

「ナノ界面技術の基盤構築」  
平成 19 年度採択研究代表者

平川 一彦

東京大学生産技術研究所・教授

ナノギャップ電極／ナノ量子系接合による新機能の創出

## 1. 研究実施の概要

単一分子や量子ドットなどナノ量子系の状態を金属電極により電氣的に制御・読み出すことができれば、演算や記憶を司る情報処理デバイスに革新をもたらすことができる。本研究では、精密に構造制御したナノギャップ電極により単一分子、InAs 量子ドット、グラフェンへの接合を作製し、金属接合を介した 1 電子の注入と金属／ナノ量子系接合が発現する新規な物理現象の解明とその高機能デバイスへの展開を目指し研究を行っている。

本年度は、特に、単一分子接合の作製に不可欠な原子レベルで制御されたギャップを有する電極作製技術として有効な通電断線法の精密化を行うとともに、エレクトロマイグレーション現象の素過程の解明への糸口を見いだした。また、単一量子ドットに強磁性電極、超伝導電極を形成したときの新規な伝導現象やスピン相関伝導などに関して、新規な物理とデバイス応用に関する知見を得た。

## 2. 研究実施内容

(文中にある参照番号は 4. (1)に対応する)

本研究では、ナノ量子系として、金属と整合性のよい単一分子、InAs 量子ドット、無機ナノ微粒子、グラフェンに着目し、金属電極との接合の作製と界面の制御を行うとともに、電極からの 1 電子 (または 1 電子対) の注入とナノ量子系が発現する新規物理現象の解明とそのデバイス応用について研究を行うことを目的としている。

しかし、単一分子や量子ドットなど、bottom-up 的なナノ量子系のサイズは非常に小さく (典型的には 1 nm～数十 nm)、かつ分子や量子ドットの位置がランダムであるため、金属電極によりナノ量子系にアクセスすることは非常に困難である。さらに、金属／ナノ量子系接合界面のミクロスコピックな構造は、系の量子力学的な結合の強さを支配する重要な

要因であるにもかかわらず、ほとんど未解明な状態にあり、伝導特性は素子毎に大きく変動する。また、グラフェンにおいては、その特異な性質が解明され始めているが、金属接合の影響やその制御についてはほとんど調べられていない。

このような状況をふまえ、本年度は本プロジェクトの初年度であり、全研究を通しての基礎となる安定したナノギャップ電極／ナノ量子系接合を高い歩留まりで作製するための基礎を確立することを中心に研究を遂行した。

## (1)再現性・安定性に優れたナノギャップ金属電極／単一ナノ量子系接合作製のための基盤技術の確立

### ①原子レベルで制御されたナノギャップ電極の形成技術の確立

従来、原子レベルの金属ナノギャップ電極の形成技術として最もよく用いられる通電断線法は、エレクトロマイグレーション効果を利用して金属を断線させる方法であるが、ナノメートルオーダーの金属接合で通電断線させることにより、原子が接合よりはずれていくときの条件を詳細に調べている。その結果、我々はエレクトロマイグレーションの素過程が、金属粒界における単一電子から単一原子へのエネルギー交換が大きな役割を果たしていることを強く示唆する実験データを得つつある。理論面でも、エレクトロマイグレーション過程によるナノギャップ制御の機構を解明するため、実験系を反映する簡単な理論モデルを構築し、開放系の第一原理計算を適用してナノギャップ領域における原子の拡散メカニズムを検討しつつある。

さらに断線過程にある接合の伝導度を精密に測定するための、新しい電圧印加プロトコルの考案も行い、1原子のスイッチング動作が明瞭に観測できるまで、精密な断線制御が可能になった。また、強磁性体であるNiについても通電断線法を適用し、ほぼ自動フィードバック制御で原子レベルのギャップを有する接合を形成する技術を確立した。

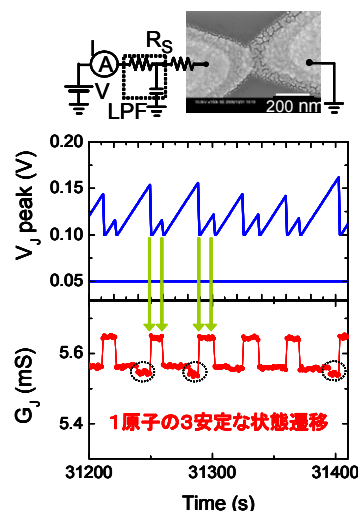


図1 接合伝導度の測定時の印加電圧を低く抑える新しい電圧印加法により、ナノ接合領域における1原子の3安定な状態遷移も明瞭に観測できるようになった。

### ②InAs 量子ドットの位置と形状の制御

現在、量子ドット／金属接合の歩留まりが低い理由が、自己組織化結晶成長プロセスにおけるドット位置のランダムさである。本研究では、結晶成長前に電子ビーム露光法などにより基板にピットを形成することにより、ドットの位置制御を行った。分子線エピタキ

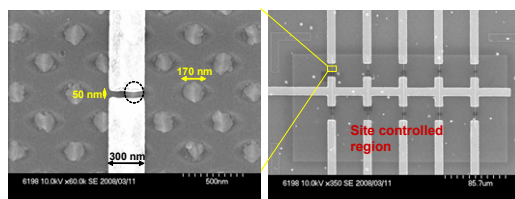


図2 位置制御された InAs 量子ドットを用いて作製した単一量子ドットトランジスタ

シーによる GaAs バッファ層の成長条件の最適化により、場合によってはほぼ 100%の確率でナノギャップ中に量子ドットが入るような試料の作製ができるようになりつつある。

## (2) 金属電極／単一ナノ量子系が発現する新規物理の解明

単一ナノ量子系／金属電極の接合においては、ナノ量子系の電子の軌道、スピン、電子間相互作用、電子-格子相互作用や、金属電極が持つ特徴（超伝導、強磁性など）により、多彩な物理が発現すると考えられる。そのような金属電極／ナノ量子系が発現する新規な物理の探索・解明を行っている。

### ① InAs 量子ドット中の電子スピンと電極の相互作用

自己組織化 InAs 量子ドットと電極の結合が強い場合には、ドット内の電子と電極内の電子の相関による近藤効果が現れる。我々は、InAs 量子ドット中の軌道量子化エネルギーや帯電エネルギーが約 10 meV を大きいことに注目し、量子ドットと電極との量子力学的結合を強くした試料を準備したところ、80 K を超える非常に高い近藤温度を観測することに成功した。リソグラフィを用いて作製される単一電子トランジスタ系では一般に近藤温度は 1 K 以下であり、今回観測された近藤温度は、人工的なナノ構造で現れる近藤効果では世界最高の値である（原著論文：1）。

さらに、量子ドット中の電子と強磁性電極の相互作用を明らかにするために、強磁性金属/InAs 界面の向上をはかるため、強磁性体金属としてコバルト、鉄、ニッケル、パーマロイの 4 種類の金属で電極を作製し比較を行った。現時点ではニッケルを使用した場合に最も界面抵抗が低く、素子特性も優れていることがわかった。

このようにして作製した強磁性ナノギャップ電極を有する InAs 単一量子ドット素子を作製し、そのスピン伝導を観測した（原著論文：2, 3）。その結果、トンネル磁気抵抗効果（TMR）が明瞭に観測され、強磁性電極から量子ドットへのスピン偏極電流の注入およびスピン依存伝導の検出が実現できた。さらに TMR のゲート電圧依存性およびソースドレイン電圧依存性の測定から、量子ドットにおけるスピン蓄積が生じている可能性が高いことを実験的に示した。

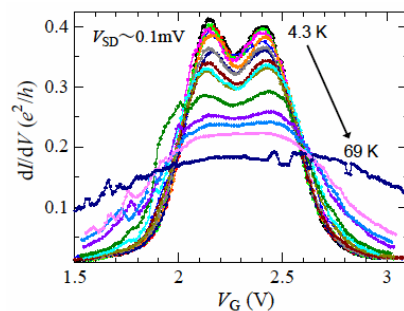


図3 85 K という高い近藤温度を示す量子ドット／金接合試料の線形伝導度の温度依存性（近藤谷付近）

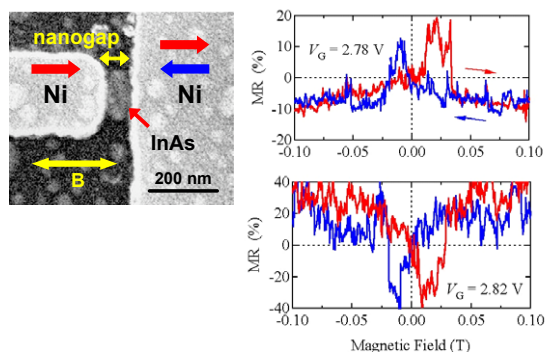


図4 Ni ナノギャップ電極を形成した InAs 量子ドット接合のトンネル磁気抵抗（TMR）。ゲート電圧により TMR の大きさや極性が変化する。

## ②ナノギャップ接合における超伝導電流の観測

本年度は、Al を電極に持つ試料における超伝導電流の観測を目指した（原著論文：4）。Al 電極の試料では帯電エネルギーが大きいため超伝導電流が極めて小さいことが予測されていた。しかし狭い Al ナノギャップ電極を再現性よく作製することにより、帯電エネルギーが小さい強結合ドットを実現した結果、超伝導電流を観測することに成功した。これは帯電エネルギーが小さくなったため、量子ドット中で 2 個以上の電子数の揺らぎが許容されクーパー対トンネルが可能になったためである。この成果は本プロジェクトで目標にするクーパー対からの量子もつれ光子対生成実現に向けて重要な一歩である。

しかし臨界電流の大きさは超伝導ギャップから期待される値よりもはるかに小さく、超伝導材料種の種類や界面制御の余地がある。また、臨界電流の大きさが量子ド

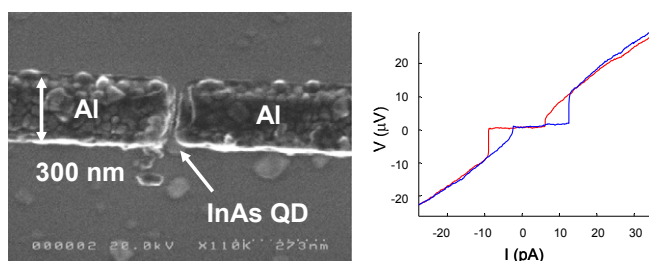


図5 (左) Al 電極を有する単一 InAs 量子ドット接合の走査型電子顕微鏡写真。(右) InAs 量子ドットで観測された典型的な超伝導電流特性。

ットに印加するゲート電圧にたいして、クーロン振動と同様の振動的な変化を示すという興味深い現象も観測された。今後、超伝導/量子ドット界面の改善を図りながら、超伝導電流の位相、超伝導電流と近藤効果の相関、超伝導/量子ドット/常伝導あるいは強磁性など異種電極を有する試料で特有な多体相関現象を調べて行く予定である。

## ③ナノギャップ接合の伝導ダイナミクスの解明に向けて

ナノギャップ電極によりプローブされる分子や量子ドットを介した伝導のダイナミクスを、波形整形したテラヘルツ電磁波により時間領域で測定できる系を構築しつつあり、現在、光伝導アンテナを用いた高輝度で 3 THz までの帯域を有する THz 電磁波の発生に成功した。さらに ZnTe を用いて数十 THz の帯域の電磁波を発生させる準備を行っている。

一方、理論面では分子振動と電子とが強く相互作用する系についての基本的な性質を研究した（原著論文：5-7）。電子が電極から分子内に遷移、あるいは分子から電極へと遷移するとき、中性状態とイオン状態との分子構造の違いを反映して、多数の振動量子が放出される。このため、散逸されるエネルギー分布は、「ポーラロン障壁」の高さを決め、バイアス電位がこのエネルギー平均値を越えないと電子移動が抑制されることが見いだされた。また、これに基づきコヒーレントな電子遷移から散逸的な電子遷移への移行の解析法についても手がかりが得られた。

### 3. 研究実施体制

#### (1) 東京大学生産技術研究所 I グループ

- ① 研究分担グループ長: 平川 一彦 (東京大学、教授)
- ② 研究項目: 「ナノギャップ電極/量子ナノ系接合の作製とその物理と応用の研究」
  - ・ 分子接合作製技術の高度化
  - ・ 量子ドットの位置・形状制御と金属との接合界面の電子状態の解明
  - ・ 分子接合/量子ドット接合の伝導ダイナミクスの解明と制御
  - ・ 単一分子接合による新機能の創出

#### (2) 東京大学生産技術研究所 II グループ

- ① 研究分担グループ長: 町田 友樹 (東京大学、准教授)
- ② 研究項目: 「量子ドット/強磁性電極接合の物理と応用の研究」
  - ・ 強磁性/半導体界面の向上
  - ・ トンネル磁気抵抗効果の制御
  - ・ 単一量子ドットスピバルブ素子における電子数・軌道状態制御
  - ・ スピンフィルター効果の実現

#### (3) 東京大学工学系研究科グループ

- ① 研究分担グループ長: 大岩 顕 (東京大学大学院、講師)
- ② 研究項目: 「超伝導ナノギャップ接合の物理とスピンを利用した情報処理技術の研究」
  - ・ 量子ドット/超伝導・強磁性界面の電子相関に起因する新規現象の観測とその解明
  - ・ 既存試料での超伝導電流の観測

#### (4) 東京理科大学・物質材料研究機構グループ

- ① 研究分担グループ長: 高柳英明 (東京理科大学、部長)
- ② 研究項目: 「グラフェン/超伝導接合の物理とデバイス応用」
  - ・ 超伝導/グラフェン接触界面の作製とその特性解明
  - ・ SQUID の開発
  - ・ 高感度光子素子の開発

#### (5) 早稲田大学グループ

- ① 研究分担グループ長: 塚田 捷 (早稲田大学大学院、客員教授)
- ② 研究項目: 「分子およびグラフェン架橋系の機能探索」
  - ・ 電極結合とコンダクタンス
  - ・ 架橋系の光電効果と発光

#### 4. 研究成果の発表等

##### (1) 論文発表(原著論文)

###### 1. 単一量子ドット接合の伝導に関する論文

- (1) K. Shibata and K. Hirakawa: "High Kondo temperature (TK ~ 80 K) observed in self-assembled InAs quantum dots laterally coupled to nanogap electrodes", submitted to Applied Physics Letters.
- (2) K. Hamaya, M. Kitabatake, K. Shibata, M. Jung, M. Kawamura, S. Ishida, T. Taniyama, K. Hirakawa, Y. Arakawa, and T. Machida: "Oscillatory changes in the tunneling magnetoresistance effect in semiconductor quantum-dot spin valves", Physical Review B, vol. 77, pp. 081302-1~4 (2008).
- (3) K. Hamaya, M. Kitabatake, K. Shibata, M. Jung, M. Kawamura, K. Hirakawa, T. Machida, T. Taniyama, S. Ishida, and Y. Arakawa: "Kondo effect in a semiconductor quantum dot coupled to ferromagnetic electrodes", Applied Physics Letters, vol. 91, pp. 232105-1~3 (2007).
- (4) K. Shibata, C. Buizert, A. Oiwa, K. Hirakawa, and S. Tarucha: "Electron transport through single self-assembled InAs quantum dots coupled to superconducting nanogap electrodes", Physica Status Solidi (c), vol. 5, No.1, pp.178-181 (2008).

###### 2. 分子伝導機構に関する論文

- (5) M.Harada, M.Tsukada and N.Sasaki: "Energy Dissipation Mechanism of Non-Contact Atomic Force Microscopy for Movable Objects", e-J. Surf. Sci. and Nanotechnol., in press.
- (6) K.Tagami and M.Tsukada: "Simulated non-contact AFM images of an alcohol molecule in an alkanethiol self-assmbled monolayer", Nanotechnology **18**, 084005 (2007).
- (7) A.Masago, S.Watanabe, K.Tagami and M.Tsukada: "Simulation of the energy dissipation image in noncontact atomic force microscopy of adsorbed methyl on Si(100) surface", J.Phys. Conf. Ser. pp. 785-789 (2007).