

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. 研究実施体制

(1) 平川グループ

- ①研究代表者:平川一彦 (東京大学生産技術研究所、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
 - ・単一ナノ量子接合による新機能の応用

(2) 大岩グループ

- ①主たる共同研究者:大岩 顕 (東京大学工学系研究科、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・強磁性接合における電子相関に起因する新規現象の観測とその解明
 - ・量子ドット／超伝導接合における超伝導電流制御素子の開発
 - ・単一電子スピン制御素子の開発

(3) 町田グループ

- ① 主たる共同研究者:町田友樹 (東京大学生産技術研究所、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」
 - ・量子ドット／強磁性電極接合による新機能の研究

(4) 高柳グループ I

- ① 主たる共同研究者: 高柳英明 (東京理科大学、理事・教授)
- 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成とその特性解明
 - ・SQUID の開発
 - ・高感度光子素子の開発

(4') 高柳グループ II

- ① 主たる共同研究者: 高柳英明 (物質材料研究機構、主任研究員)
- 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成とその特性解明
 - ・SQUID の開発
 - ・高感度光子素子の開発

(5) 塚田グループ

- ① 主たる共同研究者: 塚田 捷 (東北大学原子分子材料科学高等研究機構、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」
 - ・分子およびグラフェン架橋系の機能探索

§2. 研究実施内容

(文中右肩にある番号は § 3(3-1) 原著論文リストの文献番号に対応する)

2.1 単一分子トランジスタ作製の基盤技術の確立とその量子伝導

1) Ni/C60 SMT とその特異な量子伝導

Ni は金に比べて非常に反応性が高い金属であり、C60 分子との界面は van der Waals 吸着ではなく、ある程度軌道混成したものになっていることが予想される。

我々は Ni/C60 SMT のクーロン安定化ダイアグラムを詳細に測定した結果、通常金の電極の SMT で観測されるような単純なダイヤモンド

パターンだけでなく、図1に示すような分子軌道の反交差がある複雑な振る舞いをする状態があることを見いだした。また、クーロンブロケード領域の中にもコトネリングによる伝導が見られ、分

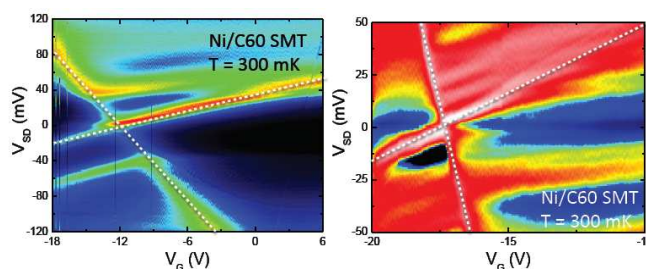


図1 作製した Ni/C60 単一分子トランジスタのクーロン安定化ダイアグラム。点線はクーロンダイヤモンドの辺を示す。

子を介したインコヒーレントなホッピング伝導から分子軌道を経由したコヒーレント伝導へのクロスオーバーが観測された。

2) Ni/C60 単一分子トランジスタのトンネル

磁気抵抗

Ni/C60 SMT に磁場を印加し、電極の磁化の向きによるトンネル磁気抵抗 (TMR) を測定したところ、図2に示すように、強磁性体の状態密度から予想される+20%程度の正の TMR ではなく、

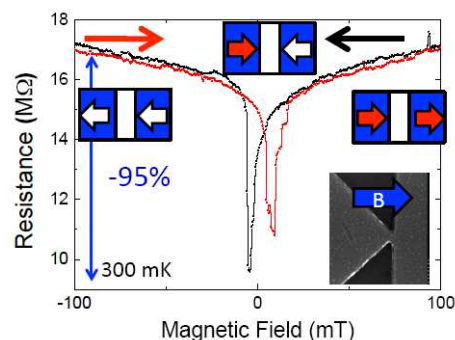


図2 Ni/C60 単一分子トランジスタの TMR

-100%程度の大きな負の TMR が観測された。負の TMR が観測される起源は明らかではないが、Ni 原子と C 原子の軌道混成に関係があると考えられる。

また、ゲート電圧を大きく正に振り、自然界には存在しない C60²⁻の状態にしたところ、-10,000%という巨大な負の磁気抵抗が観測された。これらの知見は、分子スピントロニクスに向けた大きな一歩である。

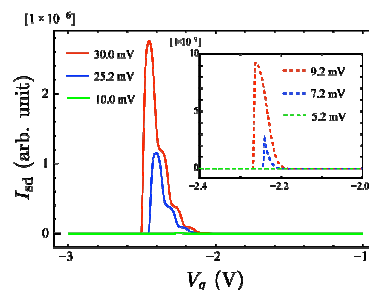


図3 Au/C60 SMT を介した電流のゲート依存性の理論計算結果。フランクコンドンブローケードの特徴を示し、実験を再現している。

3) C60 分子トランジスタ中の Franck-Condon ブローケード

C60 分子が金表面に van der Waals 吸着した系の第一原理計算を行い、吸着ポテンシャルの曲率を精密に求め、金/C60 SMT で観測されている Franck-Condon ブローケードを定量的に説明することに成功した(図3参照)。さらにトンネル過程におけるエネルギー損失の効果について考察し、コンダクタンスに与える影響を検討した。

2. 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

1) 自己組織化 InAs 量子ドットの位置と形状の制御とその応用

単一の自己組織化 InAs 量子ドットにナノギャップ電極でアクセスする単一量子ドットトランジスタの作製歩留まりは、典型的には 1%以下である。この課題を解決するために、我々は量子ドットの位置と形状の制御技術の研究を継続している。

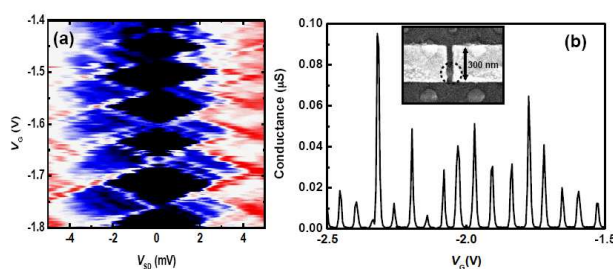


図4 位置制御された InAs 量子ドットを用いた単一量子ドットトランジスタのクーロン安定化ダイアグラム(a)とクーロン振動(b)。測定温度は 300 mK。挿入図は試料の SEM 像。

これまで、形状の制御性に優れた AFM 陽極酸化法を用いた量子ドットの位置制御を行ってきたが、今年度は平行して、スループットに優れた電子ビーム露光法を用いる方法も試み、ステップ酸化クリーニングと呼ぶ新しく開発した基板クリーニング法を用いることにより、位置制御ドットが作製でき

るようになった。

また AFM 陽極酸化法により位置制御した量子ドットを用いて単一量子ドットランジスタを作製したところ、歩留まりを約 80%にまで高めることに成功した。さらに作製した単一量子ドットランジスタは、図4に示すように良好なクーロンダイヤモンドを示し、位置制御ドットが優れた結晶性を持っていることが確認できた。

さらに、量子ドットにおけるスピン伝導制御のため、AFM 局所陽極酸化法を用いて量子ドットスピバルブ素子を作製し、TEM 観察により局所酸化領域の空間的な広がりや組成の分析を行った。量子ドット中の電子数を広い範囲で制御可能な強磁性電極/単一 InAs 量子ドット接合ができてきた。

2) 単一量子ドットランジスタにおける THz 光支援トンネル効果の観測

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 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電子物性の制御法をもたらすと期待される。我々は、ナノギャップ

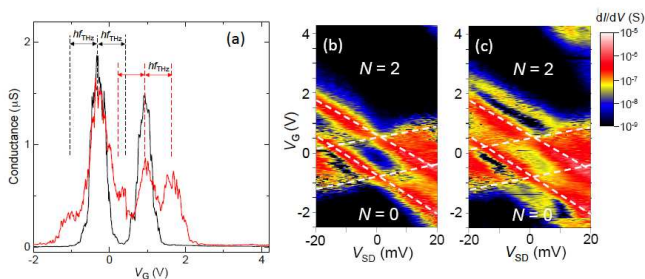


図5 量子ドットに 2.5THz の電磁波を照射したときの線形コンダクタンススペクトル(a)とクーロン安定化ダイアグラム(b)。

電極の形状をアンテナ構造とし、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の観測に成功した。図5に示すように、THz 光支援プロセスにより新しい電子の伝導チャネルが開き、基底準位や励起準位を介した共鳴的な電流が観測された。また、THz 強度を上げるとともに第4次までの多光子トンネルプロセスも観測された。本研究は、量子ドットの THz ダイナミクスの解明と制御に大きな一歩となった。

3) InAs 量子ドットにおける g 因子の電氣的制御と g テンソル変調スピン共鳴

g 因子は電子スピンの磁場応答を表すパラメータで、その解明と制御は電子スピン操作につながる。今年度我々は、昨年度導入したベクターマグネットを用い、世界で始めて3次元的に g 因子の異方性を明らかにした。さらに InAs 自己形成量子ドットに近接したサイドゲートを用いて、g 因子(テンソル)の異方性の電氣的制御に成功した。⁴⁾ g テンソルの変化はスピン歳差回転軸の変化を意味しており、g テンソル変調による電子スピン共鳴が可能であることを明らかにした。さらに数 MHz から数十 MHz 程度のラビ周波数が実現できることを示した。

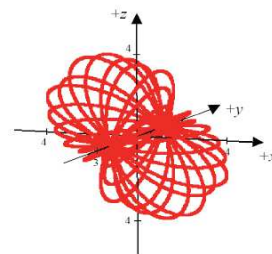


図6 InAs 量子ドットにおける異方的 g 因子の3次元極プロット

2.3 グラフェン/超伝導接合の作製と評価

今年度も引き続きグラフェン SQUID 開発を進めた。プロセス方法を検討し直し、歩留まりを7割に向上させた。またバックゲートだけでなくトップゲートによる SQUID 動作制御を目指し、トップゲート作製プロセスを開発し、トップゲート電圧による伝導制御を可能にした(図7)。次年度はトップゲートと SQUID を組み合わせ、トップ・バックゲート電圧と接合位相の相関を測定し、グラフェンジョセフソン接合の輸送特性解明を行う。また Al/グラフェン界面に薄膜 Ti 層を導入するコンタクト作製法を応用し、第2種超伝導体 NbN/グラフェン間のコンタクト形成を行い、超伝導近接効果の観測にまで至っている。次年度は強磁場下におけるグラフェン中の超伝導現象の観測を目指す。

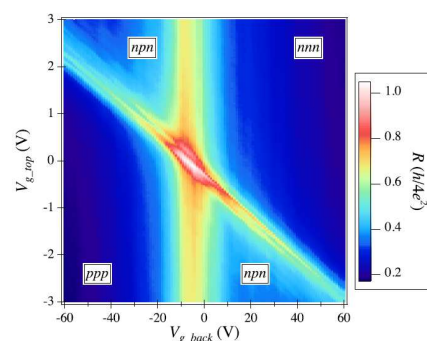


図7 トップゲート電圧 $V_{g,top}$ とバックゲート電圧 $V_{g,back}$ によるグラフェンデバイスの輸送特性変調

§3. 成果発表等

(3-1) 原著論文発表

- 論文詳細情報

1. K. M. Cha, K. Shibata, M. Kamiko, R. Yamamoto, and K. Hirakawa: “Chemical Composition and Thermal Stability of Atomic Force Microscope-Assisted Anodic Oxides as Nanomasks for Molecular Beam Epitaxy”, *Japanese Journal of Applied Physics* 50, pp.120205-1~3, 2011 (DOI: 10.1143/JJAP.50.120205).
2. K. Shibata, K. Seki, P. J. J. Luukko, E. Räsänen, K. M. Cha, I. Horiuchi, and K. Hirakawa: “Electronic structures in single self-assembled InAs quantum dashes detected by nanogap metal electrodes”, *Applied Physics Letters*, vol. 99, issue 18, pp. 182104-1-3, 2011 (DOI:10.1063/1.3659479).
3. Y. Kanai, R. S. Deacon, S. Takahashi, A. Oiwa, K. Yoshida, K. Shibata, K. Hirakawa, Y. Tokura and S. Tarucha: “Electrically tuned spin-orbit interaction in an InAs self-assembled quantum dot”, *Nature Nanotechnology*, vol. 6, pp.511-516, 2011 (DOI: 10.1038/nnano.2011.103).
4. R. S. Deacon, Y. Kanai, S. Takahashi, A. Oiwa, K. Yoshida, K. Shibata, K. Hirakawa, Y. Tokura, and S. Tarucha: “Electrically tuned g tensor in an InAs self-assembled quantum dot”, *Physical Review B*, 84, pp. 041302-1~5, 2011 (DOI: 10.1103/PhysRevB.84.041302).
5. M. Tsukada, H. Tamura, K. P. McKenna, A. L. Shluger, Y. M. Chen, T. Ohkubo and K. Hono: “Mechanism of Laser Assisted Field Evaporation from Insulating Oxides”, *Ultramicroscopy*, 111 pp567-570, 2011 (DOI: 10.1016/j.ultramic.2010.11.011).
6. M. Tsukada: “Theoretical Simulation of Scanning Probe Microscopy”, *Analytical Science.*, 27 pp121-127, 2011 (DOI: JST.JSTAGE/analsci/27.121).
7. A. Masago, M. Tsukada and M. Shimizu: “A Simulation Method of Kelvin Probe Force Microscopy at Nano-Meter Range and Its Application”, *Physical Review B*, 82, pp195433-1 195433-8, 2011, (DOI: 10.1103/PhysRevB.82.195433).
8. H. Tamura, I. Burghart and M. Tsukada: “Exciton Dissociation at

Thiophene/Fullerene Interfaces: The Electronic Structures and Quantum Dynamics”, Journal of Physical Chemistry, 115, pp10205-10210, 2011 (DOI: 10.1021/jp203174e).

9. I. Hamada, and M. Tsukada: “Adsorption of C60 on a Metal Surface Revisited: A Van der Waals density Functional Study”, Physical Review B, 83, pp245437-1-5, 2011, (DOI: 10.1103/PhysRevB.83.245437).
10. M. Tsukada, A. Masago and M. Shimizu, “Theoretical Simulation of Kelvin Probe Force Microscopy for Si Surfaces by Taking account of Chemical Forces”, Journal of Physics Condensed Matter, 24, pp 084002-084011, 2012 (DOI: 10.1088/0953-8984/24/084002).
11. I. Hamada, M. Araidai and M. Tsukada: “Origin of nano-mechanical motion in a single-C60 transistor”, Physical Review B, 85, 121401(R)-1-3, 2012, (DOI: 10.1103/PhysRevB.85.121401).
12. H. Hamada and M. Tsukada: “Role of intermolecular delocalization on electron transport in fullerene aggregates”, Physical Review B, in press.
13. Y. Kanai, K. Nakayama, R. S. Deacon, A. Oiwa, K. Shibata, K. Hirakawa and S. Tarucha: “Phase measurement in the Kondo regime of a self-assembled InAs quantum dot SQUID”, Journal of Physics, conference series, in press.
14. K. Tsumura, M. Ohsugi, T. Hayashi, E. Watanabe, D. Tsuya, S. Nomura, and H. Takayanagi: “Development of superconducting interference device based on graphene”, Journal of Physics, conference series, in press.

(3-2) 知財出願

- ① 平成 23 年度特許出願件数(国内 0 件)
- ② CREST 研究期間累積件数(国内 1 件)