



主任研究員 石橋 幸治 (工博)
ISHIBASHI Koji (Dr. Eng.)

キーセンテンス：

1. サブ10nmの極微細構造を作る
2. 量子効果を利用した新しいナノデバイスを動かす
3. テラヘルツ波を物性研究に利用する
4. 新しい高解像度テラヘルツイメージング技術を開発する
5. カーボンナノチューブでバイオセンサーを作る
6. イオンビームで表面を3次元に計測する

キーワード：

カーボンナノチューブ、半導体ナノワイア、グラフェン、単電子デバイス、量子ナノデバイス、テラヘルツ技術、バイオセンサー、中速イオンビーム

研究概要

当研究室では、将来の新機能ナノエレクトロニクスの実現を目指して、サブ10nm級ナノ構造作製技術の開発、それらにおける新規物性の探索、そして、ナノデバイスへの応用に関する研究を行っている。さらに、新機能テラヘルツ (THz) 検出器の開発や THz 近接場イメージング技術の開発、中速イオンビームを用いた表面構造のナノスケール計測技術の開発を行っている。ナノデバイス用材料として、自己組織的にサブ10nm構造が形成されるカーボンナノチューブ (CNT)、半導体 (シリコン、ゲルマニウム、 α -SiC 半導体) ナノワイア、グラフェンさらに単一分子を利用し、トップダウン技術とボトムアップ技術の融合により CNT/分子ヘテロ構造や量子ドット構造、超伝導体との複合ナノ構造などを作製している。これらの構造において、電子のスピンや電荷、磁束を1個レベルで操作する技術を開発し、省エネルギー・高機能を有する単電子デバイス、量子情報デバイス (量子ビット)、量子 THz 検出デバイスなどへ応用するための基礎研究を行っている。また、THz 波の波長限界を上回る近接場を利用した高分解能 THz イメージングシステムを開発し、これを固体の THz 物性研究への応用を目指している。

1. ナノ構造作製技術の開発 (飛田*1、田畑*1、根岸*1、森*2、Zhou*2、豊川*、霜田*4、西野*4、鈴木*6、塩川、渡部、石橋)

現在の先端リソグラフィ技術で作製可能なナノ構造は、小さくても20nm程度であり、実際の動作するデバイスはサブミクロン程度が普通である。この程度のデバイスサイズでは、極低温でしか量子効果が現れないし、仮に現れたとしてもそれを実用的なデバイスにすることは不可能である。ナノ構造を作製する方法には、このようなトップダウン技術とボトムアップ技術が考えられるが、これらを融合することが、実際に動作するデバイスを作製するのに必要である。本研究では、ボトムアップ的に作製される直径が10nm以下のカーボンナノチューブや半導体ナノワイアを Building Block とし、これらからデバイス化する技術の開発を行っている。今年度行った研究と主な成果を以下に示す。

(1) 化学修飾を用いたカーボンナノチューブナノ構造の作製

表面を化学的に修飾可能なカーボンナノチューブでは、化学的な手法を用いてナノチューブ自身で分子レベルのナノ構造を作製することも試みている。その一例として、ナノチューブの両端を化学的に修飾し、これらを化学結合させることで直径が100nm程度のつながったナノチューブリングを作製することに成功した。カーボンナノチューブリングの原子像および電子状態を走査トンネル顕微鏡を用いて測定することに成功した。

(2) カーボンナノチューブ配向成長技術の開発

カーボンナノチューブデバイスの集積化を目指して、方向のそろったナノチューブを基板上に成長する技術を開発し、さらにそれをデバイスが作製可能な別の基板に貼り付けることに成功した。貼り付けたナノチューブをラマン散乱で評価した結果、明確なダメージは導入されないことがわかり、さらにそれを用いて単電子トランジスタの作製に成功した。

(3) 自己組織化分子定規法を用いたナノギャップ作製法の開発

究極の単分子デバイスの作製を目指して、自己組織化法を利用した分子定規法を用い、10nm以下の金属電極のナノギャップを作製する技術を開発した。従来、AuやPtにしか適用できなかった分子定規法を一般的な金属に適用する技術を開発し、それを用いてNbのナノギャップ電極にAu微粒子を架橋し、局所ゲートを用いて単電子トランジスタの作製に成功した。

2. ナノ機能の探索とナノデバイスへの応用 (森*2、Huang*1、森本*1、清水*4、Shin*5、Tarun*6、忽那*6、大家*6、小塚*6、平野*6、山口、河野、石橋)

10nm以下の直径を持つカーボンナノチューブや半導体ナノワイアを Building Block として、量子ドットなどの機能性ナノ構造を作製し、単電子トランジスタや、単一スピンや単一電荷、超伝導電流のコヒーレント制御を目指した研究を行っている。また、これらの量子ドットの人工原子としてのエネルギースケールが、テラヘルツ領域にあることを利用して、テラヘルツ波を光子として検出する、新しいテラヘルツ波量子検出器への応用を研究している。

(1) シリコンナノワイアを用いた量子ドットの作製

触媒を用いた CVD 法で直径が 10nm 以下から 100nm 程度までのナノワイアを作製し、それに電極をつけることにより、単電子トランジスタを作製することを試みた。この結果、30nm、70nm 程度のナノワイアでは古典的なドットが形成できることがわかったが、直径が 10nm 程度になると、多重ドットの振る舞いを示すことがわかった。その理由として、直径が微細になると不純物原子の不活性化や界面への蓄積などがおこると考えられる。そこで、30nm 程度のナノワイアを高温でアニールすることにより、再現性よく量子ドット動作をさせることに成功した。アニール後の量子ドットでは、クーロン振動ピークの高さがランダムな分布を示し、量子性を示唆している。さらに、2重結合ドット構造の作製プロセスも開発している。

(2) ゲルマニウムナノワイアを用いた量子ドットの作製

ゲルマニウムはシリコンよりも高い移動度を有するため、シリコンよりも顕著な量子効果の発現が期待できる。しかし、ゲルマニウムの酸化物は水に溶けるため、デバイスプロセスが困難なことが課題である。本年度は、CVD 成長したゲルマニウムナノワイア表面にアルミナを堆積させ保護層として用いることで、デバイスプロセスに耐えうるということがわかった。プロセスの工夫の結果、極低温で量子ドット動作の確認に成功した。

(3) 超伝導電極を持つ InAs ナノワイアの作製

触媒金属を用いた MOCVD (有機金属気相成長法) で作った InAs ナノワイアに超伝導電極をつけ、超伝導電流を流すことを目指している。この SNS 構造を含むリングを用いて新しい量子ビットを作製することが目的である。InAs 表面は空気中に出すと酸化しているようであり、金属を蒸着する前に化学的な処理を行うことにより、低抵抗な接触を得るプロセスを開発している。超伝導転移温度における測定で、化学処理したコンタクトでは、量子準位を伴う単電子トランジスタ動作が観測され、超伝導効果は観測されなかったが、アルゴンスパッタを電極形成に取り入れることにより、さらに低抵抗を実現し、超伝導電流の効果を観測することに成功した。しかし、まだ、無視できない抵抗成分が含まれている。

(4) カーボンナノチューブ量子ドットとテラヘルツ波との相互作用の研究

カーボンナノチューブ量子ドットの人工原子としてのエネルギースケールがテラヘルツに相当することから、テラヘルツ波との量子的な相互作用を期待できる。ナノチューブ量子ドットに効率的にテラヘルツ波を照射するためにアンテナ構造を作製するプロセスを開発した。また、GaAs/AlGaAs 2次元電子ガス上に形成したカーボンナノチューブ単電子トランジスタを作製したデバイスが、高感度 THz センサーとして動作することがわかった。

(5) 自己組織化分子定規法を利用した超微細カーボンナノチューブ量子ドットの作製

分子定規法を用いたナノギャップ作製技術をカーボンナノチューブに適用し、超微細なナノチューブ量子ドットを作製するプロセスを開発した。電極にはアルミニウムを用い、単電子トランジスタ動作を確認することに成功し、クーロンダイヤモンドに超伝導ギャップを観測した。

(6) グラフェンのテラヘルツ波応答の研究

グラフェンは理想的な 2次元系であり、また、特殊なエネルギー分散関係を持つことから、ランダウ準

位の形成が通常の半導体 2 次元電子ガスとは大きく異なる。このことを利用して、より弱い磁場で動作するより広帯域のテラヘルツ検出へ応用することができる。実際に、半導体 2 次元電子ガスでは検出が不可能な赤外領域の光の検出に成功した。この検出器は、3 - 1 の検出器一体型オンチップ近接場 THz プロブへの搭載を計画している。

3 . ナノ構造計測技術の開発 (小林、河野、森本*1、森*2、Roch*2、矢嶋*6、石橋)

(1) 検出器一体型のオンチップ近接場 THz プロブ (河野、石橋)

テラヘルツイメージングの分解能は、通常波長で決まるため、数十ミクロン程度である。本研究では、波長限界を超える分解能を達成するために、テラヘルツ近接場イメージングの実現を目指している。本年度は、テラヘルツ波を受光する GaAs/AlGaAs 2 次元電子ガス (2DEG) の上に、波長以下の小さな穴をもうけ、そこを通過するテラヘルツ波が作る近接場を穴の下の 2DEG で効率よく検出するために、穴の直下にアンテナ構造を作りつけ、近接場光を増強させることができることを電磁界シミュレーションで確認した。さらに実際にデバイスを作製し、100 ミクロン程度のテラヘルツ波に対して、9 ミクロン程度の分解能を達成することに成功した。本プロブを試料上で走査し、局所的なテラヘルツ物性の研究への応用を目指している。

(2) 2 層カーボンナノチューブ電界効果トランジスタのバイオセンサーへの応用

2 層カーボンナノチューブ (DWCNT) の大きなゲート電圧特性を利用して、表面に吸着した生体分子を検出する技術の開発を行っている。単層カーボンナノチューブと DWCNT の混ざったナノチューブから、高濃度で DWCNT を分離し (東京理科大との共同研究) 1 本の DWCNT で FET を作製した。FET の移動度の分布を測定し、SWCNT に比べて DWCNT の方が高い移動度を持つ傾向があることがわかった。この DWCNT-FET を生体分子を含む溶液を入れてると、生体分子によるソースドレイン電流の変化を観測することができた。

(3) 三次元中速エネルギーイオン散乱の開発

三次元中エネルギーイオン散乱 (3D-MEIS) をナノ構造体の構造解析のために開発している。3D-MEIS とは中エネルギー (100 keV) の短パルス (~2 ns) ビームを材料に入射させ、材料を構成する原子によって散乱された粒子を三次元 (位置敏感・時間分析型) 検出器により検出するものである。3D-MEIS は結晶性試料から散乱した粒子の二次元プロッキングパターンと飛行時間の情報を得られるものである。本年度は装置の小型化を行い、4m の長さの装置を完成させた。完成させた装置の特性を調べるために Si 単結晶及び SiGe 薄膜の分析を行った。その結果、薄膜の構造 (ひずみ) 解析が十分に可能であることがわかった。

*1 基礎科学特別研究員, *2 ASI 研究員, *3 訪問研究員, *4 JRA, *5 IPA, *6 研修生, *7 研究嘱託

Key Sentence :

1. Fabrication of sub 10nm nanostructures
2. Demonstration of quantum nanodevices
3. Application of terahertz wave to material science
4. High resolution terahertz imaging technique
5. Carbon nanotubes for bio-sensor application
6. Medium energy ion scattering for 3-dimensional surface analysis

Key Word :

carbon nanotubes, semiconductor nanowires, graphene, single electron devices, quantum nanodevices, Terahertz detection and sensing, bio-sensor, medium energy ion scattering

Outline

To explore future nanoelectronics, we develop fabrication processes of sub-10nm structures, and study their electronic properties to apply them to functional nanodevices. We use carbon nanotubes, semiconductor (Si, Ge, InAs et al.) nanowires, graphene and functional molecules as building block of those nanostructures. Besides, we are interested in THz properties of solid state materials and development of the near field THz imaging system. Surface analysis with the medium energy ion beam scattering is also our research target. With a combination of the top-down and bottom-up

technology, we fabricate quantum dots, CNT/molecule heterostructures, and semiconductor/superconductor hybrid nanostructures for use of single electron devices, quantum computing devices and new quantum THz detectors, and so on.

1. Device fabrication processes in nanoscale (Hida, Negishi, Tabata, Mori, Zhou, Toyokawa, Shimoda, Nishino, Suzuki, Watanabe, Shiokawa, Ishibashi)

To realize nanostructures with a size of several nm is difficult only with conventional lithography techniques (top-down technology). A bottom-up technology in which the nanostructures with several nm are easily formed in a self-assemble manner is an attractive technique for the aim. However, to merge the two technologies is needed to really fabricate extremely nanostructures that can be applied for nanodevices. To do that, we are interested in carbon nanotubes and semiconductor nanowires that have a diameter of several nm and a length longer than micron, as building blocks of nanodevices.

(1) Fabrication of molecular scale nanostructures with carbon nanotubes

One of the unique features of the carbon nanotube is a possible chemical modification of its surface. By using the feature, we are developing to fabricate molecular scale nanostructures with carbon nanotubes and molecules. The atomic image of the single-wall carbon nanotubes was observed with the scanning tunneling microscope, and the electronic structures of the carbon nanotube ring connected chemical bonds at the both ends was studied.

(2) Growth technique for aligned carbon nanotubes for integrated nanodevice fabrication

To grow the aligned nanotubes is an important issue to fabricate integrated nanodevices. We have succeeded in it by the methanol CVD (Chemical Vapor Deposition) with a use of quartz substrate. The grown nanotubes could be transferred to another useful substrate for device fabrication, and the technique turned out to give serious damage to the nanotubes. In fact, we could make single electron transistor with the technique.

(3) Nanogap fabrication with novel self-assembled molecular lithography technique

To realize a nanogap less than 10nm in a controlled manner is important for measurements of a molecular scale nanoparticle and a single molecule. For this purpose, we have developed a technique with the novel self-assembled molecular lithography technique, and succeeded in demonstrating single electron transistors with Nb nanogap electrodes and individual Au particles as dots.

2. Functionality in nanostructures and application to nanodevices (Mori, Huang, Morimoto, Shimizu, Shin, Tarun, Oie, Kutsuna, Kozakai, Hirano, Kawano, Yamaguchi, Ishibashi)

(1) Quantum dots with Si nanowires

The important feature of the Si nanowire is that the width can be less than 10nm and the surface is covered by a stable oxide layer. We have developed fabrication processes of quantum dots with Si nanowires with diameters larger than 30nm. The nanowire dot with 70nm in a diameter showed the classical dot behaviors, but the one with 30nm in a diameter showed indication of the quantum nature revealing the non-uniform Coulomb peak height. It was found that high temperature annealing increased the reproducibility of the device performance. For nanowires of the order of 10nm in diameter, the fabrication process needs further investigation.

(2) Quantum dots with Ge nanowires

Germanium has a smaller effective mass than Si, so that the quantum effect becomes more important. However, the device process is not easy because Ge nanowires are easily resolved in water. To overcome the problem, we have developed a method with which we can go around the problem, and succeeded in demonstrating the single electron transistor.

(3) InAs nanowires with superconducting contacts

An InAs nanowire with superconducting contacts may be a new SNS (Super/Normal/Super) system that is interesting from both physics point of view and a new qubit application. We have developed to realize low contacts between the nanowire and the metal. A chemical etching method

and a Ar sputtering methods were used to obtain low contact resistance. In the former device, the single electron transistor operation was observed with clear zero-dimensional confined states, and no clear indication of the effect of superconducting contacts was observed. In the latter devices, not Coulomb blockade was observed, and the indication of the increased conductance at $V=0$ due to the supercurrent was observed.

(4) Terahertz (THz) response of carbon nanotube quantum dots

Carbon nanotube quantum dots have energy scale as an artificial atom in a range of THz frequencies. We have observed quantum response of carbon nanotube quantum dots to the THz wave. To increase the coupling efficiency between the THz and nanotubes, the fabrication process to form the antenna structures have been developed. A new device that are consisted of the carbon nanotube single electron transistor on the GaAs/AlGaAs two-dimensional-electron gas wafer was fabricated, and are found to work as a highly sensitive THz detector.

(5) Molecular ruler technique applied for the fabrication of ultra-small carbon nanotube quantum dots

The Molecular ruler technique was applied to fabricate an extremely small carbon nanotube quantum dots with a dot size about 20nm. The device showed the single electron transistor characteristics with zero-dimensional confined states. Besides, the superconducting gap was observed in the Coulomb diamonds. The contact resistance was so high, that the supercurrent was not observed at all. The process to improve the contact resistance is necessary to apply the technique to the Andreev qubit.

(6) Terahertz (THz) response of the graphene sheet

A graphene sheet is an ideal two-dimensional system with unique band structures. Due to the fact, the Landau levels in magnetic fields are formed in a different way from the conventional two dimensional system such as 2DEG in GaAs/AlGaAs. We can expect Landau level transitions with larger energies, so that the effect can be applied to broad band THz detector. In fact, we have succeeded in observing a signal in magnetoresistance in the infrared range, which was not observed in the GaAs/AlGaAs 2DEG.

3. Development of inspection techniques in nanoscale (Mori, Morimoto, Kobayashi, A. Koyama·Yajima, Kawano, Ishibashi)

(1) All-in-one chip THz detector for near field THz imaging

We have demonstrated higher resolution of THz imaging than that determined by the wave length. This was done by fabricating a small hole with an antenna structure on the GaAs/AlGaAs 2-dimensional electron gas that works as a detector. The probe will be used to study local physical properties of material surface. The graphene will be used for the broad band detector.

(2) Biosensor application carbon nanotube transistor

The carbon nanotube FET may be used for biosensor application. We have fabricated FETs with individual double-wall carbon nanotubes (DWCNTs), because the DWCNT-FET is considered to have a larger transconductance than that of the single-wall carbon nanotube FET. The preliminary sensor operation has been demonstrated by measuring the change in the source drain current when the DWCNT was put in the solution that includes the biomolecule.

(3) Development of three-dimensional medium-energy ion scattering equipments

Three-dimensional medium-energy ion scattering (3D-MEIS) has been developed for crystallographic structure of nanomaterials. The system of 3D-MEIS is that a pulsed He^+ ion beam with a pulse width of ~ 2 ns at a medium energy of 100 keV is used for an incident beam, the particles scattered by atoms in a sample are detected using a three-dimensional (position-sensitive and time-resolving) detector. 3D-MEIS provides information on the two-dimensional blocking pattern and flight times of particles scattered from a crystalline sample. Recently we developed a compact 3D-MEIS system with a length of 4 m. In order to examine the performance of the system, we have carried out experiments on single crystal Si samples and epitaxially grown SiGe films on Si substrate. The results reveal that the compact 3D-MEIS system is feasible to analyze the structure

(strain) of thin films.

Principal Investigator

石橋 幸治 Koji Ishibashi

Research Staff

塩川 高雄 Takao Shiokawa
小林 峰 Takane Kobayashi
渡部 秀 Shu Watanabe
山口 智弘 Tomohiro Yamaguchi
河野 行雄 Yukio Kono
黄 少云 Shaoyun Huang
飛田 聡 Satoshi Hida
田畑 博史 Hiroshi Tabata
根岸 良太 Ryota Negishi
森本 崇宏 Takahiro Morimoto
西尾 隆宏 Takahiro Nishio
森 貴洋 Takahiro Mori
Roch Andrzejewski Andrzej
周 昕 Xin Zhou
三原 勝 Masaru Mihara

Students

霜田 恵一 Keiichi Shimoda
清水 麻希 Maki Shimizu
西野 貴幸 Takayuki Nishino
野口 卓也 Takuya Noguchi
申 成權 Sung-Kwon Shin
Jean Tarun Laniog
鈴木 喬之 Takayuki Suzuki
大家 学 Manabu Oie
忽那 史徳 Fuminori Kutsuna
矢嶋 翔太 Shota Yajima
小堺 達也 Tatsuya Kozakai
平野 正城 Masashiro Hirano
金 孝媛 Hyowon Kim
上野 修平 Shuhei Ueno
戸田 新之輔 Shinnosuke Toda

Assistant and Part-timer

豊川 聖子 Seiko Toyokawa
坂井 陽子 Yoko Sakai
浅野 頼子 Yoriko Asano

Visiting Members

長谷川 英機 Hideki Hasegawa
蒲生 健次 Kenji Gamo
高柳 英明 Hideaki Takayanagi
菅野 卓雄 Takuo Sugano
森山 悟士 Satoshi Moriyama
落合 勇一 Yuichi Ochiai
牧 英之 Hideyuki Maki
石渡 洋一 Yoichi Ishiwata
Lee Chow
根岸 良太 Ryota Negishi
Eames Christopher
付 磊 Lei Fu
Kristina Margareta Linnaesson
Steven Tear Philip
張 保平 Bao-ping Zhang
伊東 芳子 Itoh Yoshiko
岩井 莊八 Iwai Sohachi