

一般セッション(口頭講演) | 17 ナノカーボン・二次元材料：17.2 グラフェン

■ 2023年9月20日(水) 9:15 ~ 11:30 | 会 A306 (熊本城ホール)

■ [20a-A306-1~8] 17.2 グラフェン

山田 貴壽(産総研)

9:15 ~ 9:30

[20a-A306-1] SiCバッファ層上への転写グラフェンの構造及びラマン特性

○(M2)田嶋 哲平¹、今村 均¹、ビシコフスキー アントン¹、田中 悟¹ (1.九大院工)

9:30 ~ 9:45

[20a-A306-2] ナノインデンテーション法を用いた1次元周期歪みグラフェンの作製

○吉武 一彦¹、ビシコフスキー アントン¹、田中 悟¹ (1.九大院工)

9:45 ~ 10:00

[20a-A306-3] 微傾斜SiC(0001)上の転写グラフェンの歪み状態

○奥田 葉央¹、ビシコフスキー アントン¹、増野谷 拓実²、近藤 さらな²、神田 晶申²、田中 悟¹ (1.九大院工、2.筑波大数)

10:00 ~ 10:15

[20a-A306-4] グラフェンのひずみ可変デバイスの作製

○増野谷 拓実¹、近藤 さらな¹、友利 ひかり¹、林 正彦²、神田 晶申¹ (1.筑波大数理物質、2.秋田大教育文化)

10:30 ~ 10:45

[20a-A306-5] 湾曲したグラフェンカンチレバーの磁場印加により誘起される電流分布

○(M2)前淵 一徳¹、盛谷 浩右¹、乾 徳夫¹ (1.兵庫県大工)

10:45 ~ 11:00

[20a-A306-6] Large-angleツイスト二層グラフェンの量子ホール効果

○辻 悠基¹、瀬尾 優太¹、守谷 頼¹、増淵 寛¹、渡邊 賢司²、谷口 尚²、町田 友樹¹ (1.東大生研、2.物材機構)

11:00 ~ 11:15

[20a-A306-7] 乱層積層グラフェンの可視～中赤外域での光吸収に対するフェルミ準位制御の影響

○水野 琢央¹、池田 匠吾¹、菊堂 裕己¹、井ノ上 泰輝¹、仁科 勇太²、小林 慶裕¹ (1.阪大院工、2.岡山大)

◆ 英語発表

11:15 ~ 11:30

[20a-A306-8] Geometric structure of graphene thin films under an external electric field

○(D)Nadia Sultana¹, Yanlin Gao¹, Mina Maruyama¹, Susumu Okada¹ (1.Univ. Tsukuba)

SiC バッファ層上への転写グラフェンの構造及びラマン特性

Structure and Raman properties of transferred graphene onto SiC buffer layers

九大院工

○(M2)田嶋 哲平, 今村 均, ビシコフスキー アントン, 田中 悟

Kyushu Univ.

T. Tashima, H. Imamura, A. Visikovskiy, S. Tanaka

E-mail: stanaka@nucl.kyushu-u.ac.jp

SiC(0001)上にグラフェンがエピタキシャル成長する際は、まず $(6\sqrt{3} \times 6\sqrt{3})R30^\circ$ 構造のバッファ層（以下 6R3 バッファ層）が形成する。その後、SiC との界面に新たな 6R3 バッファ層が成長することで、6R3 バッファ層がグラフェン化する。SiC(0001)上のエピタキシャルグラフェンは、6R3 バッファ層によるフォノン散によって、電子移動度の低下や内在的なドーピングが報告されている。一方で、ツイスト二層グラフェン（TBG）では、構造緩和によりナノメートルオーダーで局所歪みが生じ、その結果擬磁場が誘起されることが理論的に示唆されている⁽¹⁾。更に、6R3 バッファ層上の上層と下層の非等価なドーピングと構造緩和により、バンド変調が起こることが今村らにより報告されている⁽²⁾。6R3 バッファ層はグラフェンと類似なハニカム構造を有することから、6R3 バッファ層上に単層グラフェンをツイスト転写することで、構造緩和や擬磁電場が発生し、グラフェンの物性が変化する可能性がある。本研究では、6R3 バッファ層上にグラフェンをツイスト転写し、構造及びラマン特性の変化を評価した。

まず、4H-SiC(0001)面を水素エッチングにより、原子レベルでの平坦化を行った。その後、CVD 法を用いて 6R3 バッファ層が成長した基板を作製した。また、同じ CVD 法で成長した 6R3 バッファ層を水素インターカレーションすることによって単層グラフェンを得た。この単層グラフェンを 6R3 バッファ層上へ真空中で転写した。LEED 測定により、グラフェンが 6R3 バッファ層に対して約 4° でツイスト転写されていることが確認できた。更に超高真空中でアニールを行うことでグラフェンの 2D ピークの位置が 2689cm^{-1} から 2726cm^{-1} にレッドシフトし、半値幅が 56cm^{-1} から 91cm^{-1} 増加していることが確認できた。これは、転写直後はフリースタANDINGに近い状態であったが、アニール後は層間の密着性が増し、6R3 バッファ層の影響を受けやすくなったためと考えられる。より詳細なラマン特性や構造の変化は当日報告する。

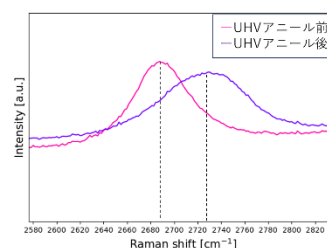


図1 UHV アニール前後の 2D ピーク比較

Ref.

[1] N. N. T. Nam and M. Koshino, Phys. Rev. B **96**, 075311 (2017).

[2] 第 82 回応用物理学会秋季学術講演会 10p-N306-2

ナノインデンテーション法を用いた 1 次元周期歪みグラフェンの作製

1D periodically strained graphene fabricated by nano-indentation method

九大院工

○(M2)吉武 一彦, アントン ビシコフスキー, 田中 悟

Kyushu Univ.,

K. Yoshitake, A. Visikovskiy, S. Tanaka

E-mail: stanaka@nucl.kyushu-u.ac.jp

グラフェンは、格子歪みによってベクトルポテンシャルが生じ、擬磁場が誘起されることにより電子状態が変化することが示されている^[1]。また、銅上に形成された 1 次元リップルグラフェン(RG)において無磁場でランダウ量子化が確認されており^[2]、周期擬磁場によって従来と異なる量子化が起こることが示されている。しかし、ナノスケールの 1 次元 RG の周期や歪み量を実験的に制御することは難しい。本研究では、RG の周期を構造的に制御し、歪み量および擬磁場との相関を明らかにすることを目的とする。周期 RG 構造の形成には、AFM カンチレバーを用いた SiC 表面へのナノインデンテーションとグラフェン転写を用いる。

基板には SiC(0001)を用いた。SiC はインデンテーション前後に水素エッチングによって原子レベルで平坦化することが容易であることが利点である。4H-SiC(0001)面にナノインデンテーション法によって周期的な溝構造を形成した後の AFM 像を図 1 に示す。溝幅/深さ、ピッチ、周期を自在に制御できることがわかった。これらの表面に CVD 法によって作製したグラフェンを超高真空中で転写した。顕微ラマン分光法により測定したところ、溝のある領域は平坦な領域と比べて、G および 2D ピークが低波数側へシフトしていた。図 2 に示すように G/2D ピーク位置より歪み量を評価すると^[3]、平坦な領域では圧縮歪みが確認され、溝領域ではよりフリースタンディングに近い状態となった。溝の部分ではグラフェンが浮いた状態となっていることが考えられる。当日は超高真空中での高温アニールでグラフェンと基板を密着させ、溝構造 (周期、深さ) に対する歪み量の相関等を報告する予定である。

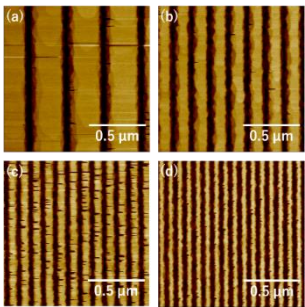


図 1 異なる間隔で形成した溝構造の AFM 像。溝同士の間隔 : (a) 0.64 μm 、(b) 0.32 μm 、(c) 0.16 μm 、(d) 0.08 μm 。

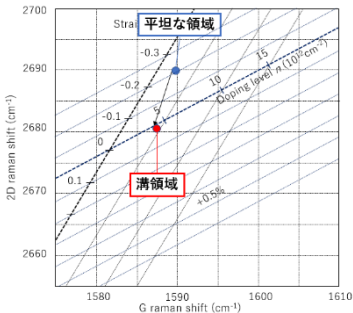


図 2 溝および平坦な領域の G/2D ピークプロット

Ref. [1] K. Bai *et al.*, Phys. Rev. Lett. 133, 086102(2014). [2] R. Banerjee *et al.*, Nano Lett. 20, 3113 (2020). [3] J. E. Lee *et al.*, Nat. Commun. 3, 1024(2012).

微傾斜 SiC (0001) 上の転写グラフェンの歪み状態

Strain distribution of transferred graphene on vicinal SiC (0001) surfaces

九大院工¹, 筑波大数理物質²

○(M2) 奥田 茉央¹, ビシコフスキー アントン¹, 増野谷 拓実², 近藤 さらな²,
神田 晶申², 田中 悟¹

¹Kyushu Univ., ²Tsukuba Univ.,

M. Okuda¹, A. Visikovskiy¹, T. Masunoya², S. Kondo², A. Kanda², S. Tanaka¹

E-mail: stanaka@nucl.kyushu-u.ac.jp

グラフェンの格子歪み（勾配）により誘起される擬磁場は、実磁場では実現出来ない強度[1]や局所性[2]から電子物性や伝導特性に大きな影響を与える可能性があり、非常に興味深い。我々はグラフェンに周期擬磁場を付与する試みとして、SiC 表面に注目した研究を行っている。SiC のユニットセルは c 軸方向に長い周期を有する（ポリタイプ）ことから、表面には様々な周期構造が現れ、グラフェンを転写することにより周期擬磁場が実現できる可能性がある。本研究では、Si (0001) 微傾斜面において発現するステップバンチングや周期的ナノファセット構造[3]に着目し、周期歪みの付与を試みた。

実験には SiC (0001) ジャスト、4° オフ基板を用いた。ジャスト基板では比較的長周期のステップ・テラス構造が得られるため、顕微ラマン分光によりステップ端における歪み状態を評価できる可能性がある。この表面にキッシュグラファイトから剥離したグラフェンを転写し、さらに超高真空（UHV）中、950°Cにおいてアニールを行った。ラマン分光測定により転写後はフリースタンディング（FS）であったが、アニール後には図1に示すように G、2D バンドにシフト・半値幅の変化が現れた。G/2D のベクトルプロットを図2[4]に示す。圧縮・ドーパ量の変化を示しており、SiC 表面との相互作用の結果であると考えられる。図3に転写単層グラフェン領域の AFM 像とラマンマッピング (@2700cm⁻¹ 付近)の結果を示すが、ステップ領域との相関は明らかではない。当日は微傾斜基板の結果や転写時の回転角度、さらにアニール温度依存性（界面構造）などについて報告する。

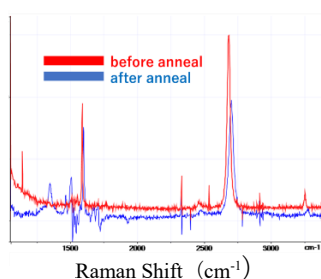


図1 アニール前後のラマンスペクトル

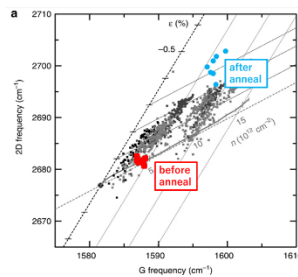


図2 G/2D ピークのベクトルプロット

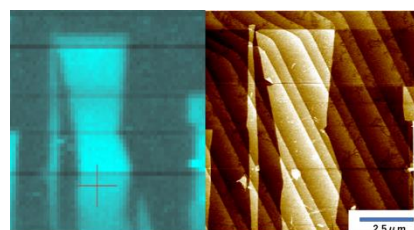


図3 単層グラフェン領域の AFM 像とラマンマッピング

[1] N. Levy *et al.*, Science **329**, 544 (2010). [2] R. Banerjee *et al.*, Nano Lett. **20**, 3113 (2020). [3] H. Nakagawa *et al.*, Phys. Rev. Lett. **91**, 226107 (2003). [4] J. Kwon *et al.*, Nat. Comm. **9**, 2037 (2018).

グラフェンのひずみ可変デバイスの作製

Fabrication of graphene strain-variable devices

筑波大数理物質¹, 秋田大教育文化² ○増野谷 拓実¹, 近藤 さらな¹, 友利 ひかり¹,
林 正彦², 神田 晶申¹,

Univ. Tsukuba¹, Akita Univ.² ○Takumi Masunoya¹, Sarana Kondo¹, Hikari Tomori¹,

Masahiko Hayashi², Akinobu Kanda¹

E-mail: s2220178@u.tsukuba.ac.jp

背景 グラフェンには、格子ひずみによって擬ゲージ場が生じるという特殊な性質がある。この性質をうまく利用すると、伝導ギャップ生成などグラフェンの伝導特性を制御できる可能性が理論で示されている[1,2]。一方で、これまでのひずみグラフェンの実験的研究のほとんどは、グラフェンを凹凸基板上に置くものであり、グラフェンのひずみ量を系統的に変化させることができなかった。本研究では、ひずみの影響を明確化するために、単一グラフェン試料においてひずみ量を変化させることのできるデバイスを作製することを目的とする。

実験方法 シリコン基板に形成したスリット上に数ミクロン幅のギャップ電極を形成し、ギャップ上にグラフェンを架橋させる。ギャップ幅をpiezo素子で変化させることによって、グラフェンのひずみ量を変化させる[3]。

結果 ポリイミドを塗布した SiO₂/Si 基板に CF₄/O₂ ドライエッチングや異方性ウェットエッチングを用いてスリットとギャップ電極を作製した (Fig. 1)。この基板にpiezo素子を取り付け(Fig. 2)、SEMによってギャップ幅のpiezo電圧依存性を調べたところ、piezo素子への150Vの印加でギャップ幅は約 0.4 μm 拡大することが確認された。発表では、ギャップ上に架橋したグラフェンのラマン分光や電気伝導測定の結果を報告する予定である。

参考文献

- [1] F. Guinea, et al. Nature Physics, 6, 30-33(2010)
- [2] M. Hayashi et al, J. Phys. Soc. Jpn. 90, 023701 (2021)
- [3] H. Maki et al, Nano Lett. 7, 890-895(2007)

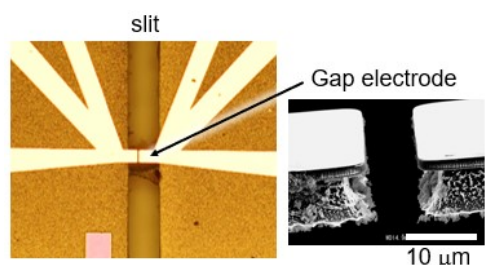


Fig. 1: (Left) Slit and gap electrodes placed on an SiO₂/Si substrate. (Right) Magnified view of gap electrodes.

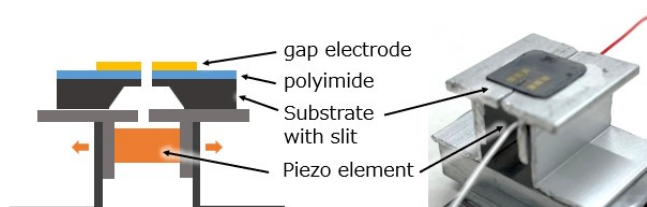


Fig. 2: SiO₂/Si substrate (10x10 mm²) attached to a piezo element.

湾曲したグラフェンカンチレバーの磁場印加により誘起される電流分布

Electric current distributions induced by application of magnetic field
in bent graphene cantilevers

兵庫県大工, (M2) 前渕一徳, 盛谷浩右, 乾 徳夫

Graduate School of Engineering, University of Hyogo,

Kazunori Maebuchi, Kosuke Moritani, Norio Inui

E-mail: ej22g018@steng.u-hyogo.ac.jp

グラフェンには優れた電気的特性に加えて、強靱さと柔軟性を兼ね備えているため、センサーや共振器、電気機械式スイッチなどMEMSの部品として利用されている。さらに、グラフェンには反磁性という特異な磁気特性があるため、磁場の変化により浮揚した状態でグラフェンの位置や形状を制御できる可能性がある。

反磁性の起源は軌道電流であり、磁場の方向とは逆向きに磁気モーメントが誘起され反磁性力が発生する [1]。この力の根源はローレンツ力であり、磁場と電子の運動によって決定される。従って、反磁性で生じる力や磁気エネルギーを理解するには、グラフェンに生じる電流分布の知見が不可欠である。ここで注意すべきはグラフェンには磁気異方性があるため、グラフェン表面に対する磁場の角度によって電流分布も変化する点である。そこで本発表では Fig.1 のような折り畳み状態から平坦な状態からへ遷移する際に生じる電流分布変化について考察する。

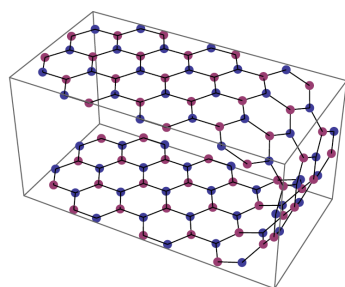


Fig. 1 Folded graphene cantilever.

Fig.1 のグラフェン下部表面と垂直に磁場を印加した場合に生じる軌道電流をタイトバインディングモデルを用いて計算した。Fig. 2 に湾曲した状態における電流分布の一例を展開し

た状態で示している。濃淡により電流の大きさを示しており、濃い部分ほど電流が大きく、点線部分では電流はゼロである。電流の大部分はエッジ近傍に流れており、折り目では電流が流れていない。これは折り目ではグラフェンと磁場が平行になるためである。また、湾曲したグラフェン下部の上面に沿った電流は、グラフェン上部では下面になる。従って、電子と一緒に移動する観測者にとっては磁場の方向が反転する。そのため、電流の方向が逆転している。

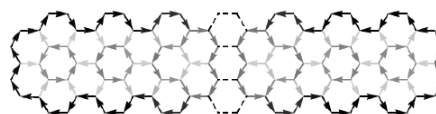


Fig. 2 Electric current distributions on the cantilever with armchair edges.

グラフェンカンチレバーが L 字になった場合、磁場と平行となる部分には電流が殆ど流ない。よって、湾曲したグラフェンカンチレバーの下部を固定して、弾性により自由に展開して平坦な状態へ変化する場合、グラフェンカンチレバーに生じる電流は徐々に減少し、平坦状態で電流の反転が起きると考えられる。そこで、分子動力学法によりこの運動をシミュレーションし、軌道電流の時間変化を求めた。講演では湾曲した状態における磁気ポテンシャルの長さ依存性や電流分布のエッジ形状の依存性についても発表する。

本研究は JSPS 科研費 21K04895 の助成を受けたものです。

[1] Y. Ominato and M. Koshino, Phys. Rev. B **87** 115433 (2013).

Large-angle ツイスト二層グラフェンの量子ホール効果

Quantum Hall effect in large-angle twisted bilayer graphene

東大生研¹, 物材機構² ○辻 悠基¹, 瀬尾 優太¹, 守谷 頼¹, 増淵 寛¹, 渡邊 賢司²,
谷口 尚², 町田 友樹¹

IIS Univ. Tokyo¹, NIMS² ○Yuki Tsuji¹, Yuta Seo¹, Rai Moriya¹, Satoru Masubuchi¹,
Kenji Watanabe², Takashi Taniguchi², and Tomoki Machida¹

E-mail: ytsuji@iis.u-tokyo.ac.jp

ツイスト二層グラフェン(TBG)は、魔法角(1.1°)をはじめ小さなツイスト角度で盛んに研究が行われている。一方、 10° 以上の大きなツイスト角の TBG は研究報告が限られている。

本研究では、2 枚の単層グラフェンを 30° のツイスト角度で積層した 30° -TBG の電子物性探索を目的として、Graphite/*h*-BN/ 30° -TBG/thin carbon-doped *h*-BN/Graphite ファンデルワールスヘテロ構造(Fig. 1a)を作製した。作製した素子に対して低温・面直磁場(B)下でトップゲート電圧(V_{tg})ならびにソースドレイン電圧(V_{sd})を印加して面内伝導測定とトンネル伝導測定を行った。面内伝導測定において、 $B = 4$ T では大きなツイスト角度のために TBG は独立した 2 枚の単層グラフェンとして振る舞い[1]、TBG 層間のキャパシタンスの影響を反映して上層グラフェン(Fig. 1d 赤線)と下層グラフェン(Fig. 1d 青線)それぞれの量子ホール状態が観測された(Fig. 1c)。 $B = 12$ T ではグラフェンの 4 重縮退が解け(Fig. 1e)、上層と下層グラフェンの相互作用を示唆する結果が観測された(Fig. 1f)。講演では面内伝導で観測された量子ホール状態を反映した欠陥アシスト共鳴トンネルについても紹介する(Fig. 1b)。

[1] J.D. Sanchez-Yamagishi *et.al.*, Phys. Rev. Lett. **108**, 076601(2012)

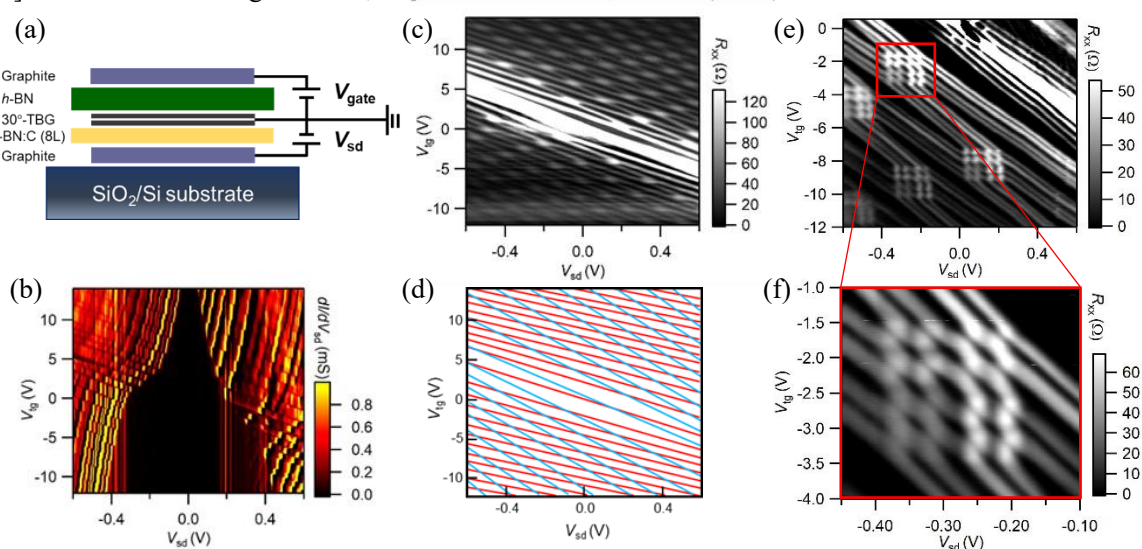


Figure 1. (a) Schematic of the device. Colour-scale plot of (b) differential conductance dI/dV_{sd} and (c) longitudinal resistance R_{xx} at $B = 4$ T. (d) Trajectories of LL filling factor $\Delta v = 4$ in top (red) and bottom (blue) graphene layers derived from R_{xx} peaks in (c). (e), (f) Colour plot of R_{xx} at $B = 12$ T.

乱層積層グラフェンの可視～中赤外域での光吸収に対する フェルミ準位制御の影響

Effects of Fermi level control in the visible to mid-infrared absorption spectra
from randomly stacked graphene

阪大院工¹, 岡山大² [○]水野琢央¹, 池田匠吾¹, 菊堂裕己¹, 井ノ上泰輝¹,
仁科勇太², 小林慶裕¹

Osaka Univ.¹, Okayama Univ.², [○]T. Mizuno¹, S. Ikeda¹, Y. Kikudo¹, T. Inoue¹,

Y. Nishina², Y. Kobayashi¹

E-mail: mizuno@ap.eng.osaka-u.ac.jp

【はじめに】単層グラフェンは、線形分散の電子状態を持つことから、広帯域で一定に光を吸収する[1]。広帯域の光デバイスへの応用が期待されるが、単層では吸収強度が弱いことが課題となる。強度増加のために多層化が有効であるが、最安定構造である通常のAB積層グラフェンでは層間相互作用が強く、線形分散性が消失するため、単層グラフェンの特長が失われる。そこで、単層グラフェンの線形分散を維持した乱層積層グラフェン[2]に注目した。単層グラフェンでは、基板や電荷不純物からのドーピングによりフェルミ準位がシフトし、吸光度が低下することも課題となっている。本応物講演会において、多層グラフェンの吸収スペクトルを測定し、中赤外域での吸光度に対するフェルミ準位制御の結果を報告した[3]。しかし、可視から近赤外での波長域に与える効果や層数依存性の検討は不十分であった。本研究では、様々な層数の乱層積層グラフェンを作製し、電圧印加によるフェルミ準位制御が可視～赤外域での光吸収に与える効果を検証した。

【実験】酸化グラフェン(GO)分散液をスピコート法により熔融石英基板上に塗布し、超高温電気炉でエタノール雰囲気中1200℃、1時間の還元・修復処理[4]により、乱層グラフェン薄膜を作製した。GO塗布回数により膜厚を制御した。得られた乱層グラフェンをチャネルとした電界効果トランジスタ(FET)を作製し、イオンゲルを用いたゲート電圧印加でフェルミ準位を制御した。試料の構造評価について、ラマン分光法(励起波長532 nm)で欠陥密度と乱層構造を解析した。層数はグラフェン一層当たりの光吸収率を2.29%[1]として、紫外可視(UV-vis)分光法における1400 nmの吸光度により算出した。吸収スペクトルはUV-vis分光法(測定範囲:220–1400 nm)、フーリエ変換赤外分光法(400–7200 cm⁻¹)を用いて測定した。

【結果】ラマン分光法による解析の結果、すべての試料で欠陥密度を表す I_D/I_G は0.9程度、乱層率は70%程度であり、結晶性・積層構造は層数に依らないことが判明した。作製したFETのゲート特性評価により電荷中性点(CNP)を特定した。5つの波長における ΔA (ゲート電圧印加時と非印加時の吸光度の差)のゲート電圧依存性をFig. 1に示す。19層のグラフェン試料において、CNPに対応するゲート電圧 $V_g = V_{CNP}$ を印可するとフェルミ準位がディラック点と一致する。この場合に、光子エネルギーによらずバンド間遷移が支配的となり、吸光度変化量は最大となる。フェルミ準位がディラック点から離れると、バンド内遷移が顕著になり、低エネルギー域での吸光度が増加する。19層以外の層数の試料においてもフェルミ準位制御により吸光度が増加するという同様の結果が得られた(Fig. 2)。以上の結果から乱層積層グラフェンにおけるフェルミ準位制御は広帯域光学材料への優れたアプローチであることが示された。

謝辞: 本研究の一部は科研費、阪大フォトニクスセンターの支援により実施した。

[1] K. Fai et al., Phys. Rev. Lett. **101** (2008) 196405. [2] S. Latil et al., Phys. Rev. B **76** (2007) 201402. [3] 池田他, 2022年秋季応用物理学会 23p-B202-7 [4] R. Negishi et al., Sci. Rep. **6** (2016) 28936.

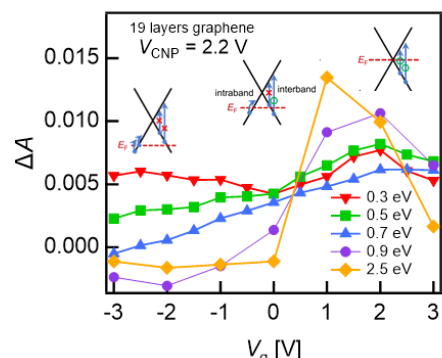


Fig. 1 Gate voltage V_g dependence of the change in absorbance ΔA in the mid infrared region.

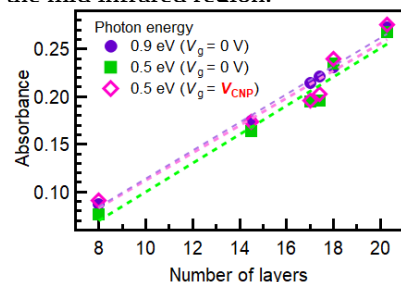


Fig. 2 Layer number dependence of absorbance at various energies with Fermi level control at CNP.

Geometric structure of graphene thin films under an external electric field

°Nadia Sultana, Yanlin Gao, Mina Maruyama, Susumu Okada

Department of Physics, University of Tsukuba, Tsukuba 305-8571, Japan

E-mail: nsultana@comas-tsukuba.jp

The electronic structure of graphene thin films is sensitive to the stacking arrangement and the external electric fields [1]. In particular, a perpendicular electric field make a bilayer graphene with Bernal stacking a semiconductor whose band gap is proportional to the field strength [2,3]. Therefore, the field-effect on electronic properties of graphene thin films has attracted considerable attention in electronics and optoelectronic fields. Despite the electronic structure is modulated by the external electric field, the geometric properties of graphene thin films are uncertain under the external electric field. Therefore, in this work, we aim to elucidate the geometric properties

of multilayer graphene under the perpendicular electric field using the density functional theory combined with the effective screening medium method.

Figure 1 shows the total energy of bilayer graphene with AA and AB stacking as a function of interlayer spacing under the perpendicular electric field. The equilibrium spacing is slightly extended by the external electric field for bilayer graphene with AA and AB stacking arrangement.

Field-induced asymmetric charge polarization on each graphene layer increases the interlayer spacing. We will be discussing the structural modifications induced by both external electric field and excess carrier doping.

References

- [1] N. Sultana et al. Jpn. J. Appl. Phys. 10.35848/1347-4065/acde66.
- [2] J. B. Oostinga et al. Nat. Mater. **146**, 151 (2008).
- [3] M. Otani, S. Okada, J. Phys. Soc. Jpn. **79**, 073701 (2010).

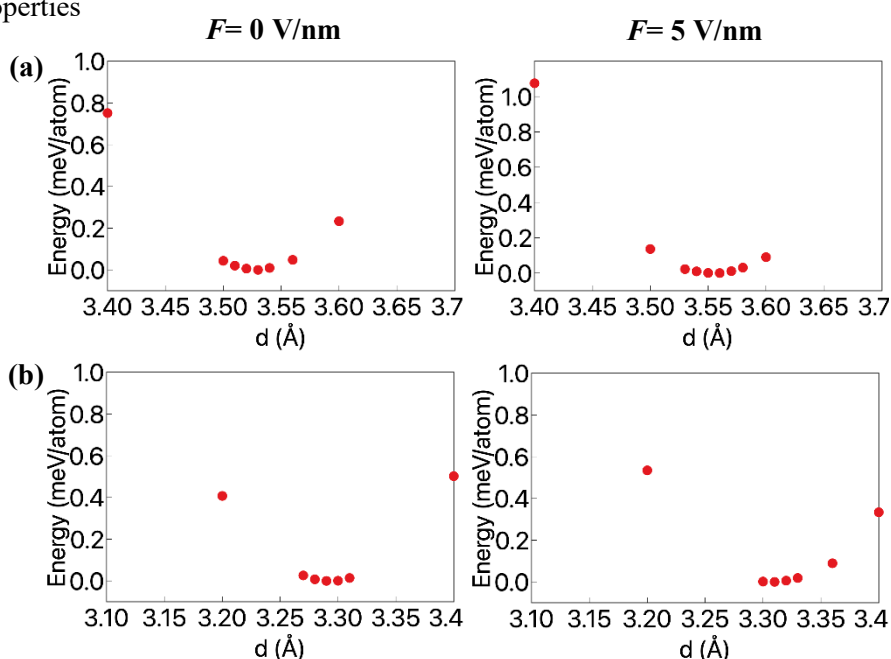


Fig. 1. Total energy of bilayer graphene with (a) AA and (b) AB stacking for without and with perpendicular electric field as a function of interlayer spacing d .