

## 研究課題別事後評価結果

1. 研究課題名: ナノギャップ電極/ナノ量子系接合による新機能の創出

2. 研究代表者名及び主たる研究参加者名(研究機関名・職名は研究参加期間終了時点):

研究代表者

平川 一彦(東京大学生産技術研究所 教授)

主たる共同研究者

大岩 颯(東京大学大学院工学系研究科 講師)(平成 19 年 10 月～)

町田友樹(東京大学生産技術研究所 准教授)(平成 19 年 10 月～)

高柳 英明(東京理科大学総合研究機構 理事・教授)(平成 19 年 10 月～)

((独)物質・材料研究機構 主任研究員)(平成 20 年 4 月～)

塚田 捷(東北大学原子分子材料科学高等研究機構 教授)(平成 19 年 10 月～平成 23 年 3 月)

田村 宏之(東北大学原子分子材料科学高等研究機構 助教)(平成 24 年 4 月～)

3. 研究実施概要

精密に構造制御したナノギャップ電極により、単一分子や InAs 量子ドットへの接合を作製し、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た。特に本研究では、極微細な bottom-up 的ナノ構造にソース・ドレイン・ゲートの3電極を形成し、トランジスタとするための超微細加工技術の高度化が重要な要素であった。さらに、作製されたナノギャップ電極/ナノ量子系接合が発現する物理を理解し、その伝導をいかに制御し、機能を発揮させるかが大きな目標であった。以下に、サブテーマごとに説明する。

(1) 単一分子トランジスタ作製基盤技術の高度化と分子を介した量子伝導

金属ナノ接合に通電して断線させ、金属ナノギャップ電極を作製し(通電断線法)、単一分子トランジスタ(single molecule transistor; SMT)を作製する技術の高度化を行った。通電断線過程において、金属ナノ接合が数十 nm 以上の太さの場合にはジュール発熱により金属粒界が融解して断線するが、断面が 100 原子以下の極微細領域に入ると通電しても発熱はせず、1電子がそのすべての運動エネルギーを1個の原子に受け渡して原子が外れていく過程に移行することを世界で初めて発見した。この知見は、通電断線を1原子レベルで制御可能にしたのみならず、VLSI超微細配線において、金属材料や動作条件の違いによって起こり得る断線を予見する方法としての応用も可能と考える。この精密な通電断線法を用いることにより、金を電極材料として用いた場合には従来の約 5~10 倍の歩留まりで SMT を作製できるようになった。さらに、通電断線時の発熱を制御することにより、融点の高い金属を電極とする SMT も作製できるようになり、世界で初めて強磁性 Ni 電極を有する C60 SMT の作製に成功した。

SMT における量子伝導においては、平川グループで実験を行い、塚田・田村グループで第一原理計算を行うという役割で、研究を遂行した。特に、金属電極間で分子が振動することによる Franck-Condon 効果が伝導に大きな影響を与えることを見いだしたほか、強磁性 Ni 電極-C60 SMT においては Ni 電極と C60 分子の混成が spin-filtering 効果や大きな負のトンネル磁気抵抗をもたらすことを見いだした。この成果は原子スケールの電子状態が分子伝導に大きな影響を与えることを示している。また、ポルフィリン分子を金電極で挟んだ SMT においては、電圧印加により分子配置の状態を制御し、分子トランジスタに記憶機能を持たせることができることを示した。

(2) 単一量子ドットトランジスタ作製に関する基盤技術の確立と新規物性の開拓

金属を接触させても空乏化しないという特異な半導体である InAs に着目し、自己組織化 InAs 量子ドットにナノギャップ電極を形成した単一量子ドットトランジスタの作製とその新規物性の開拓の研究を行った。

まず、量子ドットの位置のランダムさにより再現性よくトランジスタを作製できないという問題に対し、位置制御量子ドットの成長に取り組んだ。特に、AFM や電子ビーム露光法を用いて作製したナノパターンを保ったまま、分子線エピタキシーにおいて低温で表面の酸化物を除去する方法を考案し、良質な位置制御量子ドットを成長することに成功した。また成長した位置制御ドットを用いて、高い歩留まりで単一量子ドットトランジスタを作製することに成功した。

単一 InAs 量子ドットの量子伝導においては次の成果が得られた。超伝導と近藤効果はスピン相関伝導の観点から相補的な関係にあるが、81K という人工構造では最も高い近藤温度の観測がなされた。また、超伝導における電子伝導の位相が明らかにされるとともに、近藤効果により超伝導電流が促進されることなどが見いだされている。さらに、InAs 量子ドット内のスピン軌道相互作用や  $g$  因子の大きさをゲート電極により制御できることを見いだした。この成果は、電子スピンを用いた量子情報処理技術に大きな可能性をもたらすものである。また、強磁性電極を用いた量子ドットトランジスタが数十～数百%のトンネル磁気抵抗を示すことを見だし、単一電子トランジスタでは初めてスピントランジスタを実現することに成功した。

自己組織化 InAs 量子ドットは、数～数十 meV の大きな軌道量子化エネルギーと帯電エネルギーを有している。このエネルギーの大きさは、フォトンエネルギーに換算するとテラヘルツ (THz) 電磁波の領域になり、量子ドット中の電子と THz 電磁波の相互作用が新しい伝導物性の制御法をもたらすと期待されているが、電子系と THz 電磁波を強く結合させることで THz 光支援トンネル効果を観測し、THz 電磁波で電子伝導を制御することに成功した。

#### 4. 事後評価結果

##### 4-1. 研究の達成状況及び得られた研究成果(論文・口頭発表等の外部発表、特許の取得状況等を含む)

ナノギャップ電極は、量子トランジスタの必須技術として、また、究極の分子物性を精査する目的で化学、物理の両方より多くの研究アプローチがなされている基盤的な技術である。中でも扱いにくいナノギャップ金属電極を取り上げて、歩留まりの高い作製技術や素過程のメカニズム解明に成功した事は高く評価できる。また、量子ドットの位置制御技術とともに、この技術基盤があつてこそ初めて可能となった実験結果として、バリスティック領域の原子移動のメカニズムの提唱や単一分子・量子ドットのトランジスタ構造の実現、スピン-軌道相互作用・ $g$  因子のゲート電圧による制御、THz 波照射下での光支援トンネル効果の観測など多くの新規な物理現象を見出した。これらの多くは単純な予想からはずれており、意義深いものである。ただ、フラーレンやポルフィリンなど単一分子トランジスタの試みは、研究期間の後半に結果が出始めたものであり、より詳細な検証が必要である。今後、分子のバリエーションを広げて研究の拡充が計られることを期待したい。また、当初の課題に上がっていたグラフェン/超伝導接合系の研究には大きな進展が見られなかった。

グループ間の連携については、前半はそれが見えにくかったものの、後半にかけて材料の提供や探索分野の分担など効果的な運営で進められた。また、領域内他グループとの共同研究は2件について試みられ、うち、1件は成果に結びつつある。

原著論文発表はRPLや Nano Letters など物理系の有力誌を含め 75 件の発表がなされ、妥当な成果である。また、CREST期間に、ナノ量子構造に関する国際会議を2回開催し、成果発信にも努めた。一方、特許出願は、ナノギャップ電極の製法関連技術 1 件のみで、デバイスに関わる研究としては不十分と言わざるを得ない。当該分野は競争相手も多いと考えられるため、今後は、機能、材料、あるいは計測法などでの知的財産化に留意して研究されることを望みたい。

##### 4-2. 研究成果の科学技術や社会へのインパクト、戦略目標への貢献

歩留まりの高いナノギャップ電極を再現性良く作成する技術は、本研究課題の基盤となる成果であり、これをベースとした量子物理現象の解明に向けた道を広げたことで、この分野における重要な科学的貢献を果たしたと言える。ただ、新規物理現象の提示については、多くが研究後半に見出されたために、未だ萌芽的データに留まっている感があり、実際に大きなインパクトを示すところまで詰められていないのは残念である。今後の展開

に大いに期待したい。

本研究は基礎研究を主体として進められたこともあって、現状で直ちに社会的インパクトを与えるところまでには至っていないが、新物理現象、新デバイスの研究が応用の方向に順調に拡大すれば、大きなインパクトを与える可能性は十分に期待できる。なお、ナノギャップ作成の中で見出された金属断線の新しいメカニズムは、3 項でも述べたとおり、VLSI における配線の信頼性を保証する技術につながるものとして注目されることを付け加えておく。

#### 4-3. 総合的評価

難度の高いナノギャップ金属電極に正面から取り組み、歩留まりの高い作成技術や作成素過程の解明に成功し、これをベースに多くの新規物理現象を提示したことを高く評価する。

ナノギャップ電極の作製法の再現性にかかなりの時間を費したが、結果的にはこれが後半の研究の伸びを支える土台となった。”急がば回れ”の研究経過を辿ることになった。しかし、終盤に得られた成果はナノ界面における基盤技術としては質・量とも秀逸である。

なお、デバイスへの応用では、ポスト CMOS のようなストーリーが社会的インパクトを急速に失いつつあることを考えると、今回の成果を生かす道をより広い視野で見直すことも必要ではないかと思われる。