

|              |   |
|--------------|---|
| Title        | グラフェンナノ構造における単キャリア輸送現象と局所ドーピング効果  |
| Author(s)    | 岩崎, 拓哉  |
| Citation     |   |
| Issue Date   | 2017-03   |
| Type         | Thesis or Dissertation  |
| Text version | ETD   |
| URL          | <a href="http://hdl.handle.net/10119/14252">http://hdl.handle.net/10119/14252</a> |
| Rights       |   |
| Description  | Supervisor:水田 博, マテリアルサイエンス研究科,<br>博士   |

|         |  |       |                    |
|---------|--|-------|--------------------|
| 氏名      | 岩崎拓哉   |       |                    |
| 学位の種類   | 博士(マテリアルサイエンス)   |       |                    |
| 学位記番号   | 博材第415号  |       |                    |
| 学位授与年月日 | 平成29年3月24日   |       |                    |
| 論文題目    | グラフェンナノ構造における単キャリア輸送現象と局所ドーピング効果<br>(Single carrier transport and local doping effects on graphene nanostructures) |       |                    |
| 論文審査委員  | 主査   | 水田博   | 北陸先端科学技術大学院大学 教授   |
|         |  | 下田達也  | 同 教授               |
|         |  | 徳光永輔  | 同 教授               |
|         |  | 高村由起子 | 同 准教授              |
|         |  | 小寺哲夫  | 東京工業大学工学院電気電子系 准教授 |

### 論文の内容の要旨

Since electrons in graphene-based quantum dots (QDs) are promising for quantum information processing (*i.e.*, quantum bit), graphene nanodevices have therefore been studied to realize single electron/hole transport property. However, the clear characteristic of single QD (SQD) has not been established yet in graphene devices because of the formation of unintentional multiple dots in graphene caused by uncontrollable potential inhomogeneity and edge irregularity. In particular, single carrier transport at the intrinsic Dirac point (at zero gate voltage) has not been observed so far. This study aims to fabricate and measure the graphene SQD based on the following two approaches: (1) optimizing the design of the device structure, and (2) reducing the influence of charged impurity (*e.g.*, carrier localization, namely the local doping effect). As a result of (1), it is revealed that the devices with the geometrically-defined quantum dot shows multiple dots characteristics rather than that of the single dot. This indicates that unintentional dots are formed in the graphene channel comprising constrictions and a dot structure. Moreover, simple nanoribbon devices with a longer length (~100 nm) and a narrower width also exhibited the multiple dots behavior. Even though the ultra-narrow nanoribbon (width ~5 nm) fabricated by the novel patterning process using hydrogen silsesquioxane, the SQD behavior was not observed in the nanoribbon with a longer length. From these results, it is understood that the formation of unintentional dots can not be avoided even in a narrow constriction if it has a longer length. In order to overcome this issue, the constriction with a short length and a narrow width can be considered as a more suitable structure to form the SQD in graphene. For (2), firstly, the distribution of doping concentration in graphene is spatially resolved by using tip-enhanced Raman spectroscopy. It is clarified that the hole doping concentration is modulated by the order of magnitude of  $10^{13} \text{ cm}^{-2}$  within a distance of  $1 \mu\text{m}$  by the variation in the device fabrication process. Secondary, the mechanism of irreversible change in carrier transport property of graphene devices by the post annealing process is elucidated by the systematic

experiments and the first principle calculations. As a result, it is found that the shift of the charge neutrality point (*i.e.*, averaged doping effects in overall graphene) can be controlled by annealing in the vacuum or hydrogen gas environment. Based on the above results, graphene constriction devices with a short length and a narrow width are studied to realize the SQD behavior in graphene. The regular Coulomb diamond and periodic Coulomb oscillation characteristics are observed at the temperature of 5 K in the certain gate voltage range, which indicates the transport property through the SQD. Comparing the extracted parameters from the transport measurements and from the geometric structure in the scanning electron microscope images, it can be considered that the single dot is formed in the constriction region. By shifting CNP near to zero voltage by annealing, transport through randomly formed multiple dots is not yet eliminated. Though the potential inhomogeneity presents in the SQD formed in the constriction region, the possibility of single dot formation is increased due to the overall reduction in the edge irregularities.

Keywords: Graphene nanostructure, Single carrier transport, Doping effect, Coulomb blockade, Quantum dot, Single electron transistor

## 論文審査の結果の要旨

グラフェンは特異な電子構造・電界効果特性を持つことから注目され、ナノエレクトロニクス応用に向け、盛んに研究されている。特にグラフェン量子ドット中の電子スピンは、量子コンピュータの基礎となるスピン量子ビットの有力な候補であるため、グラフェン量子ドットデバイスの研究も活発に行われている。しかし、グラフェンは二次元物質であるため、その単キャリア(単電子・単正孔)輸送特性は、グラフェンの周辺環境や微細加工によって生じたチャンネルエッジのラフネスに非常に敏感である。周辺環境からの影響としては、グラフェン表面への物理吸着分子、基板界面との相互作用による電荷遷移などによって発生するドーピング効果が支配的である。中でも局所的ドーピング効果とエッジラフネスはキャリアの局在化を引き起こし、意図しなかった疑似的な量子ドットの形成を引き起こす。そのため、量子ドット数(さらにドット内のキャリア数)を正確に制御する必要のあるパウリスピンブロックードといった物理現象は未だ観測されていない。

本研究では、ラフネス量子デバイス開発の鍵となる「単一量子ドットがよく定義された」グラフェン単キャリアトランジスタ(GSCT)の実現を目的とし、グラフェンナノ構造におけるエッジラフネスとグローバル&局所ドーピング効果が単キャリア輸送特性に与える影響を実験的に解明し、その抑制・改善方法を提案した。具体的には、電子線リソグラフィとドライエッチングで作製した極細グラフェンナノリボン中では、ランダムに複数の量子ドットが形成され、寸法に依存して直列・並列多重量子ドットのクーロン振動特性が現れることを見出した。また、デバイス

作製プロセスでの残留不純物や大気から物理吸着したガス分子などによるグローバルなドーピングの影響を除去し、電荷中性点シフトを抑制する水素アニール処理プロセスの開発とそのメカニズム解明に成功した。さらに、テップ増強ラマン分光法(TERS)を用いてナノスケールの空間分解能でラマンスペクトルを計測することで、ナノスケールでの局所ドーピング現象を定量的に解明した。以上の知見を踏まえて、長さ100ナノメートル以下の極細・極短ナノリボンをチャンネルとするグラフェン狭窄構造を提案し、擬似ドット形成を大幅に抑制した「准単一量子ドット」特性を観測することに成功した。

以上、本論文は、これまで実験的に極めて不十分であったグラフェン単キャリアトランジスタの動作原理と設計指針を初めて明らかにした独創性の高い研究であり、学術上・応用上両方の観点から極めて価値の高いものである。よって博士(マテリアルサイエンス)の学位論文として十分価値あるものと認めた。