

石橋極微デバイス工学研究室 Advanced Device Laboratory

主任研究員 石橋 幸治
ISHIBASHI, Koji

当研究室では、将来のナノエレクトロニクスを目指してナノメートル領域の極微構造の作製技術の開発、新奇物性の探索とその新機能デバイスへの応用という観点から研究を進めている。ナノエレクトロニクスでは電子以外にも、光子やスピンさらにはさまざまな素励起を情報媒体として用い、さらにその量子状態や相互作用を多様性を持って制御することにより、さまざまな新機能が発現する。また、材料の観点からは、従来の伝統的な半導体だけにとらわれず、カーボンナノチューブやフラーレン、さらには半導体ナノワイヤなども視野へ入れ、機能発現に適した材料を選び、そのデバイス化のための独自のナノデバイスプロセスを開発する。具体的なナノデバイスとして、単電子デバイス、量子コンピューティングデバイスや分光機能を持つ超高感度テラヘルツ波検出デバイスなどを取り上げ、そのキーとなるナノデバイスを量子ドットなどで実現することを目指す。同時に、ナノ領域の局所的な計測技術の開発を行う。

1. ナノ構造作製技術の開発 (塩川、渡部、山口、根岸*2、森、田畑*1、飛田*1、*4霜田、吉田*5、山崎*5、浅倉*5、大村*5、菅原*5、鈴木*5、大家*5、石橋)

先端リソグラフィ技術では作製が困難な数ナノメートル級のナノ構造を作製するためには、自己組織的にナノ構造を形成する、いわゆるボトムアップ法と、その動作を確認するためにナノ構造に電気的な配線を行うためのリソグラフィによるトップダウン技術の融合が必要である。このような融合技術は決して容易にはないが、我々は数ナノメートルの直径を有するカーボンナノチューブやシリコンナノワイヤをその Building Block として注目している。

(1) 高真空・真空一貫単層カーボンナノチューブ成長技術の開発

メタンやアルコールを原料とする単層カーボンナノチューブの化学気相成長法 (CVD) は、通常数十 kPa 程度の圧力で行われる。我々は、より制御された特徴のある成長法を目指して、高真空条件で成長する技術の開発およびそのユニークな特徴を調べている。通常、触媒形成と CVD 成長は別々に行われ、その間に試料は大気に暴露される。本成長装置は、触媒形成チャンバーと成長室が真空中で結ばれており、大気に暴露することなく、触媒形成と CVD 成長を行うことができる。このような装置で、成長圧力を 10kPa 程度からまで 0.05Pa 程度まで変えながら、CVD 成長をしたところ、最大集率を得られる温度が圧力とともに低下することがわかった。成長時に水素を導入することにより、350 度でも成長することがわかった。また、通常の成長では成長温度までの昇温時に、アルゴンガスを導入するが、真空一貫プロセスでは、アルゴンを導入しない方がよく成長することがわかった。高真空成長の成長温度の低温化は、半導体デバイスとの複合デバイスを考えた上で、重要な特徴である。

(2) 有機高分子で修飾された SWNT による SET 形成

単層カーボンナノチューブ (SWNT) では、1 本の SWNT に金属電極を形成することで、接触部分に自然にトンネル障壁が形成される。しかし、このトンネル障壁は、障壁高さや障壁幅を制御することができず、ナノデバイス応用に対して問題となっている。そこで、SWNT に有機高分子を被覆することにより、トンネル障壁を改良することを試みた。実際、有機高分子カルボキシメチルセルロース (Carboxy Methyl Cellulose; CMC) で被覆された SWNT を用いることで、動作温度を約 80K まで改善することができた。CMC 被覆 SWNT を用いた場合、電極金属と SWNT との界面に CMC 分子が存在することになる。この CMC 分子が持つ電気双極子の影響により、金属の仕事関数に変調されてバリア高さを確保することができている。バリア高さを確保できたことよっての温度特性改善であり、更なる動作温度向上へ向けては帯電エネルギーを確保する手法を開発する必要がある。

(3) 部分高抵抗化法を用いた SET 形成

SWNT に対して低加速イオンビームを照射すると、欠陥が導入され高抵抗化される。この現象を利用して SWNT を部分的に高抵抗化することでバリアを形成、SWNT-SET (単電子トランジスタ) の動作に成功した。その動作温度は現在のところ約 120K である。この手法の着想としては、部分高抵抗化されたバリアは、当然のことながら極めて小さい直径を持つため、帯電エネルギーの確保に必要な条件である微小容量を実現できるところにあった。現在のところ動作の詳細は検討の途中であるが、今後の動作温度の向上が期待できる手法である。

(4) SWNT ナノデバイスの集積化と位置制御技術の開発

SET や FET などのナノチューブデバイスの集積化や複数本のナノチューブを組み合わせたより高機能なデバイス構造の実現をめざして、基板上的ナノチューブの位置と向きを制御することを目的としている。これまで基板上にパターンニングした触媒からナノチューブを CVD 成長させることによって位置制御を実現してきた。しかし、触媒から成長するナノチューブはランダムな方向を向いてしまうため、位置制御のメリットを十分に発揮できていなかった。そこで、次の段階としてナノチューブの成長方向の制御を試みている。ナノチューブはサファイアやクォーツなどの基板上的原子配列やステップにそって配向成長するという性質がある。我々はこの特性を利用して基板上に水平に一軸配向したナノチューブアレイを作製し、これをデバイス作製のテンプレートに利用しようと考えている。これまでにクォーツ基板上にフェリチンを分散させた系においてナノチューブを配向成長させることに成功している。さらにフォトリソグラフィ技術で触媒をパターンニングし、所望の場所への配向成長にも成功している。現在、ナノチューブアレイのチューブ長さやチューブ密度をデバイスプロセスに適合するように触媒密度や成長条件の最適化に取り組んでいる。

(5) 核スピンを持つカーボンからなるカーボンナノチューブ量子ドットの作製

天然に存在するカーボン原子は核スピンを持たないのがほとんどである。これまで、電子デバイスで核スピンを情報媒体として利用しようとする考えはなかったが、最近の量子情報処理デバイスの研究に関連して、長いコヒーレンス時間を持つ核スピンを量子情報媒体 (量子ビット) として利用しようとする考えがある。カーボンは核スピン 1/2 を持つために 2 準位系である量子ビットとして適している。そこで、核スピンを持つカーボンナノチューブ量子ドットを実現し、核スピンと電子スピンの相互作用

を調べる目的で、量子ドット作製技術の開発を行った。核スピン 1/2 を持つ ^{13}C 原子からなるカーボン 13 ナノチューブを成長し、ラマン分光による評価と輸送現象の測定を行った。

カーボン 13 ナノチューブの成長は ^{13}C 原子からなるエタノールを原料とする CVD 法で行っている。 ^{13}C 原子の割合を変化させたカーボン 13 ナノチューブのラマン分光を行ったところ、カーボン 13 ナノチューブ中の ^{13}C 原子の割合は原料エタノール中の割合で完全に制御できること、また、スペクトルの半値幅は ^{13}C 原子の割合が 50% 付近で最も大きくなることが明らかになった。後者は ^{12}C 原子と ^{13}C 原子の混合によるランダムネスの影響であると考えられる。

カーボン 13 ナノチューブに電極を取り付け、量子ドットデバイスを作製する技術を確認し、低温で明瞭なクーロンダイアモンドを観測することに成功した。現在、カーボン 13 ナノチューブ量子ドット中の核スピンと電子スピンの相互作用の効果を明らかにするため、クーロンピークの外部磁場依存性、ラジオ波に対する応答を測定し、解析を行っている。

(6) 化学修飾によるカーボンナノチューブ超構造作製技術の開発

カーボンナノチューブのデバイス応用を目指す上で、機能設計を可能にするバンドエンジニアリングの技術を開発することは最も重要な課題の一つと言える。我々は、分子を介してカーボンナノチューブを結合するという方法で、ヘテロ接合やトンネルバリアを導入したカーボンナノチューブ超構造の作製を試みている。今年度は、金属的な性質をもつカーボンナノチューブの両端をポリペプチド鎖でターミネートし、それらが作るポテンシャルによって電子の閉じ込めが起こることを確認した。また、電子波干渉デバイスを念頭に置いて、リング型や分岐型といった特殊形状のカーボンナノチューブ超構造を作ることに挑戦し、一本のカーボンナノチューブの両端を化学結合で繋ぐことにより、直径 100nm ~ 300nm の微小なリング構造の作製に成功した。

2. ナノ機能の探索とナノデバイスへの応用 (黄*1、森*2、森本*3、山口、河野、清水*4、豊川*5、佐藤*5、巻幡*5、忽那*5、石橋)

単電子デバイスや量子コンピューティングデバイスナノデバイス等の機能性ナノデバイスを想定し、そのために必要な機能として、量子ドットにおける閉じこめによる量子化準位の形成とクーロンブロック効果に注目している。

(1) カーボンナノチューブ量子ドットと GaAs/AlGaAs 2 次元電子ガスの複合化

将来のカーボンナノチューブを用いた量子ドットデバイスを考えた場合、カーボンナノチューブだけでシステムが構成されることはあり得ず、従来の半導体デバイスと組み合わせるとされると思われる。この場合、演算の中心的なことはカーボンナノチューブデバイスが行い、データの読み出しなどインターフェース部分は従来のトランジスタが担うと思われる。このようなことを念頭に置き、GaAs/AlGaAs 2 次元電子ガス基板上にカーボンナノチューブ単電子トランジスタを作製し、基板上に形成したゲートがどのようにナノチューブ量子ドットに動作するのかを明らかにし、また、それを元にしてゲート動作を制御することに成功した。また、量子ドット内の情報を読み出す技術として GaAs/AlGaAs 2 次元電子ガスに形成した量子ポイントコンタクトで、単電子トランジスタの電子数の変化を検出することに成功した。

(2) カーボンナノチューブ量子ドットのテラヘルツ量子応答

1 本のカーボンナノチューブの両端に電極を形成すると、電極間のカーボンナノチューブが単一量子ドットを形成することができる。この量子ドットは、カーボンナノチューブの直径が数ナノメートル、長さが 2-300 ナノメートル程度であることを考えると、円周方向の量子状態は基底状態になっており、1 次元的な箱形ポテンシャルに閉じこめられた人工原子的な振る舞いをする。人工原子としてのエネルギースケールは、1 電子帯電エネルギーが数十 meV、量子化準位間隔が数 meV、程度であり、これらのエネルギーを周波数に換算するとサブミリ波からテラヘルツ波の領域にある。このことから、カーボンナノチューブ人工原子とテラヘルツ波の相互作用は、電磁波を光子として放出・吸収する量子応答を示すことが期待される。

このことを実際に確かめるために、液体ヘリウム温度に冷却したカーボンナノチューブ量子ドットに、外部から周波数の異なるテラヘルツ波を照射し、単電子輸送特性がどのように変化するかを調べた。テラヘルツ波を照射しないときは、単電子輸送を示すクーロン振動が観測されるが、この状態でテラヘルツ波を照射すると、クーロンピーク (メインピーク) の横に (本来クーロンブロック状態の領域) 新たなサイドピークが現れる。このサイドピークの位置は、照射するテラヘルツ波の周波数を変えるとメインピークからの距離が離れてゆくように移動する。メインピークとサイドピークの間隔をエネルギーに換算し、照射周波数の関数としてプロットすると、すべてのサイドピークは傾きが 1 の直線上にのる。このことから、テラヘルツ波照射により新たに現れたサイドピークは、量子ドット内の電子がテラヘルツ波光子を吸収してドレイン電極へトンネルするテラヘルツ光アシストトンネルに起因したものであることが明らかとなった。また、テラヘルツ波の強度を変えてサイドピークの高さを調べたところ、メインピークはテラヘルツ波強度の増大とともに減少したのに対し、サイドピークの高さは増加することが観測された。このことは、定性的には Tien-Gordon モデルに現れる光サイドバンドの形成によるベッセル関数的な振るまいを示唆していると思われる。このことから、カーボンナノチューブ量子ドットはテラヘルツ波に対して量子的に応答をしたことが明らかになった。量子ドットでテラヘルツ領域での量子応答の観測は世界で最初である。

(3) 超伝導電極を持つカーボンナノチューブの電気伝導特性

カーボンナノチューブは 1 次元的な性質を持つため、これに超伝導電極をつけたときに超伝導電流がどのように流れるかには興味がある。このことを調べるために、1 本の単層カーボンナノチューブに Pd を介して Al 電極を形成し、その電気伝導特性を調べた。Pd をナノチューブと Al の間に蒸着する理由は、Al はカーボンナノチューブとのぬれ性が悪く、良いコンタクトが得られないためである。Pd を介したコンタクトの抵抗は低く、低温で量子抵抗程度の値となり、カーボンナノチューブ中を電子がバリスティックに伝導する。また、接触部分の抵抗が小さいためにクーロンブロック効果は生じない。このことを反映して、電流のソースドレイン電圧とゲート電圧依存性を測定すると、電子波の干渉によるファブリーペロー干渉パターンが得られる。

注目すべきは、ソースドレイン電圧がゼロの時に、あるゲート電圧領域で超伝導電流が観測されることである。これは、近接効果によるものと思われる。特徴的なことは、超伝導電流がゲート電圧に依存することである。このことは以下のように説明できる。カーボンナノチューブは共振器を形成しているために、電子波に対して特定のモードしか許容しない。このことは、量子状態 (共振器モード) が弱い閉じこめにより、エネルギー的に広がっており、ゲート電圧を変化させるとソースドレイン電圧付近を横切る共振器モードが緩やかな変調を受けることを反映している。エネルギー準位の存在確率が低いゲート領域では、超伝導電流はあまり流れず、共鳴した状態では大きな超伝導電流が流れるとして、実験結果を定性的に説明することができる。

また、微分コンダクタンスの電圧依存性を調べたところ、超伝導ギャップ内 (サブギャップ領域) の電圧状態で多重アンドレーエフ反射によるコンダクタンスの増大が観測された。その位置は、多重アンドレーエフ反射から予想される、 $V_n = 2n\Delta / e$ (Δ は超伝導ギャップの大きさ、 n は次数) に一致し、実験では $n=2$ のピークまで観測された。

バリスティックかつ 1 次元的な接合を介した超伝導特性のユニークさがどのように現れているかを明らかにするためには、さらに実験および理論的解析を進める必要がある。

(4) ランダムネットワークカーボンナノチューブ FET の作製

半導体カーボンナノチューブはフレキシブルトランジスタ応用の観点から興味深い。しかし、大きな移動度や大きなオンオフ比、デバイスの安定性など課題が多い。われわれは、優れた特性を得るためには、ナノチューブ1本1本が(束にならないで)独立して、電極間に存在することが重要であると考え、適正な界面活性剤の選択、超音波処理、超円心処理が有効であることを示し、移動度 ~ 0.7 、オンオフ比 $\sim 10^{-3}$ の特性を持つランダムネットワーク FET の作製に成功した。移動度に関しては、有機 FET の最高値に近いが、オンオフ比はまだ不十分である。これは、ナノチューブの中に半導体のみならず金属ナノチューブが含まれていることによる。また、カーボンナノチューブ FET のゲート特性には、しばしばヒステリシスがみられることがあるが、10eV 程度の低エネルギーアルゴン原子を照射することにより、ヒステリシスを生じる原因と考えられている基板上的水分子などを除去し、ヒステリシスを大きく低減できることを明らかにした。

(5) シリコンナノワイを用いた量子ドットの形成

スピン機能を考えるとき、カーボンナノチューブと同様にシリコンナノワイアも、スピン軌道相互作用が小さい、核スピンの含有が少ないという特徴を持ち、安定したスピンを実現できるという利点がある。金属触媒を用いて CVD 成長することにより、数ナノメートル程度の直径を持つシリコンナノワイアを自己組織的に形成することができる。成長条件や触媒形成の条件を変えることで、その直径や長さの制御が可能である。本研究では、成長したシリコンナノワイアに n 型のドーピングを行い、1本のシリコンナノワイアから単電子トランジスタ(量子ドット)を形成するプロセスを開発した。100nm 程度の直径を持つシリコンナノワイアを用いた単電子トランジスタにおいて、1K 以下の極低温では有るが、単電子輸送特性を観測することに成功した。しかし、この試料では十分直径が小さくないために、単電子輸送特性は古典的な振る舞いをしていいる。現在、さらに直径の小さなナノワイアを用いることにより、動作温度の向上と量子的な単電子輸送特性を得ることが可能であると考えている。

3. ナノ構造計測技術の開発(河野、石橋)

(1) 検出器一体型のオンチップ近接場 THz プロープ

THz 分光・イメージングは、無機・有機材料、生体系、宇宙・天体系など自然界の多岐にわたる分野で強力な計測ツールとなることが期待されている。高性能なイメージングを達成する基本として、空間分解能と検出感度の向上が必須となることは、分野を問わない共通の課題である。高空間分解能イメージングを実現するための有効な手段として、回折限界による制限を突破し、サブ波長分解能を可能にする近接場光学の適用が考えられる。可視光・近赤外光領域では、先鋭化された光ファイバーあるいは STM/AFM 探針などを用いた微小開口や微小散乱体を利用して、確立された技術がある。ところが THz 領域では、可視光と比較して波長が 2, 3 桁長いことや光ファイバーに相当する実用的な導波路が存在しないこと等の理由から、その技術的確立は容易ではなく、光科学技術の中のチャレンジングな課題となっている。これまでの研究で、固浸レンズを用いた THz イメージングを開発したが、回折限界による制限を受けていた。本研究では、高効率な近接場 THz 光の検出を目的とした、検出器一体型の新しいプロープの開発とその特性評価を行った。

作製したデバイスの特徴は、近接場測定に必要なすべてのコンポーネント - アパーチャー・平面プロープ・検出器 - が1つの半導体チップに集積化されていることである。ここでは、波長よりも十分小さなサイズのアパーチャー部に発生したエバネッセント場をプロープ先端で輻射場に変換し、そこからすぐ下(数十 nm 下)にある 2 次元電子ガスの抵抗変化により読み取る仕組みになっている。この素子では、エバネッセント光をすぐ間近にある検出器で直接的に検出することができる。そのため、近接場プロープを用いて、透過あるいは散乱された THz 光を遠方の検出器で読み出す従来の手法に比べて、Far field 光の影響を受けず、高効率な検出が期待できる。

有限要素法による電界分布計算から、アパーチャーのみの場合とアパーチャー + 平面プロープの場合とを比較した。その結果、後者の場合には、プロープの存在によってエバネッセント場が空間中を伝搬するモードに変わり、遠方まで伸びていることが示された。この計算に基づいて、THz 透過/不透明の Line&Space 試料に対する THz 透過強度分布を測定した。実際に、ピンホールの場合と比べて、アパーチャー + プロープでは、明確なプロファイルが観測でき、計算結果から予想される大きな電場増強効果を確認することができた。この実験から得られた空間分解能は約 $9\mu\text{m}$ であり、この値は、 $214.6\mu\text{m}$ の波長に対して波長の約 24 分の 1 に相当し、アパーチャー径 ($8\mu\text{m}$) にほぼ一致する。これらの事実は、今回開発した検出器一体型プロープによって、波長に依存しない、回折限界を突破した近接場 THz イメージングが実現されたことを示している。

さらなる高空間分解能の向上(サブ μm 分解能)・高感度検出を同時に達成するために、検出部として 2 次元電子ガスの代わりにカーボンナノチューブ量子ドットを用いることが有望であると考えている。さらに、試料表面上での高精度なプローピングを可能にするため、チューニングフォーク(水晶振動子)の片面に検出器一体型プロープを組み込むことを計画している。

(2) AFM 探針と結合された走査型エレクトロメータ

電位分布は、電子の流れや閉じ込めに関する情報をもたらすため、固体物性を特徴づける最も基本的でかつ重要な物理量である。さらに電位の時間的揺らぎの空間分布は、電荷ダイナミクスについての豊富な情報をもたらすことが期待できる。ところが、特に電位揺らぎのイメージングを可能にする計測装置がこれまでに存在しなかった。以前に、量子ホール素子の縦抵抗が磁場変化に対して示す大きな振動(シュブニコフ・ド・ハース振動)を利用した、新しい走査型エレクトロメータを開発し、さらにこの技術を用いて、半導体量子ホール系における電位揺らぎの空間マッピングに初めて成功した。揺らぎの物理は物質科学の中では未知の部分が多く、本研究は、さらに揺らぎの空間分布ならびに周波数分散特性を系統的に調べることで、興味深い物性の開拓へと発展させることが期待できる。

今年度は、高空間分解能・高感度計測システムの構築に向けて、AFM の金属コートカンチレバーとエレクトロメータを結合させたユニークな計測装置の構築を行った。物質中の量子力学的効果が顕著になるような電子物性に関する研究では、しばしば低温強磁場の測定環境を必要とする。そのため、このような極限環境下でも動作する AFM システムの立ち上げを行い、4.2K の低温下でも試料のトポ像が観察できることを確認した。さらに、量子ホール素子とカンチレバーを組み合わせたシステムで、高空間分解能な電位分布測定が可能となることを示した。現在、別の新たなエレクトロメータとして、量子ポイントコンタクト素子、カーボンナノチューブ単電子トランジスタを用いた電位分布測定を行っている。

*1 基礎科学特別研究員, *2 協力研究員, *3 訪問研究員, *4 JRA, *5 研修生

In this laboratory, we are working on fabricating nanoscale-structures that are not realized with conventional lithography techniques, exploring new physical properties in the structures, and trying to apply them to functional nanodevices. For this purpose, we are interested in carbon nanotubes and Si nanowires, which are self-assembled and have extremely small diameters, as building blocks of nanostructures as well as conventional semiconductor materials. A basic structure of our interest is a quantum dot, where electrons are confined in an artificial potential. In the structure, a single electron charging effect (Coulomb blockade effect) and a zero-dimensional confinement effect are important. With these unique effects, we study single electron transport at low temperatures and try to apply the unique effects to functional devices such as single electron devices, quantum computing devices and ultra-sensitive THz detectors with new functions.

1. Device fabrication processes in nanoscale

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 technology is needed to really fabricate extremely nanostructures that can be applied for nanodevices. To do that, we are interested in carbon nanotubes and Si nanowires that have a diameter of several nm and a length longer than micron, as building blocks of spin-related nanodevices.

(1) Carbon nanotube growth in ultra-high vacuum and in-situ process

We study carbon nanotube growth in ultra-high vacuum. It was found that the optimum growth temperature in which the largest growth yield is obtained decreased as the growth pressure was decreased. The similar tendency was observed for the quality of the nanotube. In our system, the deposition of the catalyst particle and the CVD growth can be carried out without taking a sample out of the vacuum (in-situ process). In this process, we have found that the Ar gas introduction, which is usually used in a conventional CVD growth, was not necessary in the in-situ process.

(2) Fabrication of the SET with the SWNTs coiled around by polymer molecules

Tunnel barriers in the SWNT single electron transistor (SET) fabricated in a standard method is not satisfactory in terms of the controllability and the quality of the barrier, so that the method to fabricate more controllable tunnel barrier is required for the practical application of nanodevices. Using carboxymethylcellulose (CMC) as a dispersant of the SWNT suspension, the CMC molecules coil around SWNTs. The SETs fabricated with the suspension have operated up to about 80K. This improvement of the temperature characteristics is due to the improvement of the interface property between metal electrode and SWNT. The coiled CMC makes electric dipoles at the interface and modulates the work function of the metal electrode. As a result, the barrier height becomes higher than the generally simplest SWNT-SET.

(3) Fabrication of the SWNT-SET using ion beam irradiation technique

The irradiation of low energy ion beam can induce defects on the SWNTs and the defects induced SWNTs have higher electric resistivity. If we irradiate locally the individual SWNT with the ion beam, the higher resistive parts can work as the barriers for the SET. We achieved the SET operation using this technique up to 120K. Now the mechanism of the higher temperature operation is under consideration, however, we expect the much better improvement in the future.

(4) Aligned growth of carbon nanotubes

To control positions and orientations of carbon nanotubes on a substrate is important to realize the integration of nanotube devices such as SET and FET and to assemble the functional devices consist of several nanotubes. Lately, we have succeeded in controlling the positions of carbon nanotube by a CVD-growth of nanotubes directly on the substrate with a patterned catalyst. However, it was not enough for our purpose, because the grown nanotubes have random orientations. Therefore, we are trying to control the orientation of growth of nanotubes. It is known that CVD-growth nanotubes can be aligned along a specific atomic arrangement or atomic steps of substrate surface when specific substrate such as a sapphire and quartz are used. Based on this nature, we will fabricate carbon nanotube array in which all nanotubes horizontally align to the substrate, and use it as a template for nanotube devices. Until now, we have succeeded in the aligned growth of nanotubes using quartz substrate and ferritin as a catalyst. We have also succeeded in the aligned growth of nanotube in local position with catalysts patterned by a photography technique. We are now working on the optimization of the catalyst density and the CVD conditions in order to match the length and tube density of growth nanotubes to the fabrication process of nanotube devices.

(5) Fabrication of carbon nanotube quantum dots with nuclear spins

A nuclear spin could be important for the quantum bit since it has a long coherence time. To explore the feasibility of the use of nuclear spin in carbon nanotube quantum dot, we have grown carbon nanotubes made of ^{13}C atoms which have 1/2 nuclear spins and characterized by Raman spectroscopy and transport measurements. Carbon 13 nanotubes are obtained by the CVD growth with ethanol with ^{13}C . By Raman spectroscopy of samples with various content of ^{13}C , we have found that the ^{13}C content of carbon 13 nanotubes can be controlled by that of ethanol, and that ^{13}C content dependence of the FWHM shows peak around 50 % probably due to randomness. We have established the fabrication process of quantum-dot devices using the carbon 13 nanotubes and succeeded to observe clear Coulomb diamonds at low temperature. To clarify the interaction between nuclear spins and electron spins in the carbon 13 nanotube quantum dots, measurements and analysis of the magnetic field dependence and the response to radio wave are under way.

(6) Molecular nanostructures with chemically modified carbon nanotubes

In the field of carbon nanotube-based electronics, the methodology of band engineering which enables us to design various device properties is one of the key technologies that should be developed. We have been trying to synthesize the super-structures of carbon nanotubes (CNTs) involving the CNT-molecule junctions. Since the presence of molecules modifies the electronic structures around the junctions, it is expected that the electron transport properties in the super-structures of CNTs are able to be controlled by choosing an appropriate combination of CNTs and molecules. In addition to it, the molecular junctions might be useful to fabricate the super-structures with distinctive shape, for example, a ring-shape and a Y-shape, that are applicable to the electron wave interference devices. At current year, the electron confinement was observed in such a super-structure that both ends of metallic CNT were terminated with the polypeptide

chains. We also succeeded in producing the CNT rings of 100 nm to 300 nm in diameter by connecting both ends of individual CNTs with ester linkages.

2. Functionality in nanostructures and application to nanodevices

(1) Carbon nanotubes fabricated on a GaAs/AlGaAs 2-dimensional electron gas wafer

To explore the useful combination of carbon nanotube (CNT) devices with a 2-dimensional electron gas (2DEG) system in a GaAs/AlGaAs heterostructure, we have fabricated carbon nanotube single electron transistor on the 2DEG wafer, and investigated the gate action mechanism, which was fabricated on the surface of the 2DEG wafer. It was found that the gate on the wafer surface acts to the CNT quantum dot through the 2DEG. We could switch on and off the gate action by grounding and floating the 2DEG layer.

The quantum point contact (QPC) realized in the 2DEG is a sensitive electrometer when it is set in a tunneling regime. We have succeeded in detecting the change in the number of electrons in the CNT quantum dot in the current in the QPC formed in the 2DEG.

(2) Quantum THz response of the carbon nanotube quantum dot

The energy scales associated with the QD, which are the single electron charging energy (E_c) and the level spacing of the confined states (ΔE), exist in a frequency range from submillimeter to terahertz (THz). These numbers are larger by more than an order, compared with those in semiconductor QDs fabricated by the standard lithography techniques. We have observed the quantum THz response of an individual CNT-QD at liquid Helium temperature. The main finding is that the new satellite peaks appeared as the sample was irradiated with the THz wave. The distance between the main Coulomb peak, which appeared also without THz irradiation, and the satellite peak increased linearly as the THz frequency was increased. The observation suggests the THz photon assisted tunneling (THz-PAT) of an electron in the QD to the drain electrode. The THz power dependence of the main peak and the satellite peak showed an indication of Bessel-type behavior, which is well-known in the quantum response of the superconductor-insulator-superconductor (SIS) junction in a microwave range. The overall features of our observations can be explained by the Tien-Gordon model, in which the tunnel rate at the barriers is modified by the formation of the photon side bands. The THz-PAT was possible in the CNT-QD where $E_c \gg \hbar f$ is easily satisfied.

(3) Single-wall carbon nanotube with superconducting contacts

Superconductor with a one-dimensional normal constriction is possible with a single wall carbon nanotube (SWNT). We have studied the electron transport in a SWNT with superconducting contacts of Al. A low contact resistance as small as a quantum resistance can be realized with Pd sandwiched between the Al and SWNT. This indicates that the ballistic transport is realized in the SWNT. The current was measured as functions of the source drain voltage (V_{sd}) and the gate voltage (V_g). The measurement showed the Fabry-Perot interference pattern, suggesting that the SWNT is working as a resonator for electrons. The important notice was that the supercurrent flowed at $V_{sd}=0$ that was modulated by the gate voltage. This observation could be explained by the resonant levels that were broadened by the weak confinement and the position of the resonant states was modulated by the gate voltage. Another important observation is dips the differential resistance due to the multi-Andreev reflection, which was observed in a subgap of the voltage state. The position of the dips appeared in the predicted positions by $V_n=2\Delta/ne$, where Δ , is a superconducting gap and n , the order of the Andreev reflection. In the experiment, the dips up to $n=2$ were observed.

(4) Fabrication of random-network FETs

Single-wall carbon nanotubes can be semiconducting or metallic, depending on how they are rolled up from the graphene sheet. One of the practical applications, which might be realized in future, is a random-network FET. We have developed improved fabrication process for the high performance FET by assembling isolated SWNTs. Besides, to eliminate the hysteresis of the gate characteristic, the ion bombardment process was developed. This reduced the hysteresis very much, which may be due to the reduction of the charged water molecules on the surface. The best FET realized a mobility of $\sim 0.7 \text{ cm}^2/\text{Vs}$ and a on/off ratio of $\sim 10^{-3}$.

(5) Single electron transistor (SET) fabricated with an individual Si nanowire

Si nanowires could be attractive for spin based-nanodevices, because they have a small spin-orbit coupling and a Si atom with a nuclear spin is not dominant, which is also the case for carbon nanotubes. This indicates that the spin is stable in Si. Because of this, we have started fabricating quantum dot with Si nanowires. Si nanowires with a diameter of several nm and a length longer than micron can be formed with a catalytic chemical vapor deposition (CVD) method. We have developed a fabrication process of the SET from a single Si nanowire, and have succeeded in observing a single electron transport at low temperature for the sample with a diameter of 100nm. By using the narrower nanowire, the operation temperature can increase, and a variety of nanodevices could be fabricated with the material.

3. Development of inspection techniques in nanoscale

(1) On-chip near-field terahertz probe integrated with a detector

The advantageous properties of terahertz (THz) waves - permeability through objects opaque for visible light, the important spectrum in the meV range, etc. - potentially enable various applications of imaging in this band. A promising approach for achieving high spatial resolution is to utilize near-field imaging (NI) technique. This method has been well established in visible and microwave regions. However, the development of the NI technique in the THz region has been hindered by the lack of high transmission wave line and the low sensitivity of the commonly used detector. This issue is therefore one of the most formidable and challenging tasks of contemporary photonics research. Though we have previously constructed a THz imaging setup based on a solid immersion lens, the resolution of this system is restricted by the diffraction limit.

One of the important key points for producing a NI system is the degree of efficiency with which one transforms the evanescent field into the propagation field and one guides it to a detector. In most instances, the propagated evanescent

wave is measured with a distant detector, which requires detecting very weak waves, and the influence of far-field waves is unavoidable. In contrast, we have developed a new device for THz-NI in which all components: an aperture, a probe, and a THz detector are integrated on one GaAl/AlGaAs heterostructure chip. The use of the THz detector based on a two-dimensional electron gas (2DEG) layer, located immediately below the probe, makes it possible to sense the evanescent field very efficiently and to avoid the influence of the far-field component of the incident THz radiation. Furthermore, the all-integrated THz-NI scheme does not need any optical and mechanical alignments between each component, thus resulting in a simple and robust system.

Numerical calculations reveal that the existence of the planar probe leads to significant enhancement in the propagation efficiency of the THz evanescent field. This effect was experimentally confirmed by comparing a detected signal for the aperture plus the probe and one for the aperture alone. By scanning the device across a sample with the alternate THz opaque/transparent geometry, we obtain a spatial resolution of $9\mu\text{m}$. The resolution does not depend on the wavelength of the incident THz wave and almost matches the aperture diameter of $8\mu\text{m}$. The resolution of $9\mu\text{m}$ corresponds to $\lambda/24$ for the wavelength $\lambda=214.6\mu\text{m}$. These facts clearly demonstrate that the observed features originate from the near-field effect and the present device properly functions as a THz-NI probe.

Decreasing the aperture diameter would lead to improvement in the spatial resolution. Generally, however, the detected signal strongly depends on the inverse of the aperture diameter. One way to tackle this problem would be to use a THz detector based on a carbon nanotube, which we have recently developed. Compared to the present 2DEG detector, the carbon-nanotube detector exhibits much higher sensitivity and has a much smaller sensing area (typically, 100-300nm). When this detector is integrated with an aperture and a probe like the present device structure, it is expected to show ultra-high sensitivity and a sub- μm resolution simultaneously.

(2) Scanning electrometer combined with an AFM cantilever

The study of the spatial properties of the electrical noise arising from charge fluctuation has become increasingly important in the field of solid-state device engineering. Scanning electrometer is a powerful tool for investigating such an issue. Previously, we have developed a new type of scanning electrometer that utilizes capacitive coupling between a sample and a quantum Hall sensing device. We have achieved high sensitivity by using large Shubnikov-de Haas oscillations of longitudinal resistance of the sensor. Moreover, we have demonstrated its use to record the first maps of the spatial distribution of the noise voltages in a quantum Hall sample.

Our next aim is to improve the spatial resolution and the sensitivity of our system, enabling us to study systematically the spatial distribution and the frequency dispersion of charge fluctuation. For this purpose, we have built a new modified system: combination of an electrometer with a metal-coated cantilever. In this system, since local noise voltage is detected through capacitive coupling between the probe tip and the sample, the resolution should be mainly determined by the tip diameter. We have successfully confirmed that a quantum Hall device, combined with a cantilever, works as a high-resolution electrometer. We are currently trying to use a quantum point contact device or a carbon nanotube single electron transistor as other electrometers.

Staff

Head

Dr. Koji ISHIBASHI

Members

Dr. Takao SHIOKAWA

Dr. Shu WATANABE

Dr. Tomohiro YAMAGUCHI

Dr. Yukio KAWANO

Dr. Akira HIDA*¹

Dr. Shao Yun HUANG*¹

Dr. Hiroshi TABATA*¹

Dr. Takahiro MORI*²

Dr. Ryota NEGISHI*²

*1 Special Postdoctoral Researcher *2 Contract Researcher

Visiting Members

Dr. Sohachi IWAI

Mr. Masaru MIHARA

Dr. Takahiro MORIMOTO (JSPS)

Prof. Honqi Xu (Lund Univ. Sweden)

Prof. Bao Ping ZHANG (Xiamen Univ. China)

Dr. Yoshiko ITO

Dr. Yoichi ISHIWATA (Saga Univ.)

Dr. Hideyuki MAKI (Keio Univ.)

Prof. Yuichi OCHIAI (Chiba Univ.)

Prof. Hideki HASEGAWA (Hokkaido Univ.)

Dr. Hiroshi OHTA (NICT)

Trainees

Mr. Keiichi SHIMODA (Nagaoka Univ. Technol)
Ms. Maki SHIMIZU (Tokyo Univ. Sci.)
Mr. Nobuyuki YAMAZAKI (Chiba Univ.)
Mr. Mitsutoshi MAKIHATA (Tokyo Inst. Technol.)
Ms. Seiko TOYOKAWA (Tokyo Univ. Sci.)
Mr. Syunsuke SATO (Tokyo Univ. Sci.)
Mr. Hiroshi YOSHIDA (Tokyo Univ. Sci.)
Mr. Masahiro ASAKURA (Tokyo Univ. Sci.)
Mr. Masayuki SUGAHARA (Univ. Tokyo)
Mr. Kazuo OMURA (Tokyo Univ. Sci.)
Mr. Fuminori KUTSUNA (Tokyo Univ. Sci.)
Mr. Manabu OIE (Tokyo Univ. Sci.)
Mr. Takayuki SUZUKI (Tokyo Univ. Sci.)