

Ein- und doppelagiges Graphen im Magnetfeld

Quanten-Hall-Effekt in Graphen

ULI ZEITLER | JOS GIESBERS | JAN-KEES MAAN

Kaum ein anderes neues Material sorgt derzeit für so viel Aufregung wie das 2004 entdeckte Graphen. In starken Magnetfeldern zeigt es sogar bei Raumtemperatur einen Quanten-Hall-Effekt.

Neuartige Materialsysteme können manchmal zu spektakulären Entdeckungen führen. Ein prominentes Beispiel ist Graphen, das aus einer einzigen Lage von Kohlenstoffatomen besteht. Sie sind in einem flachen Gitter aus sechseckigen „Honigwaben“ angeordnet. Seit die Schichtstruktur von Graphit am Anfang des 20. Jahrhunderts aufgeklärt wurde, haben Wissenschaftler immer wieder versucht, eine solche einzelne Schicht isoliert herzustellen. Doch erst 2004 fanden Andre Geim und Kostya Novoselov von der University of Manchester eine Methode, mit der sie erstmals die rein zweidimensionale Form von Kohlenstoff – gewissermaßen aus einem Graphit-Bleistiftstrich – gewinnen konnten [1, 2].

Als Festkörper besitzt Graphen eine einzigartige Energiebandstruktur, die zu einem besonderen Verhalten der Ladungsträger führt. In normalen Festkörpern sind fließende Ladungsträger Stößen, elektrischen Kräften usw. ausgesetzt, Defekte im Kristallgitter bremsen zusätzlich. Diese vielfältigen Wechselwirkungen sorgen dafür, dass sie vergleichsweise langsam durch das Gitter diffundieren, wenn eine Spannung anliegt und dadurch Strom fließt. Graphenproben besitzen dagegen ein nahezu perfektes zweidimensionales Gitter, das mit den sich bewegenden Ladungsträgern auf besondere Weise wechselwirkt: Sie verhalten sich wie Teilchen ohne Ruhemasse und können mit enorm hohen, relativistischen Geschwindigkeiten durch das Gitter flitzen.

Nimmt man noch die besonderen Symmetrieeigenschaften des Graphens hinzu, dann kann man dessen Ladungsträger als masselose chirale Dirac-Fermionen beschreiben – in doppelagigem Graphen dagegen als chirale relativistische Ladungsträger mit Ruhemasse. Was das im Einzelnen genau bedeutet, diskutieren wir später. Jedenfalls

ähneln diese Ladungsträger in ihren Eigenschaften zum Beispiel Neutrinos oder Antineutrinos. Deshalb kann man damit Phänomene der relativistischen Quantenelektrodynamik studieren. Damit eröffnet sich erstmals der Physik kondensierter Materie ein Forschungsfeld, das bisher der Hochenergiephysik vorbehalten war.

Eine direkte Konsequenz der relativistischen Bandstruktur in Graphen ist das Auftreten neuer Formen des altbekannten ganzzahligen Quanten-Hall-Effekts [3, 4]. In Graphen erscheinen Quanten-Hall-Plateaus bei halbzahligen Füllfaktoren [5, 6], was wir weiter unten noch genauer diskutieren. Darüber hinaus bleibt der Quanten-Hall-Effekt selbst bei Raumtemperatur noch sichtbar, also bei zehnfach höheren Temperaturen als bisher bekannt. Diesen spektakulären Effekt beobachteten wir als Erste am Hochfeld-Magnetfeldlabor der Radboud Universität in Nijmegen [7].

Die sensationelle Entdeckung eines Hochtemperatur-Quanten-Hall-Effekts kann noch sehr bedeutend für unser Verständnis von Quantenphänomenen in Festkörpern werden. Darüber hinaus ebnet sie uns einen – zugegeben noch recht steinigen – Weg zu einer Hochtemperatur-Quantenmetrologie in einem neuartigen Festkörpersystem, der bislang verschlossen war. Das könnten zum Beispiel hoch präzise Widerstandsnormale auf Basis der Von-Klitzing-Konstanten sein. Wir haben vor kurzem gezeigt, dass Graphen im Prinzip dazu geeignet ist [8].

Graphen

Kohlenstoff ist eines der vielseitigsten Elemente der Natur. Dank der vielen Hybridisierungsformen seiner Bindungselektronen bildet es die Basis der organischen Chemie und schlussendlich aller komplexen Lebensformen. Bereits in seiner elementaren Form kommt Kohlenstoff in einer Vielzahl von Allotropen, also verschiedenen Strukturformen im gleichen Aggregatzustand, vor. Dazu zählen dreidimensionale Strukturen wie Diamant mit tetraedischen Bindungen und Graphit, eine Stapelung von zweidimensionalen Graphenlagen mit einem freien π -Elektron pro Kohlenstoffatom. Daneben wurde in den 1980er und 90er Jahren eine Vielfalt an eindimensionalen und nulldimensionalen Allotropen des Kohlenstoffs synthetisiert, die Kohlenstoff-Nanoröhrchen [9] und die Buckminster-Fullerene [10].

Allerdings hatte man bis vor kurzem angenommen, dass eine isolierte zweidimensionale Form von Kohlenstoff thermodynamisch instabil sei [11]. Graphen war folglich ausschließlich ein wichtiger theoretischer Baustein zur Erklä-

INTERNET

Forschung am Hochfeld-Magnetlabor in Nijmegen
www.hfml.ru.nl/allhighlights.shtml

Virtuelle Tour durch dieses Hochfeld-Magnetlabor
www.hfml.ru.nl/vtour.shtml

Graphen-Forschung in den Niederlanden
www.graphene.nl

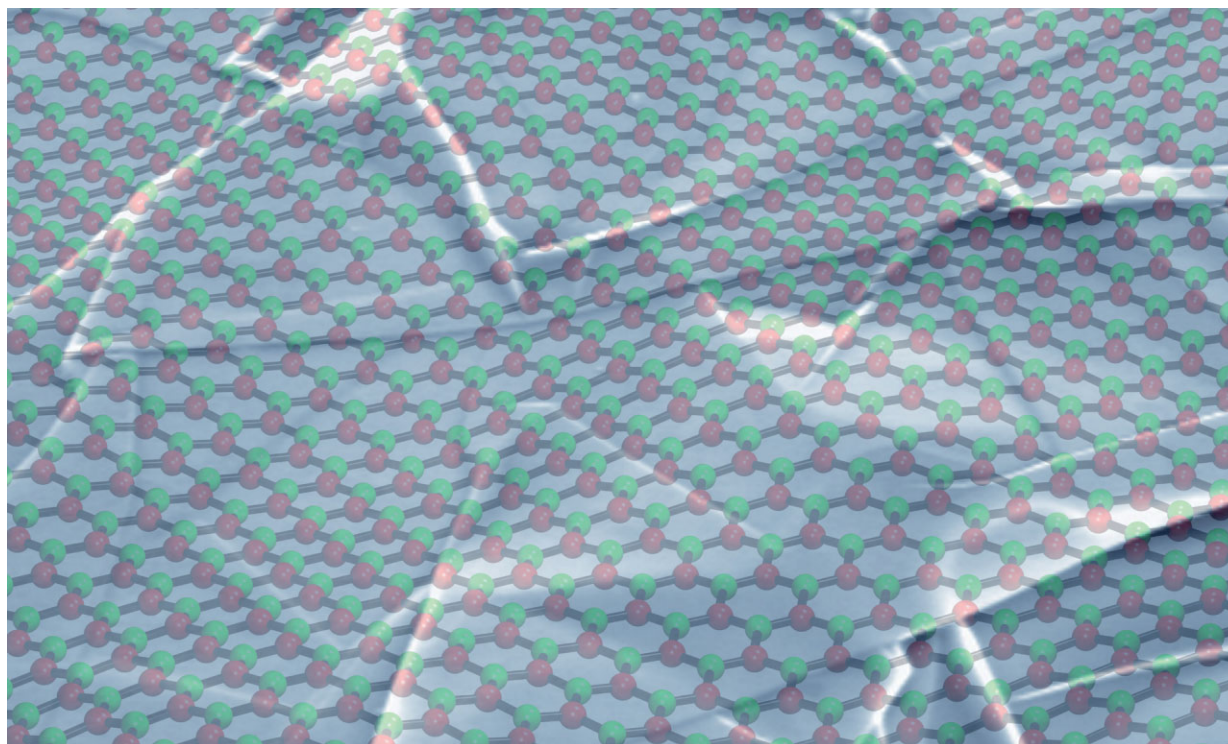


Abb. 1 Diese elektronenmikroskopische Aufnahme von Graphen zeigt einzelne Graphitlagen auf einem Substrat, unterlegt ist eine künstlerische Darstellung des Honigwabengitters von Graphen (SEM-Aufnahme: Universität Manchester).

rung der komplexen Physik in Kohlenstoffsystemen. Diese Rolle änderte sich 2004 mit Geims und Novoselovs Entdeckung abrupt (Abbildung 1) [1,2].

Die von ihnen benutzte Herstellungsmethode ist überraschend simpel: Eine Rolle Klebeband und ein Stückchen Graphit reichen aus. Mit dem Klebeband zieht man einige Graphitlagen ab und bringt diese dann durch vorsichtiges Reiben auf ein geeignetes Substrat auf. Danach ist es nur noch eine Frage des geduldigen Suchens, um schließlich Graphit-Monolagen, also reines Graphen, zu finden und zu verarbeiten.

Ein optisches Mikroskop genügt, um die Lagenanzahl der Graphitflocken zu erkennen. Dazu bringt man die Graphitflocken auf ein Silicium-Substrat, das mit einer 300 Nanometer dünnen SiO₂-Lage bedeckt ist. Auf diesem Substrat führt der Einfluss der wenigen Graphitlagen zu einer Veränderung des Interferenzmusters des vom Substrat reflektierten Lichts: Aus dessen Farbe lässt sich die Lagenanzahl im Graphit ablesen. Dabei zeigt die einzelne Lage von Graphen einen besonders deutlichen optischen Kontrast [12].

Graphen-Transistoren

Um die außergewöhnlichen elektronischen Eigenschaften von Graphen und die dadurch verursachten Phänomene zu untersuchen, muss das Material in ein elektrisch kontaktiertes Bauelement integriert werden. Das kann zum Beispiel ein Feldeffekttransistor (FET) sein. Den FET erhält man, indem man eine Graphenlage auf einem Silicium-Substrat mit der besagten 300 nm starken SiO₂-Schicht depo-

niert und mit Goldkontakten versieht (Abbildung 2a) [1]. Der leitende Kanal des FET sitzt zwischen zwei Goldkontakten (1, 2) in der Graphenlage, das Siliziumdioxid dient als Isolator und das dahinter liegende, hoch dotierte Silicium-Substrat als Steuerelektrode. Mit den anderen Kontakten (3-6) lassen sich der Längswiderstand und auch die Hall-Spannung messen, die uns noch beschäftigen wird.

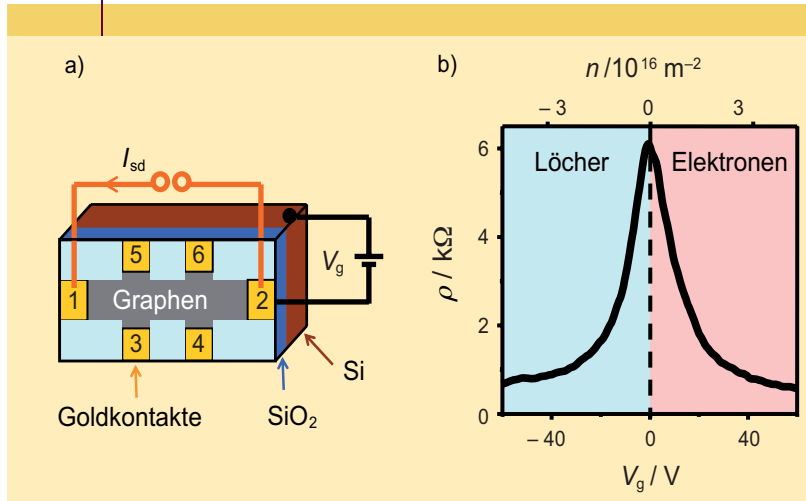
Ohne Steuerspannung befinden sich keine freien Ladungsträger im Graphen. Eine positive Spannung zwischen der Steuerelektrode (Gate) und dem Leitungskanal induziert in die Graphenlage Elektronen, eine negative Steuerspannung dagegen Löcher. Diese Möglichkeit, beide Ladungsträgerarten zu induzieren, ist bereits eine Besonderheit des Graphen-FET (ambipolarer FET). Die Flächendichte der Ladungsträger n im zweidimensionalen Graphen kann man mit einem einfachen Plattenkondensatormodell aus der Steuerspannung V_g und der Dicke des Gate-Oxids d berechnen:

$$n = \frac{\epsilon_0 \cdot \epsilon_r \cdot V_g}{e \cdot d} = 7,2 \cdot 10^{14} \text{ m}^{-2} \text{ V}^{-1} \cdot V_g, \quad (1)$$

$\epsilon_r = 3,9$ ist die Dielektrizitätskonstante des Gate-Oxids und $d = 300 \text{ nm}$ seine Dicke. Bei technisch realisierbaren Steuerspannungen von $\pm 100 \text{ V}$ ergeben sich somit recht hohe Flächenladungskonzentrationen für Elektronen oder Löcher von bis zu $7,2 \cdot 10^{16} \text{ m}^{-2}$.

Der elektrische Widerstand eines Graphen-FET sinkt bei beiden Vorzeichen der Steuerspannung mit steigendem Absolutwert (Abbildung 2b), denn entweder nimmt die La-

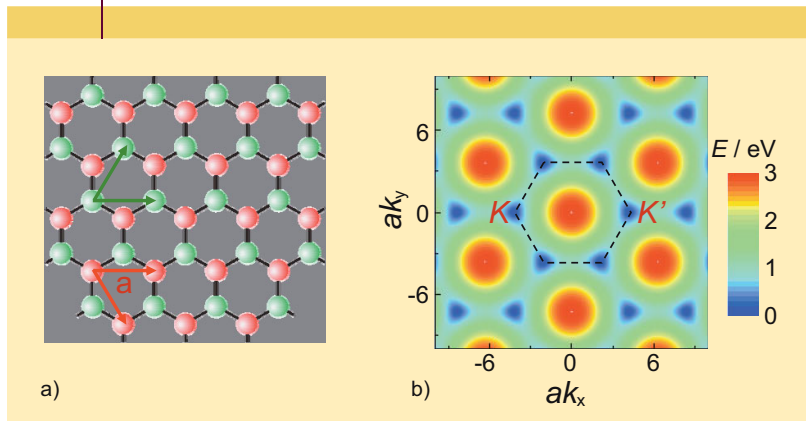
ABB. 2 FELDEFFEKTTTRANSISTOR AUS GRAPHEN



a) Graphen-FET auf einem Si/SiO₂-Substrat in Form eines Hall-Kreuzes. Eine positive Steuerspannung V_g an der Si-Steurelektrode induziert Elektronen in das Graphen, eine negative V_g Löcher. Vom Source-Kontakt (1) fließt ein konstanter Strom zum geerdeten Drain-Kontakt (2). Der elektrische Widerstand wird an zwei nacheinander folgenden Kontakten gemessen (z. B. 3 und 4), der Hall-Widerstand senkrecht zum Stromfluss (z. B. 3 und 5). Dazu wird senkrecht zur Graphen-Ebene ein Magnetfeld angelegt. b) Spezifischer Flächenwiderstand ρ als Funktion der Steuerspannung V_g und der Flächendichte der Ladungsträger n (nach Gleichung 1): Bemerkenswert ist der endliche Widerstand des Graphen (≈ 6,5 kΩ) selbst ohne induzierte Ladungsträger (V_g = 0).

dingsträgerdichte der Löcher oder diejenige der Elektronen zu. Darüber hinaus bleibt der Transistor überraschenderweise selbst bei verschwindender Ladungsträgerkonzentration, also wenn weder Elektronen noch Löcher im Kanal anwesend sind, noch immer leitend. Sein spezifischer Widerstand liegt dann bei etwa 6,5 kΩ (≈ h/4e²).

ABB. 3 BANDSTRUKTUR VON GRAPHEN I



a) Zweidimensionales Wabengitter: Jedes Kohlenstoffatom bindet über drei Elektronen kovalent an seine Nachbaratome und liefert ein bewegliches π-Elektron, es ist eine Überlagerung aus zwei trigonalen Elementargittern (grüne und rote Kohlenstoffatome). b) Der Konturplot des Leitungsbandes von Graphen im reziproken Gitter zeigt die charakteristischen Energienullpunkte in den K-Punkten der Brillouin-Zone. Dort berührt das Leitungsband das Valenzband. Jeder der Energienullpunkte kann um einen reziproken Gittervektor eines der beiden trigonalen Gitter in einem der beiden Täler bei K oder K' verschoben werden.

Relativistische Elektronen und Löcher

Die Realisierung eines Graphen-FET erlaubt es uns nun, die einzigartigen elektronischen Eigenschaften von Graphen zu untersuchen und diese mit den uns bekannten traditionellen Halbleitern zu vergleichen. Ladungsträger in solchen konventionellen Systemen weisen im Allgemeinen eine quadratische Abhängigkeit ihrer Energie von ihrem Impuls auf. Diese Dispersion schreibt sich:

$$E = \frac{p^2}{2m^*} = \frac{(\hbar k)^2}{2m^*}, \quad (2)$$

m* ist die effektive Elektronenmasse, die von der Energiebandstruktur des Materials bestimmt wird, k der Betrag des Wellenvektors des Elektrons. So gilt zum Beispiel m* = 0,0675 m_c in Galliumarsenid und m* = 0,19 m_c in Silicium (m_c: Elektronenmasse).

Das Verhalten der Ladungsträger in Graphen lässt sich auf diese klassische Weise nicht mehr beschreiben. Graphen hat nämlich eine ziemlich einmalige Bandstruktur, die der kanadische Theoretiker Philip Wallace bereits 1947 berechnete [13]. Die Abhängigkeit der Energie E der Ladungsträger von ihrem zweidimensionalen Wellenvektor k lässt sich durch ein sogenanntes Tight-Binding-Modell berechnen, das unter anderem nur die Wechselwirkungen eines Atoms mit seinen direkten Nachbarn im Gitter betrachtet und die entfernteren Atome vernachlässigt. Es ergibt folgende Beziehung (Abbildungen 3b und 4a):

$$E(k_x, k_y) = \pm \gamma_0 \sqrt{1 + 4 \cos\left(\frac{\sqrt{3} a k_y}{2}\right) \cos\left(\frac{a k_x}{2}\right) + 4 \cos^2\left(\frac{a k_x}{2}\right)}. \quad (3)$$

Hierbei ist a = 0,246 nm die Gitterkonstante (Abbildung 3a). γ₀ ≈ 3,2 eV ist das sogenannte Austauschintegral: Es beschreibt die Wechselwirkung zwischen zwei benachbarten Kohlenstoffatomen, deren Elektronen-Wellenfunktionen sich überlappen.

Graphen hat nun die Besonderheit, dass das Leitungsband und das Valenzband sich an sechs äquivalenten Punkten in der ersten Brillouin-Zone berühren. Abbildung 4 zeigt dies im k-Raum des reziproken Kristallgitters. In diesen sechs K-Punkten der Brillouin-Zone mit Wellenvektor K, die auch Dirac-Punkte genannt werden, ist der zugehörige Impuls des beweglichen Quasiteilchens:

$$\hbar q = \hbar (k - K).$$

Aus einer Taylor-Entwicklung von Gleichung (3) für |q| ≪ |K| folgt dann eine lineare Beziehung zwischen der Energie E und dem Impuls ħq (Abbildung 4b):

$$E = \pm c \hbar |q|. \quad (4)$$

Die Teilchengeschwindigkeit c in Gleichung (4) wird durch die Taylor-Entwicklung von Gleichung (3) bestimmt:

$$c = \frac{\sqrt{3}\gamma_0 a}{2\hbar} \approx 10^6 \text{ m/s.} \quad (5)$$

Diese Geschwindigkeit ist vergleichbar mit typischen sogenannten Fermi-Geschwindigkeiten in Metallen oder dotierten Halbleitern: In Kupfer zum Beispiel ist $v_F = 1,6 \cdot 10^6 \text{ m/s}$, in GaAs mit einer typischen Elektronendichte von $n \approx 10^{24} \text{ m}^{-3}$ ist $v_F \approx 0,5 \cdot 10^6 \text{ m/s}$. Allerdings bewegen sich dort lediglich Elektronen an der Fermi-Kante, also mit Fermi-Energie, mit dieser maximalen Geschwindigkeit. Ladungsträger mit niedrigerer Energie innerhalb der Fermi-Kugel sind entsprechend langsamer, und diese machen den Löwenanteil im Leitungsband aus.

Im Graphen ist die Geschwindigkeit der Ladungsträger nach Gleichung (4) hingegen vollkommen unabhängig von ihrer Energie: Alle Ladungsträger flitzen mit einer konstanten Geschwindigkeit $c \approx 10^6 \text{ m/s}$ durch das Gitter. Auch wenn diese zwei Größenordnungen unterhalb der Vakuumlichtgeschwindigkeit liegt, verhalten sie sich somit ganz analog zu Photonen, also wie relativistische Teilchen ohne Ruhemasse.

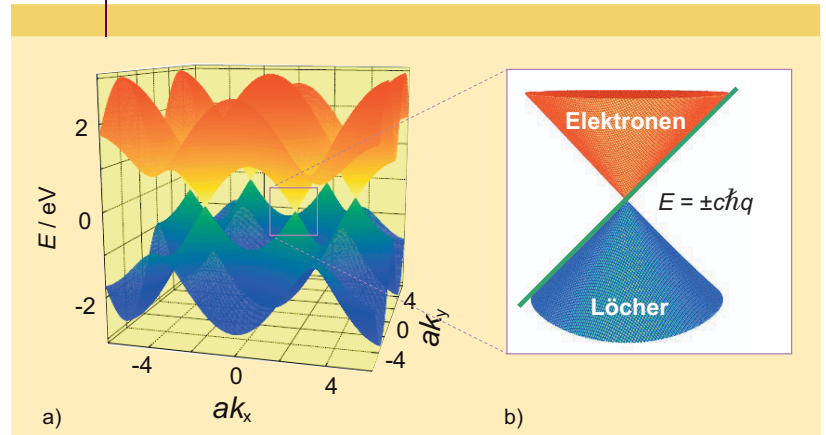
Ein weiterer Freiheitsgrad ergibt sich aus der Symmetrie des hexagonalen Wabengitters von Graphen: Es lässt sich in zwei trigonale Untergitter zerlegen, in Abbildung 3a durch die rot und grün markierten Atome angedeutet. Mit diesen zwei Untergittern korrespondieren zwei Punkte K und K' in der Brillouin-Zone (Abbildung 3b). Die Elektronenwellenfunktion besteht dann aus einer Superposition von zwei Zuständen um diese beiden K -Punkte.

Dieser zusätzliche topologische Freiheitsgrad heißt Chiralität (Händigkeit). Allgemein ist ein Kristallgitter genau dann chiral, wenn es keine Drehspiegelachse besitzt, also nicht durch eine Kombination aus einer Drehung um einen Gitterpunkt und nachfolgender Spiegeloperationen in sich selbst überführbar ist. Für das Graphen hat das grundlegende Folgen. Zur vollständigen quantenmechanischen Beschreibung der Ladungsträgerzustände ist nämlich ein sogenannter 4-Spinor nötig, dessen vier Komponenten den Ladungszustand (Elektron oder Loch) und die Chiralität wiedergeben.

Anstelle der Schrödinger-Gleichung für Teilchen mit Ruhemasse tritt dann die Dirac-Weyl-Gleichung chiraler, masseloser Fermionen. Diese Gleichung spielt in der Elementarteilchenphysik eine wichtige Rolle. Sie beschreibt dort den 4-Spinor von Neutrinos und Antineutrinos mit Spin, denn diese zeigen ebenfalls das Verhalten masseloser, chiraler Dirac-Fermionen. Im Graphen treten an die Stelle der Neutrinos die Elektronen, die Löcher formen dann die entsprechenden Antiteilchen. Anstelle des Spins tritt die Chiralität als zusätzlicher topologischer Freiheitsgrad.

Mit Neutrinos lässt sich nur äußerst schwer experimentieren, denn sie wechselwirken bekanntermaßen kaum mit Materie, brauchen also riesige, aufwändige Detektoren. Im Graphen tragen die relativistischen Teilchen und deren Antiteilchen dagegen eine elektrische Ladung, was sie einfachen Widerstandsexperimenten zugänglich macht. Mit

ABB. 4 | BANDSTRUKTUR VON GRAPHEN II



a) Schnitt durch die Bandstruktur und Vergrößerung eines Ausschnitts in b). An den K -Punkten oder Dirac-Punkten (b), wo sich Leitungsband (rot) und Valenzband (blau) berühren, herrscht lineare Dispersion. Dort gilt $E = \pm c\hbar|k|$, und die Ladungsträger verhalten sich als masselose, chirale Dirac-Fermionen.

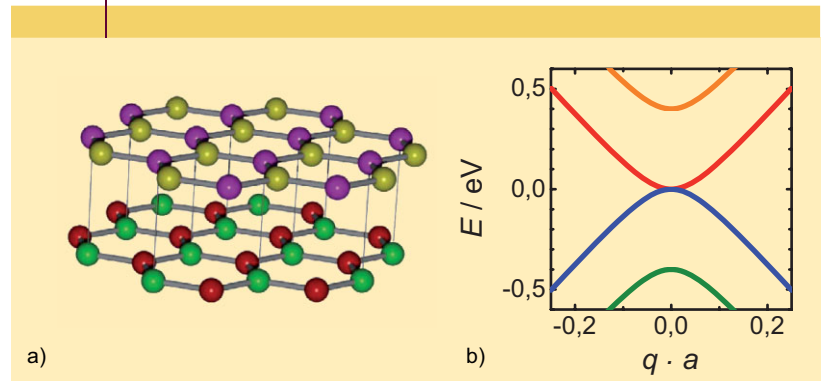
Graphen lassen sich also Phänomene der Quantenelektrodynamik untersuchen. Damit öffnet das relativ einfache Festkörpersystem ein völlig neues Fenster zu diesem Forschungsgebiet, das bisher allein der Hochenergiephysik zugänglich war.

Graphen gibt es nicht nur als rein zweidimensionale Einzellagen, sondern auch in einer doppelartigen Form. Abbildung 5a zeigt, dass jedes zweite Kohlenstoffatom dann jeweils eine zusätzliche, schwächere Kopplung $\gamma_1 \approx 0,4 \text{ eV}$ zu einem Atom in der darüber liegenden Lage hat. Dies führt zu einer angepassten Bandstruktur nahe den K -Punkten [14]:

$$E(q) = \pm \frac{1}{2} \gamma_1 \pm \sqrt{\frac{1}{4} \gamma_1^2 + c^2 \hbar^2 q^2} = \pm m_0 c^2 \pm \sqrt{m_0^2 c^4 + c^2 p^2}. \quad (6)$$

Das erste Vorzeichen bezieht sich auf die nun zwei möglichen Energiebänder des doppelartigen Systems, wobei das positive Vorzeichen eine symmetrische Wellenfunktion be-

ABB. 5 | DOPPELLAGIGES GRAPHEN



a) In doppelartigem Graphen ist jedes zweite Atom mit einem entsprechenden Atom in der Nachbarlage gekoppelt (dünne vertikale Linien), b) zeigt die hyperbolische Bandstruktur.

schreibt und das negative Vorzeichen eine asymmetrische. Das zweite Vorzeichen beschreibt wieder Elektronen mit positiven Energien und Löcher mit negativen Energien.

Das Valenz- und das Leitungsband stoßen nun also nicht mehr „spitz“, sondern zu Hyperbelformen abgerundet aufeinander (Abbildung 5b). Für die symmetrischen Zustände entspricht diese hyperbolische Dispersion dem Betrag nach der kinetischen Energie geladener, relativistischer und chiraler Teilchen mit Impuls $p = \hbar q$, die nun eine Ruhemasse m_0 haben. Diese „Masse“ der Quasiteilchen wird durch die Zwischenlagenkopplung bestimmt,

$$m_0 c^2 = \frac{1}{2} \gamma_1. \quad (7)$$

Der Wert der hier zur „Lichtgeschwindigkeit“ analogen Geschwindigkeit liegt nach wie vor bei $c \approx 10^6$ m/s. Sie wird wie beim Einzellagen-Graphen durch die Kopplung γ_0 der Atome innerhalb einer Lage bestimmt (siehe Gleichung 5). Die eigentliche relativistische Teilchengeschwindigkeit $v(q)$, die Gruppengeschwindigkeit, ergibt sich dann durch Ableitung der Energie in Gleichung (6) nach dem Impuls.

Sie ist nun also abhängig von Energie und Impuls, wie man das bei jeder relativistischen Geschwindigkeit erwartet:

$$v(q) = \pm \frac{c^2 p}{\sqrt{m_0^2 c^4 + c^2 p^2}};$$

für große Energien oder Impulse nähert sie sich asymptotisch der „Lichtgeschwindigkeit“ c an.

Graphen im Magnetfeld

Die relativistischen Eigenschaften der Ladungsträger in Graphen treten besonders deutlich bei Transportexperimenten in hohen Magnetfeldern hervor. Dort begegnen wir auch einer speziellen Form des berühmten Quanten-Hall-Effekts [3, 4]. Damit wir deren Zustandekommen verstehen, erinnern wir uns zunächst an die Grundlagen des Quanten-Hall-Effekts, wie er in zweidimensionalen Elektronengasen in konventionellen Halbleitern auftritt.

Wenn elektrische Ladungsträger sich in einer Ebene senkrecht zu einem Magnetfeld bewegen, dann werden sie durch die Lorentz-Kraft abgelenkt. Beim klassischen Hall-Effekt sammeln sich die elektrischen Ladungen dadurch an den Randkontakten (3–6 in Abbildung 1). Dabei baut sich ein elektrisches Feld quer zur eigentlichen Flussrichtung des Stroms auf, das die Lorentz-Kraft kompensiert. Die so entstehende Hall-Spannung wächst linear mit dem Magnetfeld und ist umgekehrt proportional zur Konzentration der elektrischen Ladungsträger.

1980 entdeckte Klaus von Klitzing (Nobelpreis für Physik 1985), dass der Hall-Effekt in einem zweidimensionalen Elektronensystem von diesem monotonen Verhalten abweicht. Bei tiefen Temperaturen zeigt die Hall-Leitfähigkeit σ_{xy} Stufen, deren Werte exakt den ganzzahligen Vielfachen der Quantenleitfähigkeit e^2/h entsprechen (Abbildung 6 links): Offensichtlich zwingt ein Quanteneffekt die fließenden Elektronen, ihre kinetische Energie einer wachsenden oder sinkenden Hall-Spannung sprunghaft anstatt kontinuierlich anzupassen.

Das senkrechte Magnetfeld sorgt, quantenmechanisch ausgedrückt, in zweidimensionalen Elektronensystemen für die Aufspaltung der quantenmechanischen Zustandsdichten in diskrete Energieniveaus. In konventionellen Halbleitern mit einer parabolischen Dispersion (Gleichung 2) führt dies zu äquidistanten Energieniveaus

$$E_N = (N + \frac{1}{2}) \frac{\hbar e}{m^*} B = (N + \frac{1}{2}) \hbar \omega_c,$$

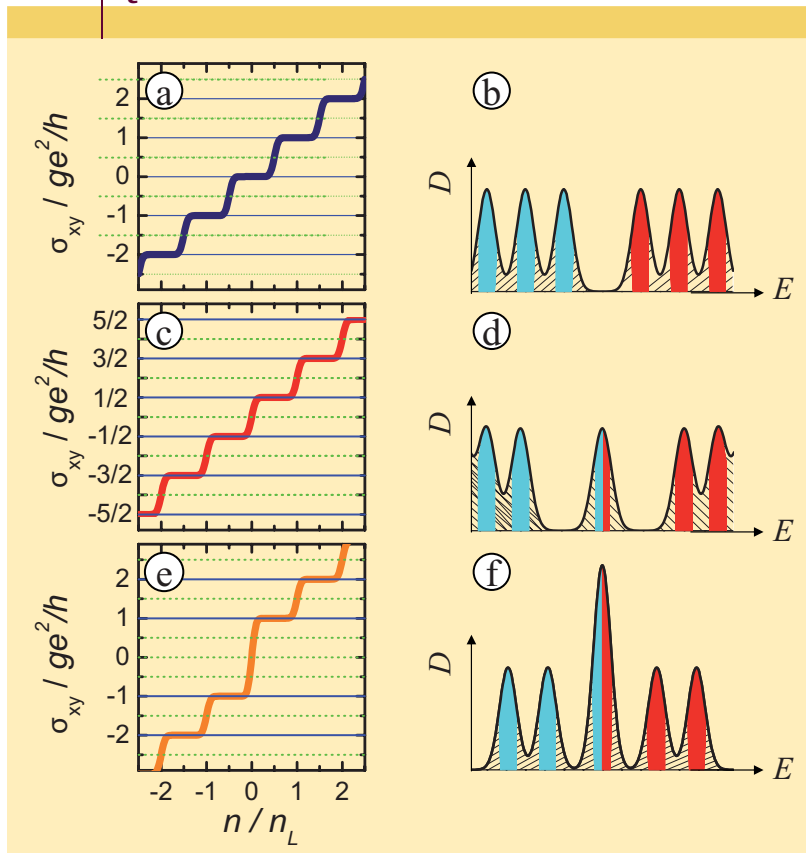
den sogenannten Landau-Niveaus. Der Abstand der Landau-Niveaus wird also gegeben durch die Zyklotronfrequenz

$$\omega_c = \frac{eB}{m^*}, \quad (8)$$

welche die klassische Kreisbewegung eines geladenen Teilchens mit Masse m^* im Magnetfeld beschreibt.

Jedes dieser N Energieniveaus kann zudem mehrere Quantenzustände beherbergen. Deshalb ergibt sich pro Niveau eine sogenannte totale Entartung:

ABB. 6 | QUANTEN-HALL-EFFEKT



Oben: Ganzzahliger Quanten-Hall-Effekt in konventionellen Halbleitern (a, b). Mitte: halbzahliger Quanten-Hall-Effekt in Einzellagen-Graphen (c, d). Unten: unkonventioneller ganzzahliger Quanten-Hall-Effekt in Doppellagen-Graphen (e, f). Links ist jeweils die Hall-Leitfähigkeit σ_{xy} als Funktion der relativen Landau-Niveau-Füllung n/n_L gezeigt, rechts die zugehörigen Zustandsdichten $D(E)$ der Landau-Niveaus für Löcher (blau) und Elektronen (rot).

$$n_L = \frac{geB}{b}, \tag{9}$$

g berücksichtigt die mögliche Entartung etwa durch einen „umklappbaren“ Spin oder dadurch, dass mehrere gleichberechtigte Extrema (Täler) in der Bandstruktur existieren. So gilt zum Beispiel $g=2$ in Heterostrukturen aus GaAs und AlGaAs sowie $g=4$ im Si-MOSFET. In einem realistischen zweidimensionalen Elektronengas sorgen zudem Störungen für Potentialfluktuationen und so für eine Verbreiterung der Niveaus (schraffierte Bereiche in Abbildung 6b, d, f).

Wächst das angelegte Magnetfeld, dann steigt proportional zu ihm die Anzahl der möglichen Zustände innerhalb eines Landau-Niveaus. Die Fermi-Energie legt nun fest, ob Elektronen zur Füllung dieser Quantenzustände zur Verfügung stehen. Mit wachsendem Magnetfeld sinkt sie von einem Landau-Niveau in das direkt darunter liegende – je stärker das Magnetfeld, desto weniger Elektronen bevölkern folglich die höheren Landau-Niveaus. Umgekehrt kann man die Fermi-Energie auch bei konstantem Magnetfeld durch die Landau-Niveaus nach oben schieben, indem man die Konzentration der Ladungsträger im Elektronengas erhöht, also im FET die Steuerspannung hochdreht.

Allgemein verändert sich also die relative Position der Fermi-Energie mit der Anzahl der gefüllten Landau-Niveaus

$$\frac{n}{n_L} = \frac{nb}{geB},$$

hier ist n die Flächendichte der Elektronen und n_L die in Gleichung (9) definierte Entartung der Landau-Niveaus.

Die bereits erwähnten Potentialfluktuationen sorgen nun dafür, dass es auch lokalisierte Elektronenzustände zwischen den Landau-Niveaus gibt – wie Sprossen einer dazwischen geklemmten Energieleiter. Solange die Fermi-Energie sich durch diese Zwischenzustände schiebt, bleibt die Hall-Spannung konstant (Abbildung 6 a). Sobald sie aber die Zustände in der Nähe eines Landau-Niveau-Zentrums erreicht, ändert sich der Hall-Widerstand zum nächsten Plateau. Die lokalisierten Zwischenzustände sind also entscheidend für das Auftreten quantisierter Hall-Plateaus (Abbildung 6 links). Ohne sie geht die Plateaubreite gegen Null und der Quanten-Hall-Effekt verschwindet.

Das ist die Basis des *ganzzabli*gen Quanten-Hall-Effekts (Abbildung 6 a und b). Bei ihm bestimmen ausschließlich Naturkonstanten die Hall-Leitfähigkeit der Hall-Plateaus [3, 4]:

$$\sigma_{xy} = i \cdot g \frac{e^2}{b}, \tag{10}$$

denn b ist die Plancksche Konstante und e die Elementarladung. Die ganze Zahl i entspricht der Anzahl der gefüllten Landau-Niveaus.

Bei Graphen handelt es sich um ein zweidimensionales System, also erwarten wir hier ebenfalls einen Quanten-Hall-Effekt. Dies ist auch der Fall, allerdings zeigt sich, dass die

QUANTEN-HALL-EFFEKT IN GRAPHEN

Wie in jedem zweidimensionalen Ladungsträgersystem spaltet auch das Energiespektrum der Ladungsträger in Graphen in einem Magnetfeld in diskrete, n_L -entartete Landau-Niveaus auf. Allerdings sorgt die lineare Dispersion (Gleichung 4) dafür, dass die Abstände der Landau-Niveaus nicht mehr äquidistant sind. Vielmehr gilt:

$$E_{N,\pm}^{(e,b)} = \pm \sqrt{2\hbar c^2 eB(N + \frac{1}{2} \pm \frac{1}{2})} \tag{11}$$

(Abbildung 6d). Positive Energien beschreiben die Landau-Niveaus für Elektronen im Leitungsband, negative Energien diejenigen der Löcher im Valenzband.

Der zusätzliche topologische Freiheitsgrad der Chiralität führt zu einer weiteren Aufspaltung der Landau-Niveaus ($\pm \frac{1}{2}$ unter der Wurzel). Deshalb befindet sich der Grundzustand sowohl bei Elektronen als auch bei Löchern exakt bei $E = 0$. Dieses Niveau können Elektronen und Löcher von gegengesetzter Chiralität je zur Hälfte füllen. Dadurch erscheint das erste Quanten-Hall-Plateau bereits bei halber Füllung des untersten Landau-Niveaus. In Graphen liegt also ein halbzahliges Quanten-Hall-Effekt vor, bei dem die Hall-Leitfähigkeit bei halbzahligem Vielfachen von ge^2/b quantisiert ist (Abbildung 6c).

Doppellagen-Graphen

In doppellagigem Graphen liegen die Landau-Niveaus der Ladungsträger bei:

$$E_N^{(e,b)} = \text{sgn}(N)\hbar\omega_c \sqrt{N(N-1)}$$

mit $N = 0, \pm 1, \pm 2, \dots$ (Abbildung 6f). Die Zyklotronfrequenz ω_c kann man analog zu Gleichung (8) aus der effektiven Masse berechnen, die für Doppellagen-Graphen der in Gleichung (7) definierten relativistischen Ruhemasse entspricht.

Auch hier ist wieder ein durch Elektronen und Löcher geteiltes Landau-Niveau bei $E = 0$ vorhanden. Allerdings entspricht dieses Niveau nun einem vollständig gefüllten Elektronenniveau und einem vollständig gefüllten Lochniveau, da $E = 0$ sowohl für $N = 0$ und $N = 1$ gilt. Das erste Quanten-Hall-Plateau erscheint dann wieder bei vollständiger Füllung des untersten Landau-Niveaus bei ge^2/b .

Im Gegensatz zu konventionellen Halbleitern (Gleichung 10) tritt allerdings kein Hall-Plateau für $i = 0$ auf (Abbildung 6e). Wie in Einzellagen-Graphen bleibt auch die Leitfähigkeit σ_{xy} selbst bei $n = 0$ endlich, obwohl sich dann weder Elektronen noch Löcher im Material befinden. Dieses außergewöhnliche Verhalten wird auch als unkonventioneller, ganzzahliger Quanten-Hall-Effekt bezeichnet.

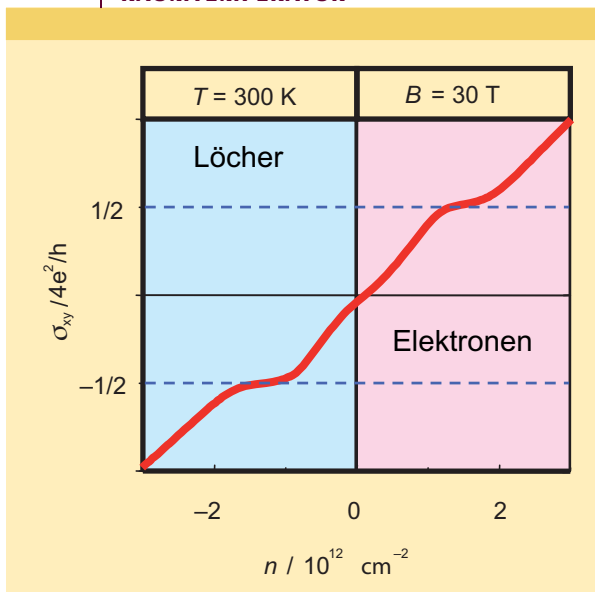
Hall-Leitfähigkeit bei *halbzahli*gen Werten quantisiert ist (Abbildung 6c, d). Es gilt:

$$\sigma_{xy} = (i + \frac{1}{2}) \cdot g \frac{e^2}{b}.$$

Die Landau-Niveaus besitzen nämlich eine zusätzliche Entartung, dafür sorgen der Elektronenspin und die schon diskutierte Chiralität des Graphens. Wie bei Si-MOSFET ist auch in Graphen $g=4$. Diese neue, halbzahlige Form des Quanten-Hall-Effekts ist das relativistische Analogon zum altbekannten, ganzzahligen Quanten-Hall-Effekt. Sie ist eine direkte Folge der eigenartigen Struktur, die die chiralen, masselosen Dirac-Fermionen den Landau-Niveaus aufprägen (siehe „Quanten-Hall-Effekt in Graphen“ oben).

Beim Doppellagen-Graphen beobachten wir wieder einen ganzzahligen Quanten-Hall-Effekt – allerdings einen unkonventionellen: Wie in Gleichung (10) treten bei $i = 1, 2, 3, \dots$ Hall-Plateaus für Elektronen auf, und auch bei $i = -1, -2, -3, \dots$ die entsprechenden Hall-Plateaus für Löcher [15]. Überraschenderweise fehlt jedoch das niedrigste Hall-Plateau bei $i = 0$, und auch die elektrische Leitfähigkeit bleibt

ABB. 7 | QUANTEN-HALL-EFFEKT BEI RAUMTEMPERATUR



Hall-Leitfähigkeit σ_{xy} eines Graphen-FET bei $T = 300 \text{ K}$ in einem Magnetfeld $B = 30 \text{ T}$ als Funktion der Ladungsträgerkonzentration n . Deutlich sichtbar sind die beiden quantisierten Hall-Plateaus für Löcher und Elektronen bei $\pm 1/2 (h/4e^2)$.

dort endlich. Dieses Verhalten kann darauf zurückgeführt werden, dass das niedrigste Landau-Niveau für Elektronen und Löcher bei derselben Energie $E = 0$ liegt (siehe „Quanten-Hall-Effekt in Graphen“).

Quanten-Hall-Effekt bei Raumtemperatur

Bis vor kurzem war der Quanten-Hall-Effekt ausschließlich bei Temperaturen unterhalb von 30 K messbar. Im Graphen ist der halbzahlige Quanten-Hall-Effekt jedoch selbst bei Raumtemperatur noch feststellbar (Abbildung 7) [7]. Diese überraschende Entdeckung ermöglichten die sehr hohen statischen Magnetfelder ($B > 33 \text{ T}$), die hier in Nijmegen und am amerikanischen National High Magnetic Field Laboratory in Tallahassee erzeugt werden können (siehe auch Physik in unserer Zeit 2007, 38(5), 242). Im doppellagigen Graphen verschwindet der ganzzahlige Quanten-Hall-Effekt dagegen auch bei so hohen Magnetfeldern oberhalb von 100 K.

Die hohen Magnetfelder sind wichtig, weil es für die Existenz des Quanten-Hall-Effekts unabdingbar ist, dass der Abstand zwischen zwei Landau-Niveaus die thermische Energie $k_B T$ deutlich übersteigt. Sonst überdecken die thermisch angeregten Ladungsträger einfach den Effekt. Die relativistische Landau-Niveau-Struktur in Graphen erfüllt diese Bedingung. Der Abstand zwischen den beiden niedrigsten Landau-Niveaus ist $\sqrt{2\hbar c^2 e B}$ nach Gleichung (11) in „Quanten-Hall-Effekt in Graphen“. Bei 30 T ist er mit etwa 200 meV in der Tat deutlich größer als die thermische Energie von 26 meV bei Raumtemperatur.

Diese Bedingung ist allerdings nicht hinreichend, um das Auftreten eines Quanten-Hall-Effekts bei Raumtemperatur erklären zu können. Zudem ist eine Persistenz, also ein Beharren, der zwischen den Landau-Niveaus lokalisierten Zustände bei solch hohen thermischen Energien notwendig. Ohne diese würden ja wie diskutiert die Plateaus in der Hall-Leitfähigkeit verschwinden. Diese Lokalisierung wird jedoch in allen uns bisher bekannten Halbleitern bereits bei Temperaturen von einigen 10 K vollständig vernichtet.

Eine mögliche Erklärung für diese Persistenz liegt in der einmaligen Potentiallandschaft des Graphens. Um seiner thermodynamischen Instabilität [11] entgegen zu wirken, nimmt ein zweidimensionaler Graphenkristall eine stark gewölbte Form ein [16, 17]. Das erzeugt die nötigen starken Potentialfluktuationen, die Lokalisierung selbst bei Raumtemperatur noch ermöglichen [18].

Neben seiner fundamentalen Bedeutung für die Grundlagenforschung wird der (klassische) Quanten-Hall-Effekt auch als extrem genauer Widerstandsstandard eingesetzt. Unsere neuesten Experimente haben bereits gezeigt, dass eine solche Quanten-Widerstandsmetrologie in Graphen im Prinzip möglich ist. Die bisher erreichte Genauigkeit von 10^{-5} liegt jedoch noch um einige Größenordnungen über dem Wert, der in GaAs-Heterostrukturen möglich ist [8]. Die Entdeckung eines Quanten-Hall-Effekts bei Raumtemperatur ebnet somit den Weg in Richtung eines möglichen Hochtemperaturstandards des elektrischen Widerstands. Natürlich ist ein Magnetfeld von 30 T nicht gerade realistisch für eine technische Anwendung. Allerdings ist die theoretische Aufspaltung der Landau-Niveaus aufgrund ihrer \sqrt{B} -Abhängigkeit bereits bei 2 T mit 50 meV deutlich höher als die thermische Energie von 6,6 meV bei einer technisch einfach realisierbaren Temperatur von 77 K, der Temperatur flüssigen Stickstoffs. Um dies zu erreichen, muss aber sicherlich die Qualität und Zuverlässigkeit von Graphen-FET noch deutlich verbessert werden.

Die in diesem Artikel beschriebenen Beispiele neuartiger physikalischer Phänomene sind nur ein kleiner Ausschnitt aus der experimentellen Grundlagenforschung an Graphen [19, 20]. Alle bisher gewonnenen Erkenntnisse sind sicher erst die Spitze eines Eisberges. Um Graphen vollständig zu begreifen und auf neue Technologien anzuwenden, bleibt uns noch einiges zu tun. In den nächsten Jahren wird dabei sicherlich noch mehr spektakuläre neue Physik entdeckt werden. Hohe Magnetfelder werden weiterhin eine wichtige Rolle spielen.

Zusammenfassung

Graphen besteht aus einer zweidimensionalen Lage von Kohlenstoff-Atomen mit einzigartigen Eigenschaften. Elektronen oder Löcher bewegen sich wie Elementarteilchen ohne Ruhemasse mit relativistischen Geschwindigkeiten durch den Kristall. Im doppellagigen Graphen erzeugt die Zwischenlagenkopplung eine Ruhemasse. Graphen eröffnet also der Physik kondensierter Materie ein Forschungsfeld, das bisher der Hochenergiephysik vorbehalten war. Das relativistische Ver-

halten der Ladungsträger in Graphen führt unter anderem zu einem halbzahligen Quanten-Hall-Effekt im einlagigen Graphen und einem unkonventionellen ganzzahligen Quanten-Hall-Effekt im doppellagigen Graphen. In hohen Magnetfeldern existiert der halbzahlige Quanten-Hall-Effekt sogar bei Raumtemperatur.

Stichworte

Graphen, Doppellagen-Graphen, Graphen-Transistor, Relativistische Elektronen, Dirac-Fermionen, halbzahliger Quanten-Hall-Effekt, Quanten-Hall-Effekt bei Raumtemperatur.

Danksagung

Dieser Artikel wäre ohne die Beiträge zahlreicher Kollegen nicht möglich gewesen. Wir danken, stellvertretend für die gesamte Manchester-Gruppe, Kostya Novoselov und Andre Geim für die fruchtbare Zusammenarbeit in den letzten drei Jahren. Misha Katsnelson (Uni Nijmegen) und Vladimir Fa'liko (Uni Lancaster) haben uns in unserem theoretischen Verständnis sehr weitergeholfen.

Literatur

- [1] K. S. Novoselov et al., *Science* **2004**, 306, 666.
- [2] K. S. Novoselov et al., *PNAS* **2005**, 102, 10451.
- [3] K. von Klitzing, G. Dorda, M. Pepper, *Phys. Rev. Lett.* **1980**, 45, 494.
- [4] B. Kramer, *Physik in unserer Zeit* **1997**, 28, 102.
- [5] K. S. Novoselov et al., *Nature* **2005**, 438, 197.
- [6] Y. Zhang et al., *Nature* **2005**, 438, 201.
- [7] K. S. Novoselov et al., *Science* **2007**, 315, 1379.
- [8] A. J. M. Giesbers et al., *Appl. Phys. Lett.* **2008**, 93, 222109.
- [9] S. Ijima, *Nature* **1991**, 354, 56.
- [10] H. W. Kroto et al., *Nature* **1985**, 318, 162.
- [11] N. D. Mermin, *Phys. Rev.* **1968**, 176, 250.
- [12] P. Blake et al., *Appl. Phys. Lett.* **2007**, 91, 063124.
- [13] P. R. Wallace, *Phys. Rev.* **1947**, 71, 622.
- [14] E. McCann, V. I. Fal'ko, *Phys. Rev. Lett.* **2006**, 96, 086805.
- [15] K. S. Novoselov et al., *Nature Physics* **2006**, 2, 177.
- [16] J. C. Meyer et al., *Nature* **2007**, 446, 60.
- [17] A. Fasolino, J. H. Los, M. I. Katsnelson, *Nature Materials* **2007**, 6, 858.
- [18] A. J. M. Giesbers et al., *Phys. Rev. Lett.* **2007**, 99, 206803.
- [19] A. K. Geim, K. S. Novoselov, *Nature Materials* **2007**, 6, 183.
- [20] A. K. Geim, A.H. Mac Donald, *Physics Today* **2007**, 80(8), 35.

Die Autoren



Uli Zeitler studierte Physik in Konstanz und Grenoble und promovierte in Grenoble. Nach Postdoc-Aufenthalten in Nijmegen und Nottingham und seiner Habilitation in Hannover ist er seit 2002 Universitär Hoofddocent (Associate Professor) für Condensed Matter Science am Hochfeldmagnetlabor der Radboud Universität Nijmegen.



Jos Giesbers studierte Physik in Nijmegen und promoviert seit 2005 am dortigen Hochfeldmagnetlabor.



Jan-Kees Maan ist seit 1992 Professor für Condensed Matter Science und wissenschaftlicher Direktor des Hochfeldmagnetlabors an der Radboud Universität Nijmegen.

Anschrift:

Dr. Ulrich Zeitler, High Field Magnet Laboratory, Institute for Molecules and Materials, Radboud University Nijmegen, Toernooiveld 7, NL-6525 ED Nijmegen. U.Zeitler@science.ru.nl.