

# 量子コンピュータ実現を目指したグラフェン量子ドットの電気伝導特性の解明

日本大学工学部電気電子工学科  
羽田野 剛司

## 1. はじめに

グラフェンは、炭素原子の六員環からなる 2 次元の結晶である。2004 年にグラフェン 1 層が実現し[1]、その電気特性が明らかになるまでは、2 次元の結晶は理論的な研究対象でしかなかった。このグラフェンの 1 層の実現以来、多くの 2 次元結晶において、その特性の解明が行われてきた。その中心を担った物質はグラフェンであり、現在も積極的に研究が進められている。層数に依存したグラフェンの材料特性、また長周期構造であるモアレ構造[2]など、グラフェン特有の電気伝導特性が解明されている。このグラフェンの電気伝導特性を利用した新しい電子デバイスの作製も盛んに行われている。特に、これまでの電子デバイスとは異なり、電子の磁氣的性質である電子スピン、またグラフェンの特徴である結晶角運動量の自由度であるバレーなどを用いた新しい電子デバイスであるスピントロニクス、バレートロニクスに注目が集まっている。特に、電子スピンを用いた量子コンピュータの実現に向けたグラフェンの研究が注目されている。

電子スピンを用いた量子コンピュータにおいては、電子スピンのコヒーレンス時間が長いことが有用である。このコヒーレンス時間を短くする原因の 1 つは、核スピンと電子スピンの相互作用である。炭素の同位体存在比は、核スピンのない  $^{12}\text{C}$  が約 99%であり、グラフェンにおいては、核スピンと電子スピンの相互作用がほとんどない。また、スピン軌道相互作用もコヒーレンス時間を短くする原因であるが、グラフェンにおいてはこのスピン軌道相互作用も小さい。そのため、グラフェンは、電子スピンを用いた量子コンピュータを作製する上で非常に有用な物質である。

グラフェンを量子コンピュータに応用するためには、グラフェンを電子デバイスの 1 つである量子ドットに加工する必要がある。量子ドットを実現するためには、グラフェンを周りの不純物から守るため、六方晶窒化ホウ素(hBN)で挟んだヘテロ構造を作製し[3]、このヘテロ構造を用いて  $1\mu\text{m}$  以下の構造を形成し、さらに電極をつなげるなどの微細加工を行う必要がある。我々は、グラフェンを用いたヘテロ構造を物理的に微細加工して量子ドットを作製した。しかし、この手法で作製した量子ドットにおいては、加工した量子ドット端にできた結晶欠陥により生じる意図しない電子トラップが電気伝導特性に影響を与える[4]。そのため、スピントロニクス及びバレートロニクスへの量子ドットの応用が困難であった。このような結晶欠陥の影響を避けるため、我々は物理的にグラフェンを量子ドットに加工せず、電気的に量子ドットを形成する方法で量子ドットの作製を行う。そのため、まず量子ドットを実現する前段階である量子細線構造を実現する必要がある。本研究の最終的な目的は、グラフェン量子ドットの実現である。この最終的な目的のため、本研究においては、グラフェン、hBN によるヘテロ構造を用いて量子細線を実現し、その電気伝導特性を明らかにすることである。

## 2. hBN/2 層グラフェン/hBN/グラファイトヘテロ構造の作製

1 層グラフェンはバンドギャップを持たないため、デバイス作製には不適である。また、5 層以上の場合バックゲート電圧が遮蔽されるため、バックゲート電圧による電流の制御ができない。したがって、2~4 層のグラフェンがデバイス作製に有用である。そのため、本研究においては、2 層グラフェンを用いる。また、グラフェン 1 層は炭素原子 1 個分の厚さであるため、グラフェンは、シリコン基板表面を熱酸化した  $\text{SiO}_2$  上に直接転写する。しかし、これまでの研究において、グラフェンを  $\text{SiO}_2$  上に転写すると、 $\text{SiO}_2$  の未結合手の影響でグラフェンの電子移動度が低下することがわかっている。この問題を解決するためには、六方晶窒化ホウ素(hBN)を保護膜として用いることが有効であり、グラフェン本来の電子移動度を生かすことができる[3]。しかし、hBN は厚さが薄いと、割れやすくデバイスの作製が困難になり、厚さが厚いとバックゲートに印加する電圧が大きくなる。そのため、30~50nm 程度の厚さの hBN がデバイス作製に有用である。また、グラフェンに一樣にバックゲート電圧を印加し量子ドットを実現するため、hBN/グラフェン/hBN をグラファイト上に転写する必要がある。

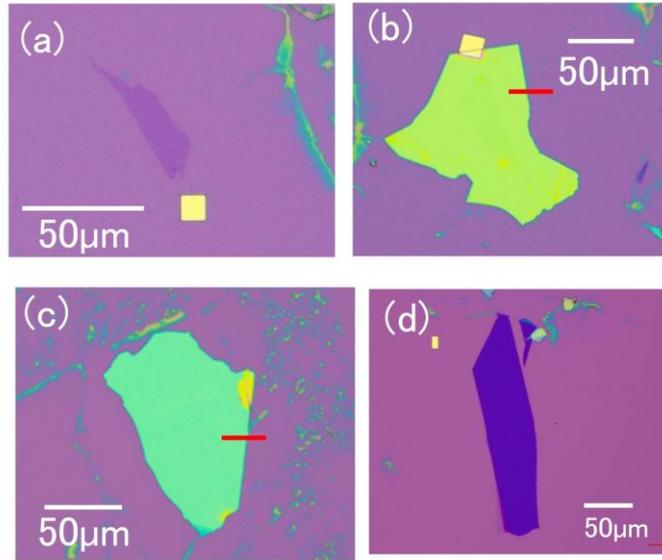


図 1(a)グラフェン(b),(c)hBN (d)グラファイトの光学顕微鏡画像

我々は、機械的剥離法を用いてグラフェン、2 つの hBN 及びグラファイトを  $\text{SiO}_2$  上に転写した。図 1(a)~(d)に、 $\text{SiO}_2$  上に転写したグラフェン、2 つの hBN 及びグラファイトの光学顕微鏡画像をそれぞれ示す。これらの薄膜の層数および厚さを確認するため、グラフェンはラマン分光測定を、hBN 及びグラファイトは原子間力顕微鏡(AFM)測定を行った。

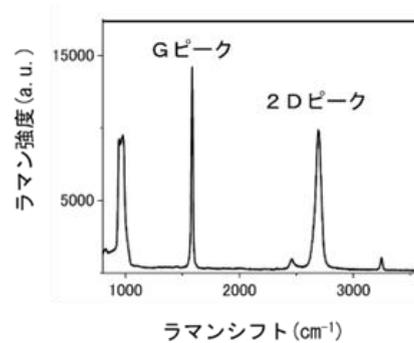


図 2 グラフェンのラマンスペクトル

図 2 にグラフェンのラマン分光測定を示す。図のように、グラフェンのラマン分光においては 2 つの特徴的なピークが現れる。1 つはグラフェンの  $\text{sp}^2$  混成軌道に起因する G ピークであり、もう 1 つはバンド内でのフォノンの 2 重共鳴散乱に起因する 2D ピークである。G ピークは  $1570\text{cm}^{-1}$  付近、2D ピークは  $2700\text{cm}^{-1}$  付近に現れる。2D

表 1 各ローレンツ関数のピーク位置

ローレンツ関数ピーク	$L_1$	$L_2$	$L_3$	$L_4$
先行研究理論値( $\text{cm}^{-1}$ )	-44	-11	11	41
先行研究実験値( $\text{cm}^{-1}$ )	-44	-10	10	25
実験値( $\text{cm}^{-1}$ )	-47	-10	10	26

図 2 にグラフェンのラマン分光測定を示す。図のように、グラフェンのラマン分光においては 2 つの特徴的なピークが現れる。1 つはグラフェンの  $\text{sp}^2$  混成軌道に起因する G ピークであり、もう 1 つはバンド内でのフォノンの 2 重共鳴散乱に起因する 2D ピークである。G ピークは  $1570\text{cm}^{-1}$  付近、2D ピークは  $2700\text{cm}^{-1}$  付近に現れる。2D

ピーク形状は層数に対する依存性を持つため、2D ピークに対してローレンツ関数を用いてフィッティングを行うことにより、ピークの位置から 2 層グラフェンを識別できる[5]。図 3 に、図 1(a)のグラフェンのラマン分光測定における 2D ピークに対するローレンツフィッティング結果を示す。ここで、グラフェンのラマンスペクトルは黒線、1~4 のローレンツピークを赤線、緑線、青線、水色線、4 つのローレンツピークを用いたフィッティングを紫線で表す。また、1~4 のローレンツピークのピークの位置をそれぞれ  $L1 \sim L4$  で表す。図 3 において、我々が測定したローレンツピークから 2 層グラフェンを識別する方法を以下に示す。

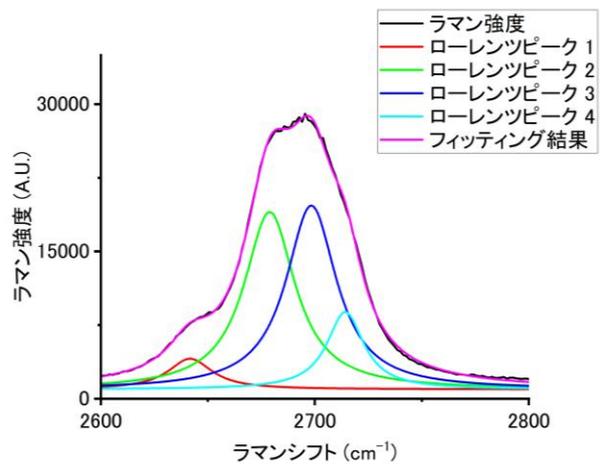


図 3 グラフェンのフィッティング結果

- ① ローレンツピーク  $L2$ ,  $L3$  のピークの位置の平均値  $x$  を求める。
- ②  $x$  から各ローレンツピーク位置の差を求め、理論値と比較する。

表 1 に、先行研究[5]で求められた理論値、測定値、また我々のピークフィッティングの結果から求めた測定値を示す。表 1 より各ローレンツピークと  $x$  の差は先行研究と一致している。したがって、図 1(a)のグラフェンは 2 層と識別できる。

次に、AFM を用いて図 1(b), (c)の hBN の厚さ測定を行った。図の赤色の実線に沿って測定を行った。図 3(a), (b)に hBN の厚さの測定結果を示す。この結果より図 1(b)の hBN の厚さは約 50nm、図 1(c)の hBN の厚さは約 30nm であることがわかる。また、図 1(d)のグラ

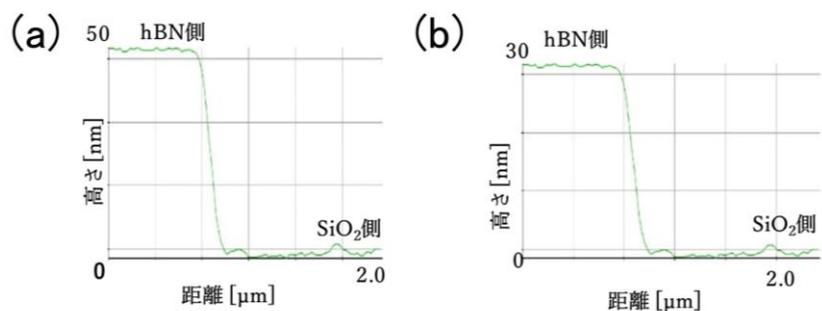


図 4 (a)図 1(b)の hBN の AFM 測定結果 (b)図 1(c)の hBN の AFM 測定結果

ファイトについても AFM で測定を行い、厚さが約 4nm であることを確認した。

図 1 で示した 4 枚の薄膜を用いてヘテロ構造作製を行った。この作製には、スタンパー装置とスタンプを用いた全乾式転写法

を利用する[6]。全乾式転写法においては、図 5(a)の概略図の薄膜を持ち上げるピックアップと、(b)の概略図の持ち上げた薄膜を他の薄膜に重ねるドロップダウンの 2 つの動作を繰り返すことにより hBN/グラフェン/hBN/グラファイト・ヘテロ構造の作製を行うこと

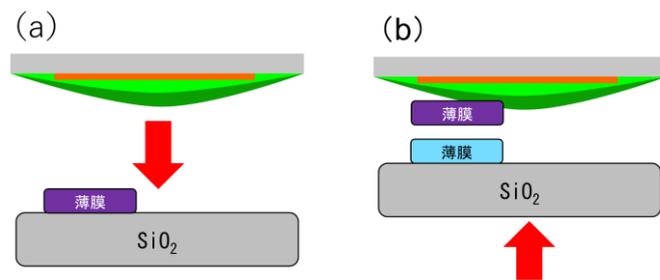


図 5(a)ピックアップ (b)ドロップダウンの概略図

ができる。図 6(a)に、量子ドット(もしくは量子細線)を形成する hBN/グラフェン/hBN/グラファイト・ヘテロ構造の概略断面図を示す。図のように、バックゲートとして利用するグラファイト上に、2つの hBN に挟まれたグラフェンが積層された構造になっている。

図 6(b)に作製した hBN/グラフェン/hBN/グラファイト・ヘテロ構造の光学顕微鏡写真を示す。図において、グラフェンは、2つの hBN に挟まれたため、明瞭に位置が確認しづらい。しかし、光学顕微鏡の調整を行うことにより、我々はグラフェンの位置を確認し、図 6(a)の積層構造が実現していることを確認している。このヘテロ構造を用いて、量子細線を作製することが可能である。

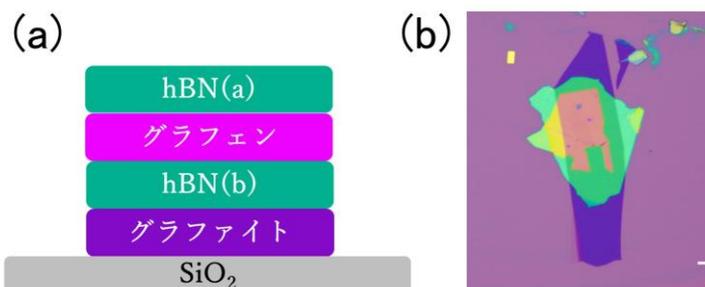


図 6 hBN/グラフェン/hBN/グラファイトヘテロ構造の (a)概略断面図(b)光学顕微鏡写真

### 3. グラフェン量子細線の作製

図 6(b)の hBN/グラフェン/hBN/グラファイト・ヘテロ構造を用いて量子細線を作製した。図 7 に量子細線の概略図を示す。図のように、量子細線とは、スプリットゲートによって実現する電子の波長程度(約 100nm)の幅  $W$  を持つ電気伝導可能な 1 次元構造の電子デバイスである。量子力学においては、電子は粒子と波の 2 つの特性を有する。そのため、測定温度が絶対零度付近、試料サイズが  $1\mu\text{m}$  以下の領域においては、電子は波の特性(電子波)を示す。そのため、量子細線においては、電気伝導できる電子波の波長  $\lambda$  と量子細線の幅  $W$  の間には、次の関係が成り立つ。

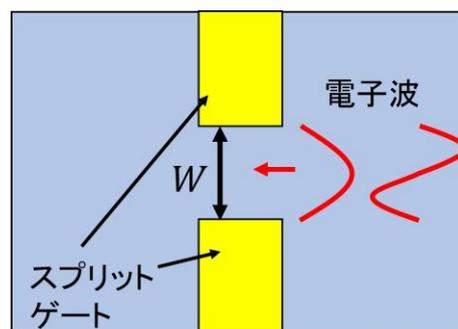


図 7 量子細線の概略図

$$W = \frac{\lambda}{2} \times n \quad (n = 1, 2, \dots)$$

この関係式が成り立つため、量子細線のコンダクタンス  $G$  は、

$$G = \frac{2e^2}{h} \times n$$

と量子化した値となる。ここで、 $e$  は電子の電荷、 $h$  はプランク定数である。

我々は、量子細線構造を、CAD を用いて設計した。その設計図を図 8 に示す。最初に、ヘテロ構造の光学顕微鏡写真をもとにして、hBN/グラフェン/hBN/グラファイト・ヘテロ構造がある場所を特定し、CAD における基板の位置に正しく、ヘテロ構造の光学顕微鏡写真を張り付けた。その後、ヘテロ構造の位置に、グラフェンとのコンタクトするためのソースおよびド

レイン電極、量子細線を実現するための100nmの幅を持つスプリットゲート、量子細線とソースおよびドレイン電極間の結合を制御するゲートを設計した。

この量子細線パターンを用いて、微細加工を行った。最初に、高速短時間アニールを行い、ヘテロ構造の安定化を行った。その後、グラフェンとのオーミックコンタクトを取るため、上部hBNにコンタクトホールを作製後、クロム及び金を蒸着することによりグラフェンとのコンタクトを作製した。次に、量子細線と外部測定回路をつなぐためのボンディングパッドを、チタンと金の蒸着により作製した。最後に、ソースおよびドレイン電極、スプリットゲート、量子細線とソースおよびドレイン電極間の結合を制御するゲートを、チタンと金の蒸着により作製した。図9に、作製した量子細線の電子顕微鏡(SEM)写真を示す。図のように、ソースおよびドレイン電極だけでなく、スプリットゲートが形成されていることがわかる。スプリットゲート間の距離は約100nmであり、量子細線が実現していることがわかる。今後、この量子細線の電気伝導特性を測定し、量子細線が電氣的に実現しているかどうかを確認する予定である。

#### 4. まとめ

本研究では、グラフェン量子ドット作製を目指して、量子細線の作製を行った。量子細線作製のため、2層グラフェン、グラフェンを挟む2枚のhBN、バックゲートのためのグラファイトを機械的剥離法により作製した。グラフェンは層数により電気特性が異なるため、量子ドット作製に最適な2層グラフェンであることを、ラマン分光により確認した。また、2枚のhBN及びグラファイトもそれぞれ最適な厚さであることを、原子間力顕微鏡で確認した。その後、この4つの薄膜を用いて全乾式転写法により、hBN/2層グラフェン/hBN/グラファイト・ヘテロ構造を作製した。このヘテロ構造に対して、CADで量子細線構造を設計した。その後、このCADのパターンを用いて微細加工を行い、量子細線を作製した。今後は、この量子細線の電気伝導特性を測定し、グラフェン量子細線の特性を解明する。さらに、グラフェン量子細線を用いて量子ドットの作製を行う予定である。

#### 謝辞

本研究を遂行するにあたり、物質材料研究機構(NIMS)の谷口尚博士、渡邊賢司博士、岩崎拓哉博士、日本大学工学部の沼田靖教授から多大なご支援を頂きました。また、本研究(の一部)

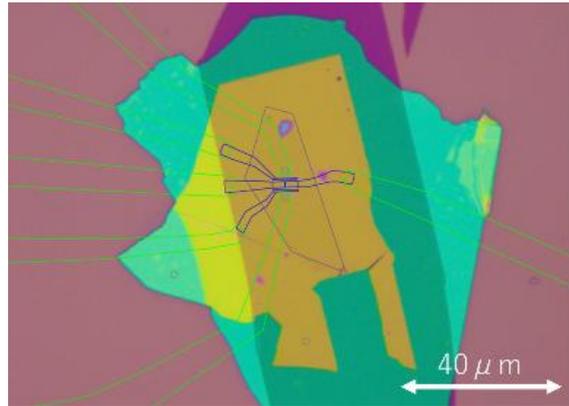


図8 量子細線構造のCADパターン

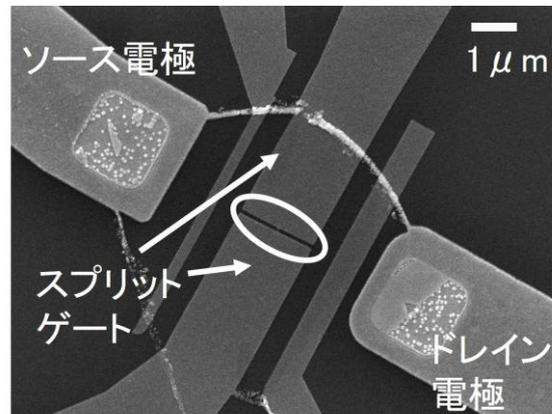


図9 量子細線の電子顕微鏡(SEM)写真

は、文部科学省「マテリアル先端リサーチインフラ」事業（課題番号 JPMXP1224NM0081）の支援を受けました。ここに記して謝意を示します。

#### 参考文献

- [1] K. S. Novoselov, A. K. Geim, S. V. Morozov, D. Jiang, Y. Zhang, S. V. Dubonos, I. V. Grigorieva, A. A. Firsov, “Electric Field Effect in Atomically Thin Carbon Films”, *Science* **306**, 666 (2004).
- [2] Y. Cao, V. Fatemi, S. Fang, K. Watanabe, T. Taniguchi, E. Kaxiras, and P. Jarillo-Herrero, “Unconventional superconductivity in magic-angle graphene superlattices”, *Nature* **556**, 43 (2018).
- [3] C. R. Dean, A. F. Young, I. Meric, C. Lee, L. Wang, S. Sorgenfrei, K. Watanabe, T. Taniguchi, P. Kim, K. L. Shepard, and J. Hone, “Boron nitride substrates for high-quality graphene electronics”, *Nature Nanotechnology* **5**, 722 (2010).
- [4] T. Iwasaki, T. Kato, H. Ito, K. Watanabe, T. Taniguchi, Y. Wakayama, T. Hatano, and S. Moriyama, “Fabrication and characterization of quantum dot devices based on tetralayer graphene/hexagonal boron nitride heterostructures”, *Japanese Journal of Applied Physics* **59**, 024001 (2020).
- [5] A.C. Ferrari, J.C. Meyer, V. Scardaci, C. Casiraghi, M. Lazzeri, F. Mauri, S. Piscanec, D. Jiang, K.S. Novoselov, S. Roth, and A.K. Geim, “Raman Spectrum of Graphene and Graphene Layers”, *Physical Review Letters* **97**, 187401 (2006).
- [6] T. Iwasaki, K. Endo, E. Watanabe, D. Tsuya, Y. Morita, S. Nakaharai, Y. Noguchi, Y. Wakayama, K. Watanabe, T. Taniguchi, and S. Moriyama, “Bubble-Free Transfer Technique for High-Quality Graphene/Hexagonal Boron Nitride van der Waals Heterostructures”, *ACS Applied Materials & Interfaces* **12**, 8533 (2020).