

「高度情報処理・通信の実現に向けたナノファクトリーとプロセス観測」
平成 14 年度採択研究代表者

石橋 幸治

(独)理化学研究所 主任研究員)

「カーボンナノ材料を用いた量子ナノデバイスプロセスの開発」

1. 研究実施の概要

先端リソグラフィ技術では作製が困難なナノスケールのサイズを持つカーボンナノチューブやフラーレンを用いて、単電子デバイスや量子コンピューティングデバイスなど、トランジスタとは相補的な新機能ナノデバイスの作製プロセスを開発し、その動作を実証することを目的とする。これまで、単層カーボンナノチューブを用いて単電子トランジスタ、単電子インバータ、単電子 XOR ゲートなどの基本的な単電子デバイスを作製するプロセスを開発し 10K 程度までの温度での動作実証に成功した。同時に、高温動作の問題点が量子ドットのサイズにあるのではなく、トンネル障壁の高さが十分高くないことに原因があることがわかり、新たなトンネル障壁形成技術の開発に取りかかっている。カーボンナノチューブ量子ドットは、4電子で閉殻する電子殻構造を持つ1次元人工原子として振る舞うことを初めて観測し、人工原子としての離散準位間隔が周波数に換算してテラヘルツ領域にあること、さらに磁場を印加することにより準位が分裂するゼーマン効果の直接観測に初めて成功した。カーボンナノチューブ人工原子はスピン型量子ビットや超高感度テラヘルツ検出器として大変有望な候補であることを見出した。実際、カーボンナノチューブ人工原子のテラヘルツ波応答を調べ、テラヘルツ波を光子として検出するテラヘルツ光アシストトンネルの観測に、量子ドットでは世界で初めて成功した。

カーボンナノチューブ量子ドットは人工原子として振る舞うことがわかり、単電子デバイスや電荷型・スピン型量子コンピューティングデバイスとしてすばらしい資質を持っていることを明らかにすることができた。しかし、課題はやはりデバイスプロセスのさらなる信頼性と再現性の向上である。これを解決するために、特に高真空下での高品質ナノチューブ成長技術の開発とそのデバイスプロセスの開発を引き続き行うとともに、量子コンピューティングデバイスとしてのダイナミックな動作やテラヘルツ量子検出器への応用を追求してゆきたい。

2. 研究実施内容

本研究では、先端リソグラフィ技術では作製が困難な直径を有しながらも、現状の微細加工技術で1本にコンタクトが可能な長さを持つカーボンナノチューブの独特な構造に着目し、量子ナノデバイスへ応用するためのデバイス技術の開発とその実証を目的としている。1本のカーボンナノ

チューブ上にソース・ドレイン金属を蒸着すると2つの金属間のナノチューブが1個の量子ドットとなることを見出してきた。そしてそれは、1次元箱型ポテンシャルに閉じこめられた人工原子としてモデル化できることを明らかにした。ここで、人工原子としての重要なエネルギースケールである1電子帯電エネルギーや量子化離散準位間隔は、サブミクロンサイズの標準的な量子ドットに比べて1桁から、場合によっては2桁程度大きく、周波数に換算してサブミリ波からテラヘルツ波の領域にある。本年度はこのことに着目し、カーボンナノチューブ量子ドットのテラヘルツ波に対する応答を調べる研究を行った。また、デバイスプロセスに関して、電子線照射によってフラーレン薄膜が金属化することを光電子分光法により見出していたが、今年度は実際に電流を流すことを試みた。

(1) カーボンナノチューブ量子ドットのテラヘルツ波応答

液体ヘリウム温度でカーボンナノチューブ量子ドットにテラヘルツ波を照射しそのクーロンブロック特性への影響を調べたところ、2つの異なる応答を観測した。1つは、量子ドット内の電子がテラヘルツ波の光子を吸収してドレイン電極へとトンネルすることにより(図1b)、クーロンブロック状態にある場合でも電流がピークとして観測される、いわゆる光アシストトンネルを、量子ドットでは世界で初めて観測することに成功した(図1c)。もう一つの応答は、テラヘルツ波を照射すると、クーロンピークがシフトする効果である。これは、テラヘルツ波を照射することにより、カーボンナノチューブ量子ドット近傍のトラップ準位が励起され、その電荷状態が変わり、それを量子ドットが高感度電ロメータとして観測したものと考えられる。このように、同じように作製されたカーボンナノチューブ量子ドットにおいて異なる応答を示すの

は、量子ドットデバイスがアンテナ構造を持たないために、照射するテラヘルツ波との結合状態が試料ごとに異なるためであると考えられる。

(2) 電子線照射したフラーレン薄膜の電気伝導

前年度はピーナッツ型フラーレンポリマーの電子輸送特性の温度依存性(400-9K)を調べた結果、400-90Kまでは熱的機構が支配し、その活性化エネルギーは0.06 eVと非常に低くカーボンナノチューブ並みであることを見出した。今年度は、このポリマーを用いた電界効果形トランジスタを作製し、素子特性を評価した。その結果、n型のトランジスタ特性を示すことがわかった。活性化エネルギーはまだ高く実用域には至っていない。基板の種類を変えて、四端子測定の結果、CsI基板、サファイア基板では、電子輸送特性の活性化エネルギーは0.06-0.03 eVと低かったが、SiO₂/Si基板では、0.22 eVと高く、基板依存性がFET特性に影響を及ぼしていることがわかった。

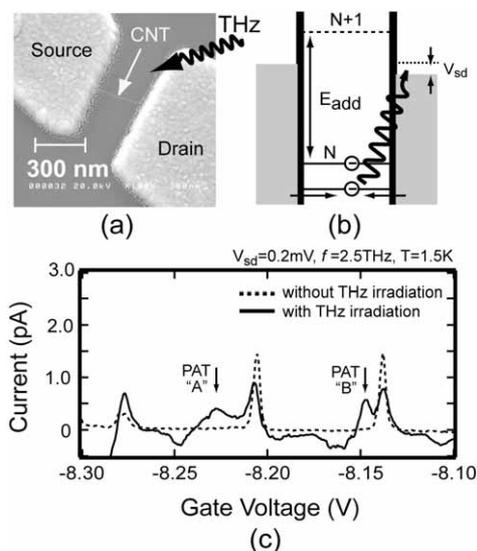


図1：テラヘルツ光アシストトンネルのメカニズムと実験結果

3. 研究実施体制

(1)「デバイスプロセス開発」グループ

①研究者名

石橋 幸治(理化学研究所 主任研究員)

②研究項目

- ・高品質、位置制御カーボンナノチューブ成長・デバイスプロセス技術の開発
- ・カーボンナノチューブ・単一分子複合デバイスプロセスの開発
- ・カーボンナノチューブ・GaAs/AlGaAs2次元電子ガス複合デバイスプロセスの開発
- ・カーボンナノチューブ2重量子ドットの単一電子輸送現象の解明と電荷型量子ビットへの応用
- ・カーボンナノチューブ単一量子ドットの単一電子輸送現象の解明とスピン型量子ビットへの応用
- ・カーボンナノチューブ量子ドットのテラヘルツ応答

(2)「フラーレン重合」グループ

①研究者名

尾上 順(東京工業大学 助教授)

②研究項目

- ・ピーナッツ型 C₆₀ ポリマーの電子輸送特性評価およびデバイス応用
- ・ピーナッツ型 C₆₀ ポリマーの光電子分光研究
- ・ピーナッツ型 C₆₀ ポリマーの電子状態計算
- ・ナノ分光顕微鏡計測装置の開発
- ・STM チップによる電子線重合フラーレンポリマーの創製
- ・低次元ピーナッツ型 C₆₀ ポリマー構造の創製と局在量子物性探索

4. 研究成果の発表等

(1) 論文発表(原著論文)

- B. P. Zhang, K. Shimazaki, M. Suzuki, T. Shiokawa, K. Ishibashi, “Fabrication of luminescent carbon nanotubes”, *Microelectronic Engineering*, **83**, 1736-1739 (2006)
- S. Moriyama, T. Fuse, M. Suzuki, and K. Ishibashi (invited conference paper), “One-Dimensional Shell Structures and Excitation Spectrum in Single-Wall Carbon Nanotube Quantum Dots”, *Jpn. J. Appl. Phys. Vol. 45*, No. 4B, 3633-3637 (2006).
- T. Shiokawa, B. P. Zhang, M. Suzuki, K. Ishibashi, “Low pressure chemical vapor deposition of single-wall carbon nanotubes”, *Jpn. J. Appl. Phys.* **45** (23) L605 - L607 (2006)
- M. Shimizu, S. Moriyama, M. Suzuki, T. Fuse, Y. Homma, K. Ishibashi, “Statistical characterization of dispersed single-wall carbon nanotube quantum dots”, *Journal of Physics:*

Conference Series, **38**, 17-20 (2006).

- S. Moriyama, T. Fuse, M. Suzuki, T. Yamaguchi and K. Ishibashi, “Pulse-excited current measurements in carbon nanotube quantum dots”, J. Phys. Conference Series, **38**, 9-12 (2006).
- B. P. Zhang, K. Shimazaki, T. Shiokawa, M. Suzuki, K. Ishibashi, R. Saito, “Stimulated Raman scattering from individual single-wall carbon nanotubes”, Appl. Phys. Lett., **88**, 241101 (2006), selected for the June 26, 2006 issue of Virtual Journal of Nanoscale Science & Technology
- K. Ishibashi, S. Moriyama, D. Tsuya, T. Fuse, M. Suzuki (invited conference paper), “Quantum-Dot Nanodevices with Carbon Nanotubes”, J. Vac. Sci. Technol. **A24** (4), 1349-1355 (2006), selected for the July 4, 2006 issue of Virtual Journal of Nanoscale Science & Technology, and the July 2006 issue of Virtual Journal of Quantum Information.
- K. Ishibashi, S. Moriyama, T. Fuse, T. Yamaguchi (invited conference paper), “Carbon nanotubes as building blocks of quantum dots”, Physica E Vol. **35**, 338-343 (2006)
- Hideyuki Maki, Testuya Sato, Koji Ishibashi, “Transport characteristic control of single-walled carbon nanotubes film field effect transistors by using electrode metals with small and large work function”, Jpn. J. Appl. Phys. **45**, 7234-7236 (2006)
- T. Fuse, Y. Kawano, T. Yamaguchi, Y. Aoyagi, K. Ishibashi, “Quantum response of carbon nanotube quantum dots to terahertz wave irradiation”, Nanotechnology **18**, 044001 (2007), selected as a featured article in Nanotechnology
- T. Fuse, Y. Kawano, M. Suzuki, Y. Aoyagi, K. Ishibashi, "Coulomb peak shifts under terahertz-wave irradiation in carbon nanotube single-electron transistors", Appl. Phys. Lett. **90**, 013119 (2007), selected for the January 22, 2007 issue of Virtual Journal of Nanoscale Science & Technology
- S. Ueda, K. Ohno, Y. Noguchi, S. Ishii, and J. Onoe: “Dimension dependence of the electronic structure of fullerene polymers”, J. Phys. Chem. B **110**, 22374 (2006).
- T.A. Beu and J. Onoe: “First-principles calculations of the vibrational spectra of one-dimensional C₆₀ polymers”, Phys. Rev. B **74**, 195426 (2006).

(2) 特許出願

平成 18年度特許出願: 1件 (CREST 研究期間累積件数: 4件)