差には Q4T 構造による接触抵抗の影響などによる見かけ上の抵抗値の高さが原因であると考えられる。Q4T 構造による四端子抵抗はキャリア密度の上昇とともに $R_{4t} = 3700 \Omega$ 程度まで下がる。p⁺-MoS₂ と WSe₂ 間のコンタクト抵抗を直接測定することは本デバイスでは難しいが、

$$R_C = (R_{4t} - \rho_{SH}L/W - 2R_{p-MoS2})/2 \quad (4.4)$$

の式より、シート抵抗率 ρ_{SH} をキャリア密度 n および量子移動度 μ_Q より算出することによって計算可能である。この様に計算したコンタクト抵抗 R_C は $T = 1.8 \text{ K}$ において 2140Ω 程度であり、これは数層 WSe₂ に対するコンタクト抵抗においてはグローブボックス中などの不活性雰囲気中におけるデバイス作製手法である Pt ボトムコンタクト法などに並ぶ非常に良好なコンタクト特性を示している [114, 123]。本デバイスではオーミック接触を取得可能な任意のキャリア密度において平均自由工程は 100 nm を超える為、微細ゲート構造内においてバリスティックもしくは準バリスティック伝導が実現すると考えられる。

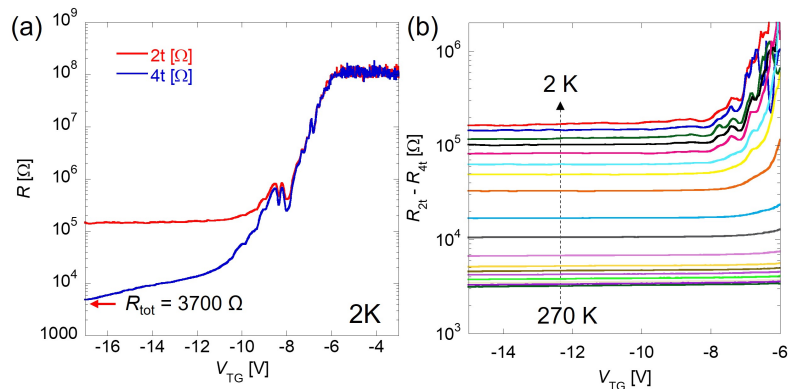


Fig.4.16 (a) 極低温における二端子及び Q4T 測定での抵抗値の違い。(b)Q4T 抵抗と二端子抵抗値の差の温度依存性。Adapted with permission from [132]. Copyright 2021 American Chemical Society.

4.1.6 コンタクト手法のまとめ

本節では様々なコンタクト手法について議論をしてきた為、各コンタクト法について表 4.1 の様にまとめる。

Table4.1 ボトムコンタクト、相変化デバイス、ファンデルワールス金属コンタクト、2D/2D コンタクト法のまとめ

問題点	ボトムコンタクト	相変化	ファンデルワールス金属	2D/2D コンタクト
スループット	低い	高い	場合による	中程度
再現性	高い	非常に低い	大気下であまり高くない	非常に高い
極低温環境	不活性雰囲気下で良好	不明	不活性雰囲気下で良好	非常に良好

これらの結果よりスケラブルな応用には難しいが、個別の量子デバイスの実現に対しては非常にクリーンで高性能デバイスを作製可能である 2D/2D コンタクト法が実用的であると考えられる。また、2D/2D コンタクト法ではチャネル材料およびコンタクト物質などの材料を選択することで n 型、p 型などの極性の違いを作り変えることが可能であるのみでなく、非常に深い仕事関数をもつ金属である 2H 型の 5 族の TMDC (NbS₂ や TaS₂ など) を用いることによって、超伝導特性との組み合わせなどに応用可能であると考えられる [7, 8, 128]。

4.2 電界効果による閉じ込め構造の実現

これまで TMDC における量子閉じ込め構造は前述の問題により n 型に限られてきた [51, 52, 63, 64, 126, 133–135]。前節で紹介した 2D/2D コンタクトを用いることによって、極

低温環境下において、特に p 型特性を示す半導体に対して安定してオーミック接触を取得することが可能になった。そこで本研究では 2D/2D コンタクトを用いて世界で初めて p 型の QPC を実現した。p 型における QPC のような量子閉じ込め構造の実現は、強い SOC に起因したスピン偏極状態やバレー自由度に関連した現象の観測 [60, 136–139] などが期待されるほか、Type II ヘテロ構造におけるエキシトン閉じ込め [121, 140–142] や量子ドット構造を用いた qubit への応用 [143] など、応用性も非常に高い。

4.2.1 デュアルゲート動作による量子ポイントコンタクトの実現

前節で紹介したように 2D/2D コンタクトを使用したことで WSe₂ のコンタクト特性および移動度が大幅に向上したことによって ON 状態において伝導度が量子化伝導度を大きく超えた値を有する p 型特性の FET の作製に成功した。この FET デバイスにスプリットゲートを取り付け、正電圧を印加することによってホールをスプリットゲート直上から排斥し、QPC のような量子閉じ込め構造の実現が可能とした。

図 4.17(a) は本研究で用いた QPC デバイスであり、図 4.14(a) のデバイスと同一デバイスである。本デバイスでは hBN にカプセル化された WSe₂/p⁺-MoS₂ 接合がボトム SG 上に置かれている。ボトム SG はバリが無く、平坦なものを使用しており、バリの有無及び寸法は AFM および FE-SEM によって観察済みである (図 4.17(b,c))。なお、すべての QPC 動作実験において、TG 電圧は $V_{TG} \leq -11$ V ($n_{Hole} \geq 3 \times 10^{12}$ cm⁻²) に設定している。これは低キャリア密度領域において観測される不純物による局在現象の影響を除去する為である [51, 62]。また TG 電圧の印加範囲は SG 動作時に非常に大きなピンチオフ電圧が必要となるため、 -13 V $\leq V_{TG} \leq -11$ V の範囲に TG 電圧を設定している。

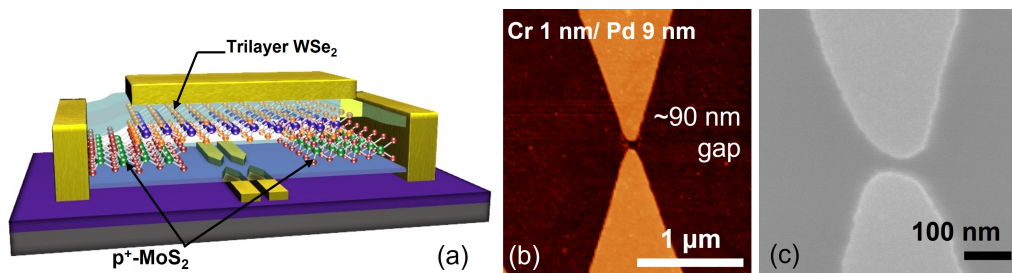


Fig.4.17 (a) p⁺-MoS₂ コンタクトを用いた三層 WSe₂ デバイスの概略図。デバイスは図 4.14(a) と同一。(b) ボトムスプリットゲートの AFM 像と (c) FESEM 像。Adapted with permission from [132]. Copyright 2021 American Chemical Society.

図 4.18(a) は TG 電圧を固定しながら、SG 電圧を正に印加した際のコンダクタンスである。SG 電圧が大きくなるにつれて SG 直上から徐々にホールが排斥されていきコンダクタンスが低下していく。SG 電圧が一定値以上になるとコンダクタンスがステップ状に変化しながら急

減に減少し、ピンチオフに至るといった二段階の変化が観測されている。ここで量子ポイントコンタクト自体のコンダクタンスは

$$G_{\text{QPC}} = \frac{1}{R_{4t} - R_{\text{Series}}} \quad (4.5)$$

によって計算される [46,47]。ここで R_{Series} は 2DHG の直列抵抗であり、

$$R_{\text{Series}} = R_{4t}(V_{\text{SG}} = 0) \quad (4.6)$$

の様に SG 電圧を印加していない場合の 2DHG の抵抗と同値だと仮定すると、直列抵抗を補正することによって図 4.18(b) のようになる。図 4.18(b) では直列抵抗を補正したことによって、より明瞭にキャリアの排斥によるコンダクタンスの低下、QPC の形成による量子化コンダクタンス、ピンチオフ状態が観測される。

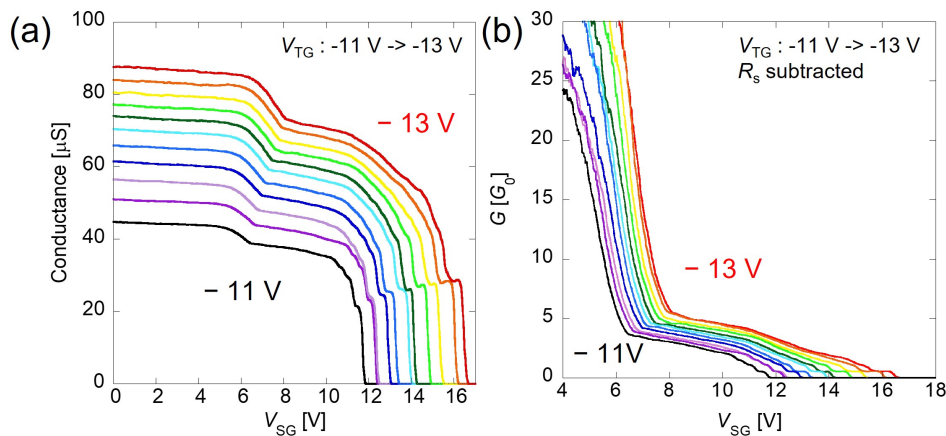


Fig.4.18 (a) $T = 1.8 \text{ K}$ における TG 電圧 V_{TG} を固定した場合におけるコンダクタンスの V_{SG} 特性。(b) 直列抵抗補正後のコンダクタンス。Adapted with permission from [132]. Copyright 2021 American Chemical Society.

この図 4.18(b) における量子化コンダクタンス領域を拡大したものが図 4.19(a) である。 G_0 はスピン縮退した量子化コンダクタンス単位であり、 $G_0 = 2e^2/h$ である。図 4.19(a) をみると、 $1/2 G_0$ の単位において量子化されていることがわかる。また、 $N = 4$ 以上のモードは不明瞭ではあるが、図 4.19(b) の微分コンダクタンスを見てみると高いモード数まで e^2/h のステップで量子化が起こっていることがわかる。三層 WSe₂ は DFT などによるバンド計算を比較すると、そのバンド構造は価電子帯において Γ 点に頂点を持つバンド構造であり、その量子自由度はバレー自由度 1 及びスピン自由度 2 によって $g = 2$ であると予測される。この違いは、ゼロ磁場においてスピン自由度が自発的に偏極している可能性を示していることから、次節以降に示すようにさらなる検討を行った。

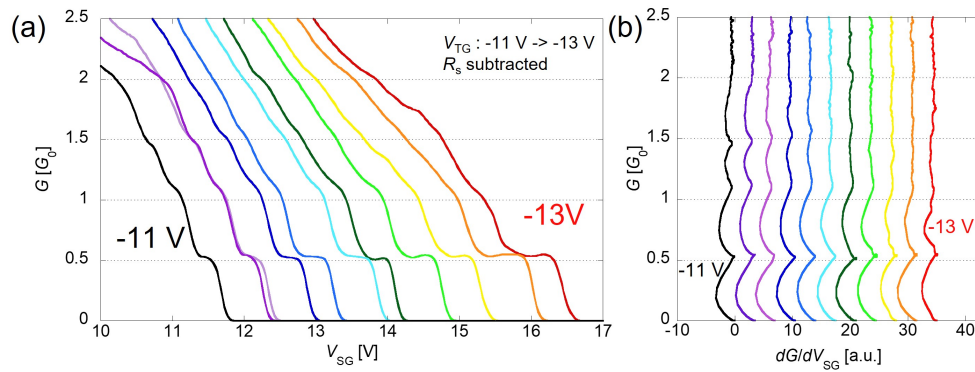


Fig.4.19 (a) 図 4.18(a) の QPC 動作点拡大図。(b) 微分コンダクタンス。Adapted with permission from [132]. Copyright 2021 American Chemical Society.

4.2.2 有限磁場下での伝導現象

ゼロ磁場におけるスピン偏極状態と考えられる e^2/h における量子化コンダクタンスの特性を調べるために磁場中における QPC 動作を確認した。本研究では磁場をすべて垂直に印加している為、高磁場においてランダウ量子化の影響があるが、二次元正孔領域ではキャリア密度が非常に高いため高磁場においてもフィリングファクターが大きくなり、QPC 特性には大きな影響を与えず、ゼーマンエネルギー $\Delta E_{\text{Zeeman}} = g_{\perp} \mu_B B$ の影響が顕著に表れると考えられる。高磁場の印加によって、後方散乱の抑制、エッジチャンネルの反射、各サブバンドにおけるスピン密度の変化などの要素によって整数値の変化がより顕著に観測されるが [144]、微分コンダクタンスのカラーマップ (図 4.20(b)) においては、いずれのサブバンドの交差や分裂現象は 9 T の高磁場まで観測されず、磁場中において新たな自由度の分裂は起こらないことを意味している。これは、ゼロ磁場において既にスピン偏極状態が生じていることを示唆している。

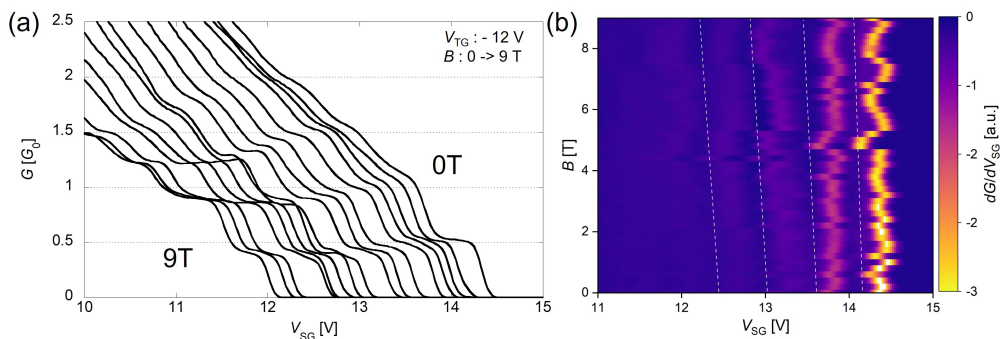


Fig.4.20 (a) $V_{\text{TG}} = -12 \text{ V}$ におけるコンダクタンスの各磁場における SG 電圧依存特性。(b) 微分コンダクタンスの磁場及び SG 電圧特性カラーマップ。Adapted with permission from [132]. Copyright 2021 American Chemical Society.

このようなスピン偏極状態は三層 WSe₂ の価電子端である Γ 点においては高い対称性によって起こりにくいと考えられる。そのため、考えられるメカニズムとしては、

1. デュアルゲート構造によって誘起された電界により、バンド構造が変化している可能性 [145–147]
2. Single-layer transport (SLT) が起きている可能性 [53, 118]

が考えられる。三層 WSe₂ の縮退度は DFT 計算によって求められたバンド構造 (図 4.21(左)) から考えると価電子帯の Γ 点において通常スピン自由度の 2 のみであるはずであるが、垂直電場の影響によって対称性が変化し、バンド構造が大幅に変化することが知られている。本研究で用いたデュアルゲート構造ではキャリア密度を誘起するために TG に負の電圧を印加し、狭窄構造を定義するために正の電圧を SG に印加しているため、垂直電場が誘起される。特に、スプリットゲート直上では電場強度は 0.7 V/nm 以上であると推測される。DFT 計算では 1 V/nm 程度の垂直電場が印加されることによって、K 点が上がっていき、バンド端が K 点になることが示されており、垂直電場によってスピン軌道相互の強い K 点において電気伝導が起こっていた可能性が示唆されている [145, 146]。ただし、本研究では SG 直上での電場強度自体も 1 V/nm に到達せず、QPC チャンネル内においてはフリンジング効果によって電界強度は下がると予測され、K 点における電気伝導が起こるほどの電場強度は稼ぐことができてないと考えられる。

一方で近年では、数層の TMDC 物質において極低温で単層と同様の電気伝導が起こる現象が発見されており、これは高品質の数層 TMDC において 2H 積層構造のために、層間のホッピングが 180 度回転した結晶構造によって K-K' 間のバレー間散乱を必要とするため、抑制されることによって起こると説明されている [53, 118, 148]。このような状況では量子井戸状態が形成され、伝導は蓄積ゲート (本デバイスの場合は TG) に近い単層においてのみ起こっており、巨大な SOC を価電子帯にて持つ単層型の電気伝導特性を有している可能性が考えられる。

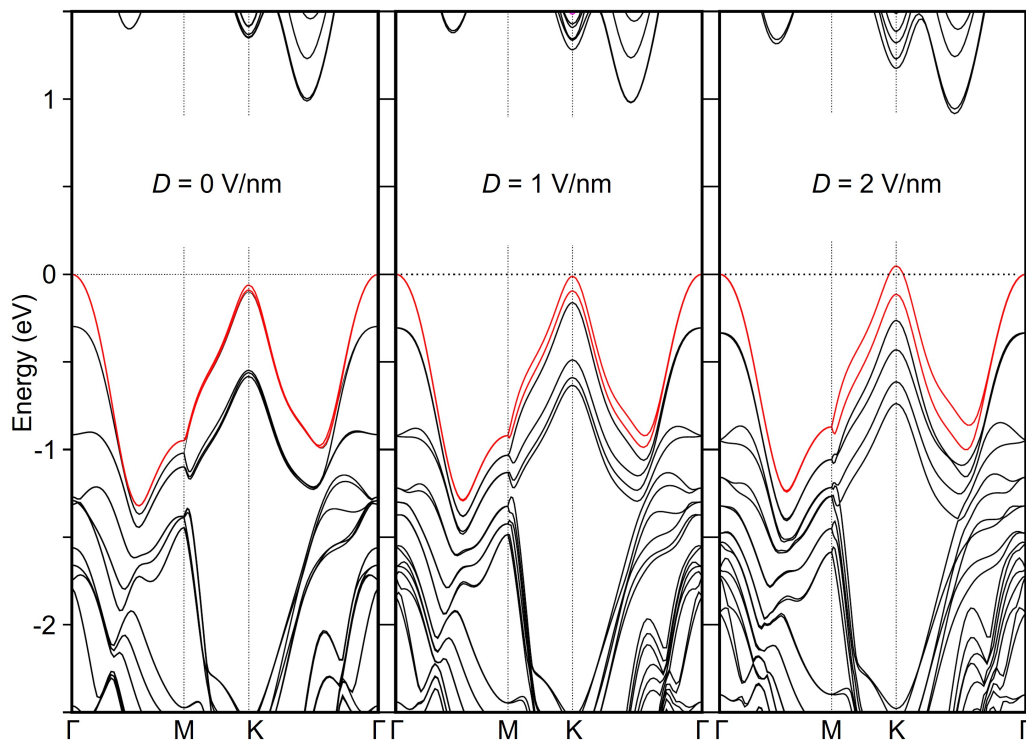


Fig.4.21 三層 WSe₂ の DFT 計算による垂直電場依存バンド構造。Adapted with permission from [132]. Copyright 2021 American Chemical Society.

4.2.3 有限バイアスにおける伝導特性

スピン偏極状態の直接的な観測に DC バイアススペクトロスコピー測定は威力を発揮する。SD 電極間にロックイン測定に使用する μV オーダーの AC 電圧に DC 電圧を重ねることで、各サブバンド間エネルギーおよび半整数プラトー状態が観測可能となる手法であり、ソース電極の化学ポテンシャルにバイアス電圧によるエネルギーを重ねた際に、ソース電極の化学ポテンシャルがサブバンドエネルギーと一致することによって伝導度が上昇し、サブバンドエネルギー間においてはプラトーを示すことになる [149]。ここで有限バイアス下におけるプラトーでは元の整数プラトーの半整数のプラトー状態が観測される。そのため、スピン偏極した QPC に対して SD バイアスを印加した場合、有限バイアス下では $0.5 G_0 N$ の倍数の代わりに、 $0.25 G_0 N$ のような半整数プラトーが観測される。このような $1/4$ プラトー状態はスピン偏極状態の直接的な証拠となる [150, 151]。

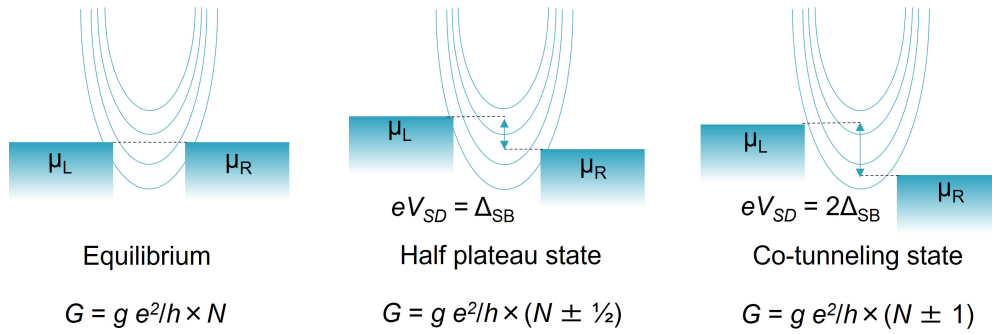


Fig.4.22 DC バイアス印加時のサブバンドに対するソース及びドレインの化学ポテンシャルの関係。Adapted with permission from [132]. Copyright 2021 American Chemical Society.

本研究で用いた QPC デバイスは Q4T 構造を持つデバイスであり、4 端子抵抗において 2DHG の抵抗および各種接触抵抗が抵抗値に含まれているため、SD 電極間に印加したバイアス電圧が QPC 部分に直接印加されるわけではなく、各種電圧降下を経て印加される。そのため、以下のような等価回路モデルを用いて、QPC 部に実際に印加される電圧 (V_{QPC}) を算出する必要がある。

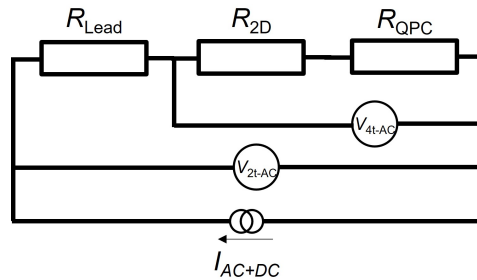


Fig.4.23 SD バイアス測定時の等価回路

図 4.23 の等価回路モデルにおいて、 R_{lead} および $R_{2\text{DHG}}$ がそれぞれ、

$$\begin{aligned} R_{\text{lead}} &= R_{\text{filter+line}} + R_{\text{metal/p+-MoS2}} \\ R_{2\text{DHG}} &= R_{\text{p+MoS2}} + R_{\text{p+MoS2/WSe2}} + R_{\text{WSe2}} \end{aligned} \quad (4.7)$$

である。また全抵抗は

$$\begin{aligned} R_{\text{total}} &= R_{\text{lead}} + R_{2\text{DHG}} + R_{\text{QPC}} = R_{2\text{t}}, \\ R_{\text{QPC}} &= R_{4\text{t}} - R_{4\text{t}}(V_{\text{SG}} = 0) \end{aligned} \quad (4.8)$$

と表すことができる。ここで各抵抗における電圧降下を実験的に測定している各実験値である DC バイアス電圧 $V_{\text{SD-DC}}$ 、四端子抵抗 $R_{4\text{t}}$ 、二端子抵抗 $R_{2\text{t}}$ を用いると、

$$V_{\text{QPC-DC}} = V_{\text{SD-DC}} \times \frac{R_{4\text{t}} - R_{4\text{t}}(V_{\text{SG}} = 0)}{R_{2\text{t}}} \quad (4.9)$$

の様に変換可能である。

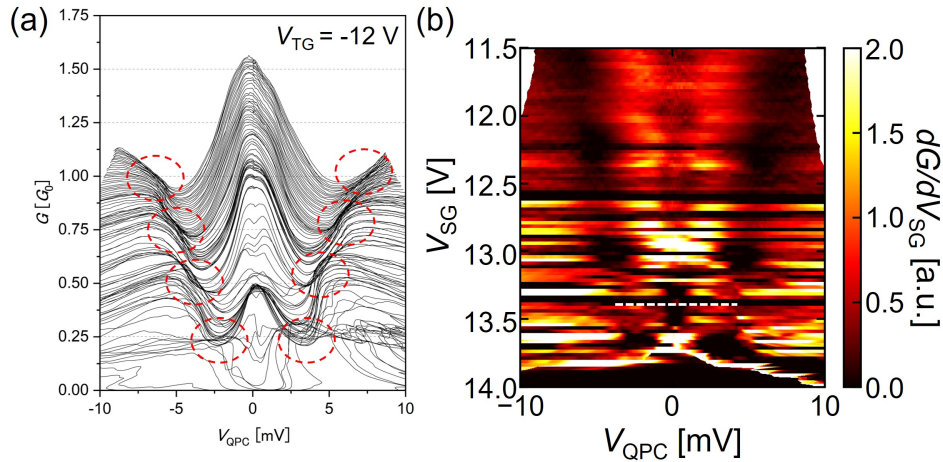


Fig.4.24 (a) $V_{TG} = -12\text{ V}$ におけるコンダクタンスの V_{SG} の依存特性。(b) $V_{TG} = -12\text{ V}$ における微分コンダクタンスの V_{SG} 、 V_{QPC} 依存カラーマップ。Adapted with permission from [132]. Copyright 2021 American Chemical Society.

図 4.24(a) は $V_{TG} = -12\text{ V}$ に固定した場合の各 SG 電圧における DC バイアス電圧依存コンダクタンス特性、図 4.24(b) は微分コンダクタンスの V_{SG} および DC バイアス電圧依存カラーマップであった。図 4.24(a) においてゼロバイアス環境では 0.5 、 1.0 、 $1.5 G_0$ においてプラトーに対応するラインプロファイルが密になる点および有限バイアス下において赤い点線円で囲った部分においてプラトーに対応するラインプロファイルが密になっている点が存在する。有限バイアス下において $0.25 G_0$ において明瞭なハーフプラトー状態が観測されており、ゼロ磁場におけるスピン偏極状態が観測されている。しかし、高次モードにおけるハーフプラトーではコンダクタンスが半整数から大きくずれており、明確に半整数プラトーを決定できないことがわかる。これは従来のグラフェンデバイスや HEMT デバイスなどに比べてデバイスの品質および安定性が非常に低いために、QPC チャンネルにおいて高次の散乱プロセスや 15 時間以上におよぶ長時間測定による局所電子の影響、測定機器のドリフト、QPC チャンネルにおけるセルフゲート効果によるコンダクタンスの減少もしくは増加などの非線形現象によって、単純な補正方法では補正が不可能になり有限バイアス領域においてコンダクタンスが真の値よりも小さくなってしまうためであると考えられる [149–151]。しかし、コンダクタンスの絶対値の補正が不要である図 4.24(b) のような微分コンダクタンスのカラーマップにおいては高次モードの半整数プラトー状態 (暗い部分) が明瞭に観測されている。

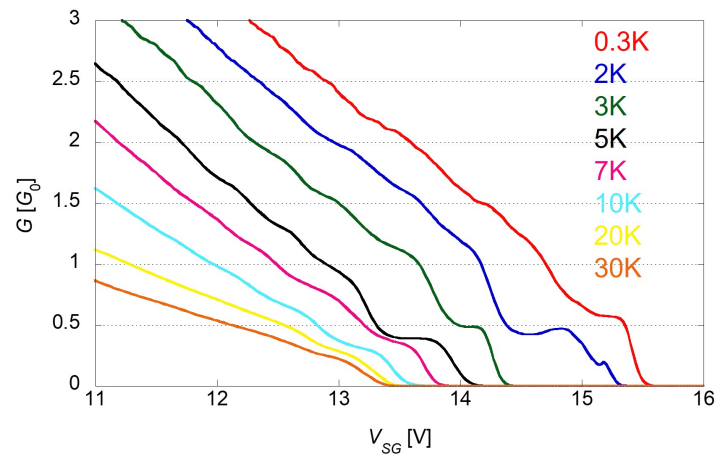


Fig.4.25 $V_{TG} = -12$ V におけるコンダクタンスの V_{SG} 依存特性の温度変化。Adapted with permission from [132]. Copyright 2021 American Chemical Society.

微分コンダクタンスにおける $N = 1$ モードのサブバンド間エネルギー間隔は微分コンダクタンスにおけるダイヤモンド構造のエネルギー間隔より算出可能であり、その値は $\Delta E = 2.7 \pm 0.25$ meV 程度であった。これは QPC 動作の温度特性を取得した場合において (図 4.25)、プラトー状態が観測された限界である 30 K 程度の熱励起エネルギーとほぼ同等である。

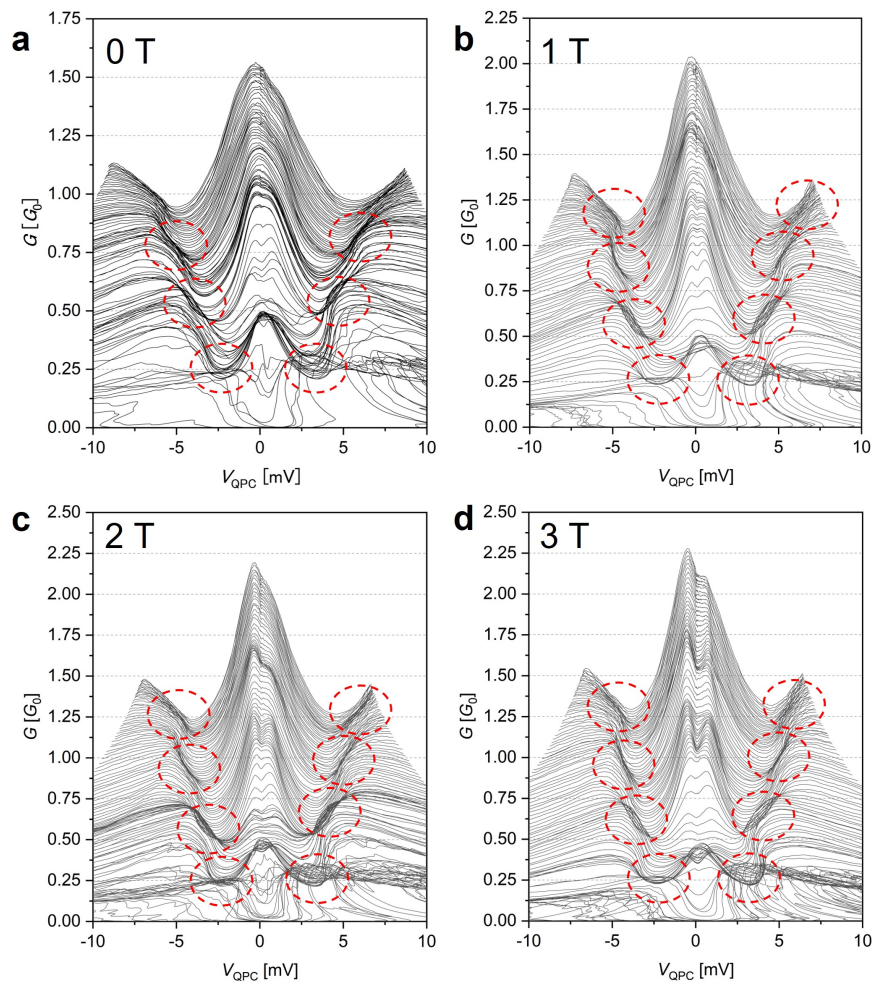


Fig.4.26 $V_{TG} = -12$ V、(a) $B = 0$ T、(b) $B = 1$ T、(c) $B = 2$ T、(d) $B = 3$ Tにおけるコンダクタンスの V_{SG} の依存特性。Adapted with permission from [132]. Copyright 2021 American Chemical Society.

図 4.26(a-d) 及び図 4.27(a-d) は各磁場における SD バイアススペクトロスコピーのコンダクタンスラインプロファイルおよび微分コンダクタンスのカラーマップであり、各磁場においても高次モードまでのゼロバイアスにおけるプラトー及び有限バイアス下におけるハーフプラトー状態が明瞭に観測できている。ただし、これらの半整数プラトーのコンダクタンス値も理想的な値からずれていることが確認できる。

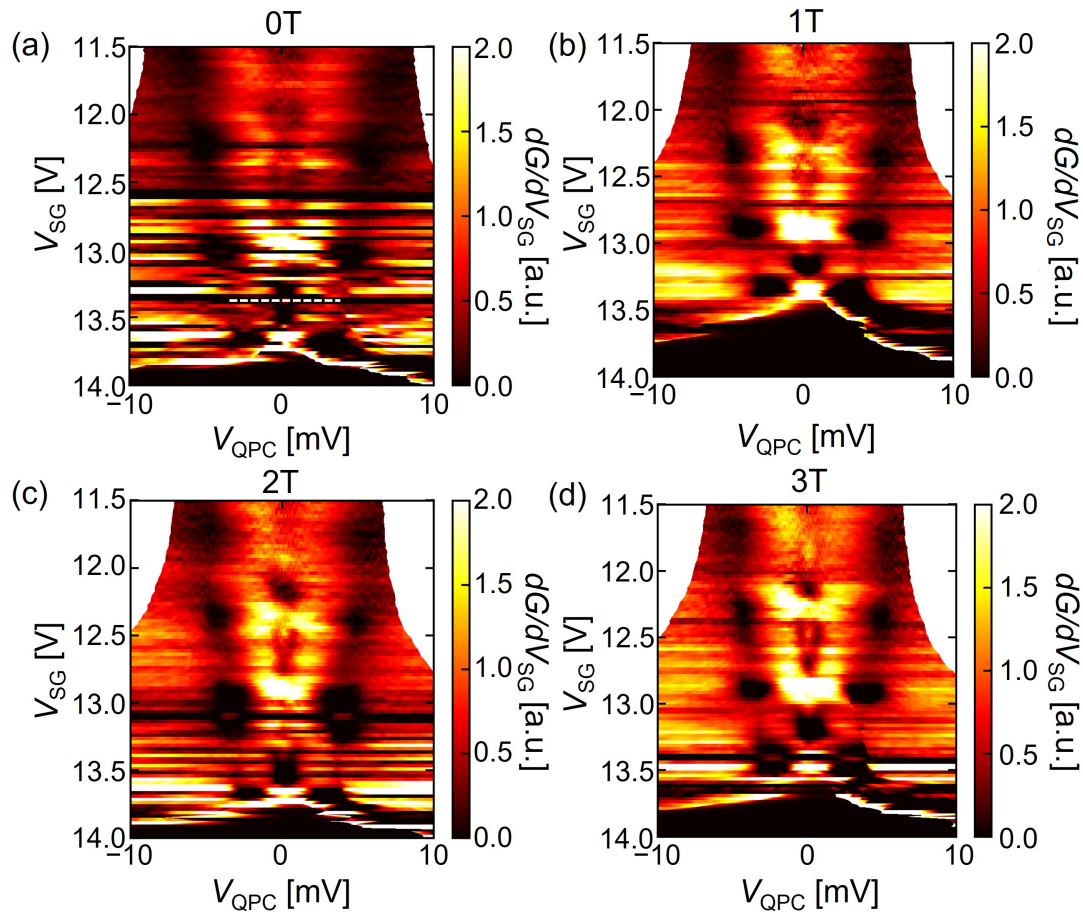


Fig.4.27 $V_{TG} = -12$ V, (a) $B = 0$ T, (b) $B = 1$ T, (c) $B = 2$ T, (d) $B = 3$ Tにおける微分コンダクタンスの V_{SG} の依存カラーマップ。Adapted with permission from [132]. Copyright 2021 American Chemical Society.

また磁場中において $N = 2$ プラトー付近においてゼロバイアスピークが二つに分裂する現象が観測されている。これは高磁場においてさらに顕著になっている。このピーク位置は図4.28のように磁場の上昇とともに広がっていくことがわかっており、ゼーマンエネルギーが大きくなるにつれて顕著になっていくことを示唆している。このような現象は Triplet を形成する Kondo 効果などで観測されており、今回の QPC においてスピン偏極したサブバンドにおいて $N = 2$ 付近にて顕著に観測されていることから、two-impurity Kondo 効果などに起因した現象であることが示唆されているが [152–155]、温度特性や多体相関作用、Wigner 結晶化の可能性検討など更なる検証が必要である。

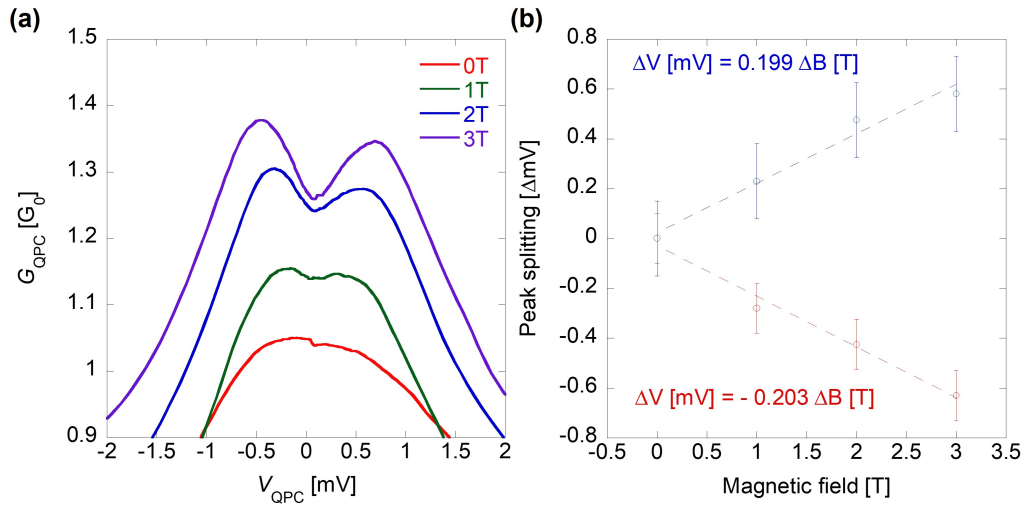


Fig.4.28 (a) $N = 2$ 付近における SD バイアススペクトロスコピーの磁場依存性。(b) $N = 2$ のゼロバイアスピークのピーク位置磁場依存性。

4.2.4 結論

本研究では TMDC 物質に対してコンタクト取得方法およびファンデルワールスヘテロ構造の作製手法などを高度化することで高性能デバイスの実現を行い、三層 WSe_2 において p 型の QPC 素子の実現に成功し、 e^2/h を単位とした伝導度の量子化現象の観測に至った。二次元物質における p 型の QPC 素子の実現は世界初であり、TMDC 物質における価電子帯の強いスピン-軌道相互作用に起因すると考えられるスピン偏極状態の兆候を QPC において観測した。本手法を拡張することによって、スピントロニクス素子やバレー自由度を用いた新奇エレクトロニクス素子への応用が期待される。また本手法で用いたデバイス作製法は異なる TMDC 物質やヘテロ構造に対しても容易に拡張可能である為、超伝導や磁性体などの 2 次元物質と量子デバイス構造との組み合わせによる新機能の発現が期待される。またゲート構造を変化させることによる量子ドットや電子波干渉計などの量子デバイスへの応用も可能であり、これらの実験への拡張も期待される。

第 5 章

結論と展望

本研究の目的はグラフェンや遷移金属ダイカルコゲナイドにおいてファンデルワールスヘテロ構造を作製することで量子閉じ込め構造、特に量子ポイントコンタクト素子を実現することにある。本章では本研究における結果と将来展望について議論する。

5.1 結論

本研究では二次元物質特有のファンデルワールスヘテロ構造といった特異なデバイス構造を用いて、デバイス性能の向上を狙い、その量子閉じ込め構造への応用を目指してきた。特に hBN を用いたカプセル化構造の採用によって二層グラフェンにおいて高移動度及び高電界密度の獲得に成功した。また遷移金属ダイカルコゲナイドに対してファンデルワールスヘテロ構造を用いることによって移動度やコンタクト性能の大幅な向上を達成した。これらの技術をもとに、本論文では第三章において、二層グラフェンにおいて二つのデバイス構造において量子ポイントコンタクトを電界閉じ込めによって形成し、先行研究に比べて細い狭窄構造にてバレー自由度が自発的に破れていると考えられる現象の観測について議論を行った。また第四章においてファンデルワールスヘテロ構造によって移動度、コンタクト性能ともに高性能化された遷移金属ダイカルコゲナイド素子、特に p 型の WSe_2 において、世界初となる量子ポイントコンタクト素子の実現に成功し、ゼロ磁場において強いスピン-軌道相互作用に起因すると考えられるスピン偏極状態の量子化コンダクタンスの観測に関して議論を行った。

第三章において、二層グラフェンにおける量子ポイントコンタクトでは、狭窄構造の幅の違いやデバイス構造に起因すると考えられる、自発的なバレー自由度の破れが観測されており、これらが異なる二つのデバイス構造において観測されることを議論した。これらの結果は狭窄構造の形状によってグラフェン中における量子化の様式が変化することを示唆しており、さらなる研究の余地があることを示した。

第四章においては 2D/2D コンタクト法によって、極低温環境下において安定したコンタク

トが取得できることを示し、他のコンタクト方法との比較を行った。極低温におけるコンタクト手法の確立を行ったことにより、世界初の p 型における量子ポイントコンタクト素子の実現に遷移金属ダイカルコゲナイドで成功した。その結果、価電子帯の強いスピン-軌道相互作用に起因したスピン偏極状態の量子ポイントコンタクトが実現していることを実験的に発見し、評価を行った。

5.2 課題と展望

本研究では行った研究は二次元物質における量子閉じ込め構造に向けた研究であり、量子ポイントコンタクト素子以外にも応用が可能である。特に、量子ドットや電子波干渉計などの閉じ込め構造は二次元物質特有のスピン-バレー自由度や強い二次元平面への電子閉じ込め効果、スピン-軌道相互作用などによって様々なデバイスへの応用が可能となる。例えば図 5.1 に挙げられるような、量子ドット構造においてはバレー自由度によって守られた長いコヒーレンスを持つ量子ビットの実現 [156] や量子ポイントコンタクトによるスピン-バレーフィルター及びスピン-バレーディテクタなどスピン-バレートロニクスの基本素子などへの応用 [60, 136, 157]、強い二次元平面への電子閉じ込めによるロバストな分数量子ホール状態を利用した分数エッジチャンネル干渉計 [158, 159] など様々な量子素子への応用が期待される。しかし、本研究で紹介した通り、二次元物質の移動度は単層グラフェンにおいて高々 $1,000,000 \text{ cm}^2/\text{Vs}$ 程度であり、遷移金属ダイカルコゲナイドにおいては最高でも $20,000 \text{ cm}^2/\text{Vs}$ 程度である為、高度な量子素子の実現には結晶品質の抜本的な向上やデバイス技術のさらなる進化が必須である。

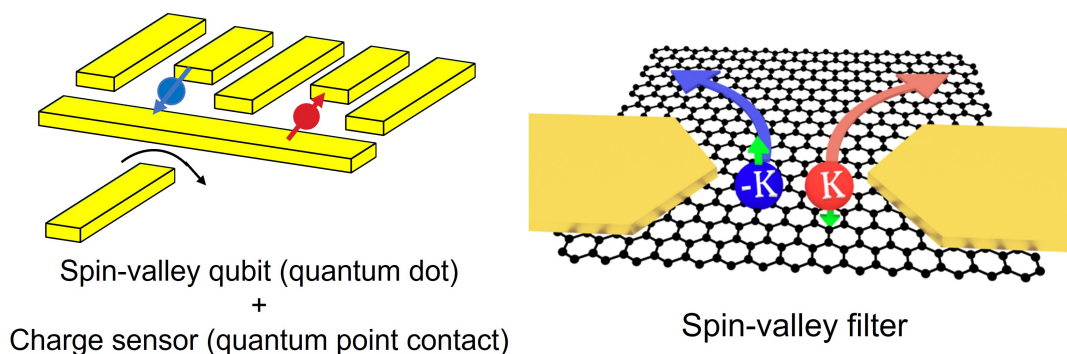


Fig.5.1 スピン-バレー量子ビット及びスピン-バレーフィルター素子の模式図。

参考文献

- [1] K. S. Novoselov et al., *Science* **306**, 666 (2004).
- [2] Y. Zhang, Y.-W. Tan, H. L. Stormer, and P. Kim, *Nature* **438**, 201 (2005).
- [3] C. R. Dean et al., *Nature Nanotechnology* **5**, 722 (2010).
- [4] K. F. Mak, C. Lee, J. Hone, J. Shan, and T. F. Heinz, *Physical Review Letters* **105**, 136805 (2010).
- [5] K. F. Mak, K. He, J. Shan, and T. F. Heinz, *Nature Nanotechnology* **7**, 494 (2012).
- [6] A. Splendiani et al., *Nano Letters* **10**, 1271 (2010).
- [7] Z. E. Youbi et al., *Physical Review B* **103**, 155105 (2021).
- [8] X. Ding et al., *Physical Review Applied* **12**, 064061 (2019).
- [9] A. H. C. Neto, F. Guinea, N. M. R. Peres, K. S. Novoselov, and A. K. Geim, *Reviews of Modern Physics* **81**, 109 (2009).
- [10] A. K. Geim and A. H. MacDonald, *Physics Today* **60**, 35 (2007).
- [11] J. Sichau et al., *Physical Review Letters* **122**, 046403 (2019).
- [12] C. Stampfer et al., *Physical Review Letters* **102**, 056403 (2009).
- [13] M. Y. Han, B. Özyilmaz, Y. Zhang, and P. Kim, *Physical Review Letters* **98**, 206805 (2007).
- [14] C. R. Dean et al., *Nature* **497**, 598 (2013).
- [15] R. Decker et al., *Nano Letters* **11**, 2291 (2011).
- [16] Y. Cao et al., *Nature* **556**, 80 (2018).
- [17] B. Radisavljevic, A. Radenovic, J. Brivio, V. Giacometti, and A. Kis, *Nature Nanotechnology* **6**, 147 (2011).
- [18] Q. H. Wang, K. Kalantar-Zadeh, A. Kis, J. N. Coleman, and M. S. Strano, *Nature Nanotechnology* **7**, 699 (2012).
- [19] O. Lopez-Sanchez, D. Lembke, M. Kayci, A. Radenovic, and A. Kis, *Nature Nanotechnology* **8**, 497 (2013).
- [20] J. Lee, K. F. Mak, and J. Shan, *Nature Nanotechnology* **11**, 421 (2016).
- [21] Z. Wu et al., *Nature Communications* **10**, 611 (2019).

- [22] B. T. Zhou, K. Taguchi, Y. Kawaguchi, Y. Tanaka, and K. T. Law, *Communications Physics* **2**, 26 (2019).
- [23] Y. Liu, P. Stradins, and S.-H. Wei, *Science Advances* **2**, e160006 (2016).
- [24] E.-M. Shih, Ph.D Thesis (2020).
- [25] D. Wickramaratne, L. Weston, and C. G. V. de Walle, *The Journal of Physical Chemistry C* **122**, 25524 (2018).
- [26] L. Wang et al., *Science* **342**, 614 (2013).
- [27] J. Nathawat et al., *ACS Omega* **4**, 4082 (2019).
- [28] A. K. Geim and I. V. Grigorieva, *Van der Waals heterostructures*, 2013.
- [29] P. Ajayan, P. Kim, and K. Banerjee, *Physics Today* **69**, 38 (2016).
- [30] M. Yankowitz et al., *Nature Physics* **8**, 382 (2012).
- [31] Y. Cao et al., *Nature* **556**, 43 (2018).
- [32] C. Jin et al., *Nature Materials* **20**, 940 (2021).
- [33] T. Li et al., *Nature Nanotechnology* **16**, 1068 (2021).
- [34] T. Li et al., *Nature* **597**, 350 (2021).
- [35] L. Zhang et al., *Nature Communications* **11**, 5888 (2020).
- [36] K. Tran et al., *Nature* **567**, 71 (2019).
- [37] L. Wang et al., *Nature Materials* **19**, 861 (2020).
- [38] G. Scuri et al., *Physical Review Letters* **124**, 217403 (2020).
- [39] M. Lundstrom, *Fundamentals of Carrier Transport* (2000).
- [40] W. Walukiewicz, H. E. Ruda, J. Lagowski, and H. C. Gatos, *Physical Review B* **30**, 4571 (1984).
- [41] T. Ihn, *Semiconductor Nanostructures: Quantum States and Electronic Transport* (2010).
- [42] W. Walukiewicz, L. Lagowski, L. Jastrzebski, M. Lichtensteiger, and H. C. Gatos, *Journal of Applied Physics* **50**, 899 (2008).
- [43] W. Walukiewicz, J. Lagowski, L. Jastrzebski, and H. C. Gatos, *Journal of Applied Physics* **50**, 5040 (2008).
- [44] J. Freudenfeld, Ph.D Thesis (2020).
- [45] M. Büttiker, *Physical Review B* **41**, 7906 (1990).
- [46] B. J. Van Wees et al., *Physical Review Letters* **60**, 848 (1988).
- [47] B. J. Van Wees et al., *Physical Review B* **38**, 3625 (1988).
- [48] D. A. Wharam et al., *Journal of Physics C: Solid State Physics* **21**, L209 (1988).
- [49] T. J. Thornton, M. Pepper, H. Ahmed, D. Andrews, and G. J. Davies, *Physical Review Letters* **56**, 1198 (1986).
- [50] J. H. Davies, *The Physics of Low-dimensional Semiconductors* (1997).

-
- [51] R. Pisoni et al., *Nano Letters* **17**, 5008 (2017).
- [52] R. Pisoni et al., *Physical Review Letters* **121**, 247701 (2018).
- [53] R. Pisoni et al., *Physical Review Letters* **123**, 117702 (2019).
- [54] R. Pisoni, Ph.D Thesis (2019).
- [55] R. Ferdous et al., *npj Quantum Information* **4**, 26 (2018).
- [56] Y.-Y. Liu et al., *Physical Review Applied* **16**, 024029 (2021).
- [57] Z. Wu et al., *Nature Communications* **10**, 611 (2019).
- [58] M. Eich et al., *Physical Review X* **8**, 031023 (2018).
- [59] K. F. Mak, K. L. McGill, J. Park, and P. L. McEuen, *Science* **344**, 1489 (2014).
- [60] A. Rycerz, J. Tworzydło, and C. W. Beenakker, *Nature Physics* **3**, 172 (2007).
- [61] D. Xiao, W. Yao, and Q. Niu, *Physical Review Letters* **99**, 236809 (2007).
- [62] S. Bhandari et al., *Nanotechnology* **29**, 42LT03 (2018).
- [63] X. X. Song et al., *Scientific Reports* **5**, 16113 (2015).
- [64] X. X. Song et al., *Nanoscale* **7**, 16867 (2015).
- [65] Y. Hao et al., *Science* **342**, 720 (2013).
- [66] X. Li et al., *Science* **324**, 1312 (2009).
- [67] M. Chen, R. C. Haddon, R. Yan, and E. Bekyarova, *Materials Horizons* **4**, 1054 (2017).
- [68] T. Zhang and L. Fu, *Chem* **4**, 671 (2018).
- [69] Y. Shi, H. Li, and L.-J. Li, *Chemical Society Reviews* **44**, 2744 (2015).
- [70] M. Nakano, Y. Wang, Y. Kashiwabara, H. Matsuoka, and Y. Iwasa, *Nano Letters* **17**, 5595 (2017).
- [71] W. Pacuski et al., *Nano Letters* **20**, 3058 (2020).
- [72] Y. Huang et al., *ACS Nano* **9**, 10612 (2015).
- [73] H. Li et al., *ACS Nano* **7**, 10344 (2013).
- [74] Y. Liu, Z. Liu, W. S. Lew, and Q. J. Wang, *Nanoscale Research Letters* **8**, 335 (2013).
- [75] D. Graf et al., *Nano Letters* **7**, 238 (2007).
- [76] D. Edelberg et al., *Nano Letters* **19**, 4371 (2019).
- [77] S. Toyoda, T. Uwanno, T. Taniguchi, K. Watanabe, and K. Nagashio, *Applied Physics Express* **12**, 055008 (2019).
- [78] K. Kim et al., *Nano Letters* **16**, 1989 (2016).
- [79] M. Ben Shalom et al., *Nature Physics* **12**, 318 (2016).
- [80] M. Eich, Ph.D Thesis (2019).
- [81] Y. Shimazaki et al., *Nature Physics* **11**, 1032 (2015).
- [82] M. Sui et al., *Nature Physics* **11**, 1027 (2015).
- [83] S. Das Sarma, S. Adam, E. H. Hwang, and E. Rossi, *Reviews of Modern Physics* **83**, 407

- (2011).
- [84] H. Lee et al., *Nano Letters* **18**, 5961 (2018).
- [85] A. Epping et al., *physica status solidi (b)* **256**, 1900269 (2019).
- [86] V. Clericò et al., *Scientific Reports* **9**, 13572 (2019).
- [87] Y. Zhang et al., *Nature* **459**, 820 (2009).
- [88] T. Taychatanapat and P. Jarillo-Herrero, *Physical Review Letters* **105**, 166601 (2010).
- [89] H. Overweg et al., *Physical Review Letters* **121**, 257702 (2018).
- [90] H. Overweg et al., *Nano Letters* **18**, 553 (2018).
- [91] L. Banszerus et al., *Physical Review Letters* **124**, 177701 (2020).
- [92] M. Kim et al., *Nature Physics* **12**, 1022 (2016).
- [93] Y. Lee et al., *Physical Review Letters* **124**, 126802 (2020).
- [94] R. Kraft et al., *Physical Review Letters* **121**, 257703 (2018).
- [95] A. M. Goossens et al., *Nano Letters* **12**, 4656 (2012).
- [96] M. T. Allen, J. Martin, and A. Yacoby, *Nature Communications* **3**, 934 (2012).
- [97] A. Knothe and V. Fal'Ko, *Physical Review B* **98**, 155435 (2018).
- [98] K. Sakanashi et al., *Applied Physics Letters* **118**, 263102 (2021).
- [99] C. Gold et al., *Physical Review Letters* **127**, 046801 (2021).
- [100] H. Overweg et al., *Nano Letters* **17**, 2852 (2017).
- [101] A. Varlet et al., *Physical Review Letters* **113**, 116601 (2014).
- [102] K. Zimmermann et al., *Nature Communications* **8**, 14983 (2017).
- [103] C. Déprez et al., *Nature Nanotechnology* **16**, 555 (2021).
- [104] Y. Ronen et al., *Nature Nanotechnology* **16**, 563 (2021).
- [105] D. Terasawa et al., *Journal of the Physical Society of Japan* **90**, 024709 (2021).
- [106] K. J. Thomas et al., *Physical Review Letters* **77**, 135 (1996).
- [107] A. Srinivasan et al., *Physical Review Letters* **118**, 146801 (2017).
- [108] C. Kim et al., *ACS Nano* **11**, 1588 (2017).
- [109] H. Hasegawa and M. Akazawa, *Applied Surface Science* **254**, 8005 (2008).
- [110] V. Heine, *Physical Review* **138**, A1689 (1965).
- [111] W. E. Spicer, I. Lindau, P. Skeath, and C. Y. Su, *Journal of Vacuum Science and Technology* **17**, 1019 (1998).
- [112] H. Hasegawa and H. Ohno, *J. of Vac. Sci. Technol. B* **4**, 1130 (1998).
- [113] Y. Liu et al., *Nature* **557**, 696 (2018).
- [114] Q. Shi et al., *Nature Nanotechnology* **15**, 569 (2020).
- [115] B. Fallahazad et al., *Physical Review Letters* **116**, 086601 (2016).
- [116] H. C. Movva et al., *ACS Nano* **9**, 10402 (2015).

-
- [117] R. Pisoni et al., *Physical Review Letters* **123**, 117702 (2019).
- [118] M. Masseroni et al., *Physical Review Research* **3**, 23047 (2021).
- [119] K. Sakanashi et al., *Nanotechnology* **31**, 205205 (2020).
- [120] J. Zhu et al., *Journal of the American Chemical Society* **139**, 10216 (2017).
- [121] Z. Wang et al., *Nature* **574**, 76 (2019).
- [122] E. J. Telford et al., *Nano Letters* **18**, 1416 (2018).
- [123] Y. Jung et al., *Nature Electronics* **2**, 187 (2019).
- [124] R. Pisoni et al., *Applied Physics Letters* **112**, 123101 (2018).
- [125] P.-C. Shen et al., *Nature* **593**, 211 (2021).
- [126] M. Hamer et al., *Nano Letters* **18**, 3950 (2018).
- [127] X. Cui et al., *Nature Nanotechnology* **10**, 534 (2015).
- [128] Y. Sata et al., *Japanese Journal of Applied Physics* **56**, 04CK09 (2017).
- [129] H. J. Chuang et al., *Nano Letters* **16**, 1896 (2016).
- [130] K. Takeyama et al., *Applied Physics Letters* **117**, 153101 (2020).
- [131] N. Fang, S. Toyoda, T. Taniguchi, K. Watanabe, and K. Nagashio, *Advanced Functional Materials* **29**, 1904465 (2019).
- [132] K. Sakanashi et al., *Nano Letters* **21**, 7534 (2021).
- [133] K. Marinov, A. Avsar, K. Watanabe, T. Taniguchi, and A. Kis, *Nature Communications* **8**, 1938 (2017).
- [134] S. Davari et al., *Physical Review Applied* **13**, 054058 (2020).
- [135] A. Epping et al., *Journal of Physics Condensed Matter* **30**, 205001 (2018).
- [136] D. Xiao, G. B. Liu, W. Feng, X. Xu, and W. Yao, *Physical Review Letters* **108**, 196802 (2012).
- [137] S. M. Frolov et al., *Nature* **458**, 868 (2009).
- [138] M. Kohda, T. Okayasu, and J. Nitta, *Scientific Reports* **9**, 1909 (2019).
- [139] P. Debray et al., *Nature Nanotechnology* **4**, 759 (2009).
- [140] K. Wang et al., *Nature Nanotechnology* **13**, 128 (2018).
- [141] C. Xu et al., *Nano Letters* **19**, 5373 (2019).
- [142] K. Tran et al., *Nature* **567**, 71 (2019).
- [143] A. Kormányos, V. Zólyomi, N. D. Drummond, and G. Burkard, *Physical Review X* **4**, 011034 (2014).
- [144] R. Akis and D. K. Ferry, *Journal of Physics: Condensed Matter* **20**, 164201 (2008).
- [145] H. C. Movva et al., *Physical Review Letters* **120**, 107703 (2018).
- [146] X. Dai, W. Li, T. Wang, X. Wang, and C. Zhai, *Journal of Applied Physics* **117**, 084310 (2015).

-
- [147] H. Yuan et al., *Nature Physics* **9**, 563 (2013).
- [148] Q. Shi et al., arXiv:2108.10477 (2021).
- [149] C. Rössler et al., *New Journal of Physics* **13**, 113006 (2011).
- [150] A. Kristensen et al., *Phys. Rev. B* **62**, 10950 (2000).
- [151] N. K. Patel et al., *Phys. Rev. B* **44**, 13549 (1991).
- [152] S. Sarkozy et al., *Physical Review B* **79**, 161307 (2009).
- [153] T. M. Liu, B. Hemingway, A. Kogan, S. Herbert, and M. Melloch, *Physical Review B* **84**, 075320 (2011).
- [154] Y. Komijani et al., *Physical Review B* **87**, 245406 (2013).
- [155] L. P. Rokhinson, L. N. Pfeiffer, and K. W. West, *Physical Review Letters* **96**, 156602 (2006).
- [156] K. E. J. Goh et al., *Advanced Quantum Technologies* **3**, 1900123 (2020).
- [157] D. Xiao, M.-C. Chang, and Q. Niu, *Reviews of Modern Physics* **82**, 1959 (2010).
- [158] J. Nakamura et al., *Nature Physics* **15**, 563 (2019).
- [159] J. Nakamura, S. Liang, G. C. Gardner, and M. J. Manfra, *Nature Physics* **16**, 931 (2020).

業績一覽

Peer-reviewed paper

1. Kohei Sakanashi, Manfred Sigrist, and Wei Chen, Theory of in-plane current induced spin torque in metal/ferromagnet bilayers, *Journal of Physics: Condensed Matter* **30**, 205803 (2018).
2. Jubin Nathawat, Miao Zhao, Chun-Pui Kwan, Shenchu Yin, Nargess Arabchigavkani, Michael Randle, Harihara Ramamoorthy, Guanchen He, Ratchanok Somphonsane, Naoki Matsumoto, Kohei Sakanashi, Michio Kida, Nobuyuki Aoki, Zhi Jin, Yunseob Kim, Gil-Ho Kim, Kenji Watanabe, Takashi Taniguchi, and Jonathan P. Bird, Transient Response of h-BN-Encapsulated Graphene Transistors: Signatures of Self-Heating and Hot-Carrier Trapping, *ACS Omega* **4**, 4082-4090 (2019).
3. Kohei Sakanashi, Hidemitsu Ouchi, Kota Kamiya, Peter Krüger, Katsuhiko Miyamoto, Takashige Omatsu, Keiji Ueno, Kenji Watanabe, Takashi Taniguchi, Jonathan P Bird, and Nobuyuki Aoki, Investigation of laser-induced-metal phase of MoTe₂ and its contact property via scanning gate microscopy, *Nanotechnology* **30**, 205205 (2020).
4. N. Arabchigavkani, R. Somphonsane, H. Ramamoorthy, G. He, J. Nathawat, S. Yin, B. Barut, K. He, M. D. Randle, R. Dixit, K. Sakanashi, N. Aoki, K. Zhang, L. Wang, W.-N. Mei, P. A. Dowben, J. Fransson, and J. P. Bird, Remote Mesoscopic Signatures of Induced Magnetic Texture in Graphene, *Phys. Rev. Lett.* **126**, 086802 (2021).
5. Yuto Kajino, Kohei Sakanashi, Nobuyuki Aoki, Kenji Watanabe, Takashi Taniguchi, Kenichi Oto, and Yasuhiro Yamada, Quantized exciton-exciton annihilation in monolayer WS₂ on SrTiO₃ substrate with atomically flat terraces, *Phys. Rev. B* **103**, L241410 (2021).
6. Kohei Sakanashi, Naoto Wada, Kentaro Murase, Kenichi Oto, Gil-Ho Kim, Kenji Watanabe, Takashi Taniguchi, Jonathan P Bird, David K Ferry, and Nobuyuki Aoki, Valley polarized conductance quantization in bilayer graphene narrow quantum point contact, *Applied Physics Letter* **118**, 263102 (2021). Editors Pick.
7. Kohei Sakanashi, Peter Krüger, Kenji Watanabe, Takashi Taniguchi, Gil-Ho Kim, David

- K Ferry, Jonathan P Bird, and Nobuyuki Aoki, Signature of spin-resolved quantum point contact in p-type trilayer WSe₂ van der Waals heterostructure, *Nano Letters*, **21**, 7534-7541 (2021).
8. Kohei Sakanashi, Naoto Wada, Kenji Watanabe, Takashi Taniguchi, Gil-Ho Kim, David K. Ferry, Jonathan P. Bird, Liang Huang, and Nobuyuki Aoki, Realization of open quantum dot in encapsulated graphene, in preparation.
 9. Jubin Nathawat, Kohei Sakanashi, Ishiaka Mansaray, Naoto Wada, Michael D. Randle, Shenchu Yin, Keke He, Nargess Arabchigavkani, Ripudaman Dixit, Bilal Barut, Miao Zhao, Harihara Ramamoorthy, Ratchanok Somphonsane, Gil-Ho Kim, Kenji Watanabe, Takashi Taniguchi, Nobuyuki Aoki, Jong E. Han, and Jonathan P. Bird, Reentrant Metallic and Semiconducting States in the Moire Bands of Graphene/h-BN Heterostructures, submitted to Nature Communications

International conferences

First author only.

Oral presentations

1. Kohei Sakanashi, H. Ouchi, K. Kamiya, T. Yamanaka, T. Omatsu, K. Ueno, J. P. Bird and N. Aoki, Evaluation of contact properties for semiconducting 2H phase of MoTe₂ via scanning gate microscopy, 9th Graphene and 2D Materials Symposium, Peking University, 15 - 20 July, 2018.
2. Kohei Sakanashi, N. Wada, J. P. Bird, G-H. Kim, K. Watanabe, T. Taniguchi, and N. Aoki, Quantum transport phenomena in encapsulated graphene, International Symposium on Spectro-Microscopy of Functional Materials and Interfaces, Chiba, Japan, 28 October, 2019.
3. Kohei Sakanashi, Naoto Wada, Kenji Watanabe, Takashi Taniguchi, Gil-Ho Kim, David K. Ferry, Jonathan P. Bird, Liang Huang, and Nobuyuki Aoki: Open quantum dot in encapsulated graphene, C42.00013, APS March Meeting, Online, March 15 - 19, 2021.
4. Kohei Sakanashi, Peter Krueger, Johnathan P. Bird, Kenji Watanabe, Takashi Taniguchi, Gil-Ho Kim, and Nobuyuki Aoki, Realization of Quantum Point Contact in Few-Layer p-type WSe₂, Compound Semiconductor Week (CSW) 2021, online, May 9 – 13, 2021.

Poster presentations

1. Kohei Sakanashi, Kota Kamiya, Hidemitsu Ouchi, Tomoki Yamanaka, Peter Krueger, Katsuhiko Miyamoto, Takashige Omatsu, Jonathan Bird, Nobuyuki Aoki, "Electronic Properties of Laser-Patterned 2H/1T' in Exfoliated Multilayer MoTe₂", PWe14, International School and Symposium on Nanoscale Transport and phoTonics(ISNTT2017), NTT Atsugi R&D center, November 13 - 17 (2017).
2. Kohei Sakanashi, Naoto Wada, Kentaro Murase, Younsup Kim, Gil-ho Kim, Jonathan P. Bird, Kenji Watanabe, Takashi Taniguchi, Nobuyuki Aoki: Electrostatically Confined Quantum Structures in Bilayer Graphene, The 21st International Conference on Electron Dynamics in Semiconductors (EDISON21), TuO-33, Nara, Japan, from July 14 – 19, 2019.
3. Kohei Sakanashi, Naoto Wada, Yukichi Kamita, Ryo Fukushima, Gil-Ho Kim, Jonathan P. Bird, Kenji Watanabe, Takashi Taniguchi and Nobuyuki Aoki: Electrostatically Confined Quantum Structures in Bilayer Graphene, The 11th Annual Recent Progress in Graphene and Two-dimensional Materials Research Conference (RPGR2019), 9p-8, Matsue, Shimane, from Oct. 6 - 10, 2019.
4. Kohei Sakanashi, Peter Krueger, Jonathan Bird, David Ferry, Kenji Watanabe, Takashi Taniguchi, Gil-Ho Kim, and Nobuyuki Aoki, D183: Spin-resolved quantum point contact in p-type trilayer tungsten diselenide van der Waals heterostructure, International Conference on the Science and Application of Nanotubes and Low-Dimensional Materials (NT21), online, June 6 - 11, 2021.
5. Kohei Sakanashi, Peter Krueger, Jonathan Bird, David Ferry, Kenji Watanabe, Takashi Taniguchi, Gil-Ho Kim, and Nobuyuki Aoki, Fully spin-resolved quantum point contact in trilayer WSe₂ van der Waals heterostructure, P-TS3-0275, The 12th Recent Progress in Graphene and Two-dimensional Materials Research Conference (RPGR2021), Seoul, South Korea, from Oct.10 - 14, 2021.
6. Kohei Sakanashi, Peter Krueger, Jonathan Bird, David Ferry, Kenji Watanabe, Takashi Taniguchi, Gil-Ho Kim, and Nobuyuki Aoki, Fully spin-resolved quantum point contact in trilayer WSe₂ van der Waals heterostructure, E-PS-2-16, EP2DS-24/MSS-20, Toyama, Japan, Oct. 31 - Nov. 5, 2021.

Internal conferences

筆頭著者のみ

Oral presentations

1. 坂梨昂平, 神谷航太, 大内秀益, 山中智貴, 宮本克彦, 尾松孝茂, ジョナサン P. バード, 青木伸之: MoTe_2 の 2H 半導体相に対する接触特性の走査ゲート顕微法を用いた評価, 第 65 回応用物理学会春季学術講演会, 19a-C202-3, p.146, 早稲田大学, 東京都, 3 月 17 日～3 月 20 日, 2018.
2. 坂梨昂平, 村瀬健太郎, 和田直人, G.-H. Kim, 渡邊賢司, 谷口尚, J.P. Bird, 青木伸之: 高移動度 2 層グラフェンに対する電界閉じ込めによる量子構造の形成, 日本物理学会 2019 秋季大会, 13pD15-6, p.126, 岐阜大学, 岐阜県, 9 月 17 日～9 月 13 日, 2019.
3. 坂梨昂平, 和田直人, キム ギルホ, バード ジョナサン, フェリー デイビッド, 渡邊賢司, 谷口尚, 青木伸之: 単層グラフェンにおける開放系量子ドットの輸送特性, 第 81 回応用物理学会秋期学術講演会, 10a-Z28-3, オンライン開催, 9 月 8 日～11 日, 2020 年.
4. 坂梨昂平, クリュエーガー ピーター, バード ジョナサン, 渡邊賢司, 谷口尚, キム ギルホ, 青木伸之: p 型 WSe_2 における量子ポイントコンタクトの実現, 2021 年第 68 回応用物理学会春季学術講演会, 18p-Z31-5, オンライン開催, 3 月 16 日～19 日, 2021 年.

Poster presentations

1. 坂梨昂平, 和田直人, バード ジョナサン, キム ギルホ, 渡邊賢司, 谷口尚, 青木伸之: 二層グラフェンにおける電界閉じ込めによる電子波ダイナミクスの観測, 第 66 回応用物理学会春季学術講演会, 10p-PA8-23, 東京工業大学, 東京都, 3 月 9 日～3 月 12 日, 2019.
2. 坂梨昂平, 和田直人, バード ジョナサン, 渡邊賢司, 谷口尚, キム ギルホ, 青木伸之: 二層グラフェンにおける電界閉じ込めによる量子構造の実現, 2019 年第 80 回応用物理学会秋季学術講演会, 18p-E308-1, 北海道大学, 9 月 18 日～9 月 21 日, 2019.