

科学研究費助成事業（基盤研究（S））公表用資料
〔令和4（2022）年度 中間評価用〕

令和4年3月31日現在

研究期間	：2020年度～2024年度
課題番号	：20H05660
研究課題名	：単一分子トランジスタのテラヘルツダイナミクスと量子情報処理技術への展開
研究代表者氏名（ローマ字）	：平川一彦（Kazuhiko HIRAKAWA）
所属研究機関・部局・職	：東京大学・生産技術研究所・教授
研究者番号	：10183097

研究の概要：

近年、極限的に微細な系を活性層とするトランジスタを形成し、エレクトロニクスに新しい局面を拓こうとする研究が重要となりつつある。本研究では、金属ナノギャップ電極を用いて、単一分子や量子ドットのテラヘルツ領域でのダイナミックな伝導特性を明らかにするとともに、分子の核スピンや電子-電磁波ハイブリッド系を量子情報処理への応用に展開し、「テラヘルツナノサイエンス」を推進・深化させる。

研究分野：ナノ・マイクロ科学、電子・電気材料工学、電子デバイス・電子機器

キーワード：単一分子トランジスタ、核スピン、量子ドット、テラヘルツ電磁波、共振器

1. 研究開始当初の背景

近年、量子ドット、ナノワイヤー、単一分子など極微ナノ構造を活性層に用いた新規トランジスタの研究が注目されている。特に、単一分子は分子機能をエレクトロニクスに応用できるデバイスとして注目されるとともに、分子振動や核スピンなどが新しい量子情報処理の媒体となる可能性も検討されている。このようなナノ構造中の量子準位や分子振動などの素励起のエネルギーは、おおよそテラヘルツ（THz）電磁波の光子エネルギーに対応するため、THz 電磁波との相互作用の研究は、ナノ量子構造の物理の解明やその応用に適していると考えられる。

最近、我々は原子スケールのギャップを有する金属電極を単一分子に形成し、それらを THz アンテナとして用いることにより、単一分子に THz 電磁波を集光するとともに、THz 誘起の電流変化を計測することにより、単一分子内の励起に由来する極微弱な THz 信号を測定することに成功した（S. Q. Du, K. Hirakawa, et al., Nature Photon. 12, 608 (2018)）。また、sub-nm ギャップ中の THz 電界は、真空中のそれに比べて 10 万倍も増強されるため、極めて強い THz 交流電界にさらされた電子伝導という非常に興味深い状況も作り出せることもわかってきた。ちょうど今、THz 電磁波と極微ナノ構造の相互作用の研究は新しいフェーズに入ったと言えよう。このタイミングを逃さず、極微ナノ構造を舞台として起きる物理を掘り下げるとともに、それらを量子情報処理技術に応用できないかを検討すべきである。

2. 研究の目的

上記のような背景の下、現在立ち上がりつつある原子スケールの「テラヘルツナノサイエンス」という新しい分野をさらに推進・深化させ、応用への展開可能性を探ることを本研究の目的とする。具体的な研究目的は、以下の通りである。

- 1) ナノギャップ電極を用いた単一分子の電気伝導および THz ダイナミクスの解明
- 2) 単一分子の核スピン情報の電氣的な検出と量子情報処理への展開
- 3) 量子ドットと THz 電磁波との超強結合の実現と量子情報処理技術への応用
- 4) ナノギャップ電極間に生成される超強 THz 電界と電子の相互作用

3. 研究の方法

- 1) ナノギャップ電極を用いた単一分子の電気伝導および THz ダイナミクスの解明

通電断線法により原子スケールのギャップを有する極微金属電極を作製し、それを用いて捕獲した単一分子の電子伝導や THz 電磁波により誘起される電流変化を計測し、分子振動や THz 励起が伝導特性に与える影響を明らかにする。特に電子系と分子振動、電子系と電磁波を強く結合させることにより、電子伝導に量子的な制御を行う基礎を確立する。

- 2) 単一分子の核スピン情報の電氣的な検出と量子情報処理への展開

H₂O@C₆₀ 分子を代表例として、フラーレン中に内包された分子や原子の核スピンの情報を電氣的に読み出す可能性を検討する。特に、NMR をナノギャップ電極を用いた抵抗検出で測定し、新しい量子情報を担う媒体としての可能性を探索する。この研究は、どれだけ少数の核スピンの情報まで読めるかという観点から、単一分子の NMR と言う極限的な NMR 技術に挑戦することに意義がある。

- 3) 量子ドットと THz 電磁波の超強結合の実現と長距離電子相関の生成

量子ドットの中の量子状態の情報を伝導するためには、電磁波系とハイブリッド結合させることが有効である。本研究では、量子ドットと THz 共振器を組み合わせ、電子系と THz 電磁波の超強結合を実現する。さらに、THz 電磁波を介して複数の量子ドット間に相関を生成させる。

- 4) ナノギャップ電極間に生成される超強 THz 電界と電子の相互作用

波長数 μm ～数百 μm の赤外・THz 電磁波を sub-nm の電極ギャップ間に閉じ込めると、容易に $10^3\sim 10^5$ 倍

程度の極めて大きな THz 電界増強効果が得られる。この電界増強効果と高強度中赤外パルスを用いれば、「nm 領域・GV/cm オーダーの交流電界」という今までに無い超強電界領域に入ることができ、その中で起きる新規な電子物性を解明する。

4. これまでの成果

1) 単一分子の核スピン情報の読み出しに関する研究

本研究では、単一の分子や原子の核スピンの情報を、新しい量子情報を担う媒体として用いる可能性を探索する研究を行っている。我々は、ナノギャップ電極を用いて単一 $\text{H}_2\text{O}@C_{60}$ 分子トランジスタを作製し、 $\text{H}_2\text{O}@C_{60}$ 分子を経由して流れるトンネル電流やTHz電磁波を照射した時の電流変化を測定した。その結果、コンダクタンススペクトルに、パラ水分子とオルソ水分子の回転励起に起因する信号が同時に観測された。単一水分子の信号を測定しているにもかかわらず、オルソ状態とパラ状態の信号が同時に見えたことは、測定時間（数分）よりも短い時間スケールで、水分子を構成する水素原子の核スピンのフリップし、水分子がオルソとパラ状態の間を揺らいでいることを意味している。分子の量子回転モードを用いて単一核スピンの情報を読み出したことは大きな成果である。

2) 単一量子ドットとテラヘルツ共振器の超強結合の実現

半導体ヘテロ構造に超微細加工を行って実現できる量子ドットとスプリットリング共振器 (split-ring resonator; SRR) と呼ばれる微小なTHz共振器との超強結合の実現に取り組んでいる。我々は、電界が集中するSRRのギャップ近傍にfinger-gateを用いて量子ドットを作製した構造に注目し、量子ドット内の電子遷移エネルギーがSRRの共振周波数と一致する付近で非常に大きな反交差が観測されることがわかった。この反交差から、極少数の電子でも超強結合が実現できることが明らかになった。

5. 今後の計画

1) $\text{H}_2\text{O}@C_{60}$ 単一分子トランジスタの核スピンフリップの観測：

$\text{H}_2\text{O}@C_{60}$ 分子中の水分子は、基底状態ではパラ状態にあることが知られている。一方、強磁場を印加すると水素原子の核スピンのそろったオルソ状態になることが予想され、磁場を掃引していくと、ある磁場でパラ-オルソ変換が起きると考えられる。我々は、これまでの実験で、約 2T の磁場を印加したときにヒステリシスを伴った大きなコンダクタンス変化が起きるを見出し、これが水素原子の核スピンフリップによるパラ-オルソ変換によるものかどうかを明らかにし、1 原子の核スピン検出を電気的な測定で可能にする。

2) $\text{H}_2\text{O}@C_{60}$ 単一分子トランジスタの NMR 測定：

水分子の H 原子の核スピンの制御に向けて、 $\text{H}_2\text{O}@C_{60}$ 分子トランジスタ構造で NMR 測定を試みているが、現在のところ、信号の観測には至っておらず、実験を継続する。特に、 $B = 2 \text{ T}$ 以上の磁場領域ではオルソ水分子が基底状態となっている可能性があり、NMR 信号をこの領域で探す。

3) 量子ドット-THz 共振器結合系の物理と量子情報伝送の基礎研究：

量子ドットと split-ring 共振器 (SRR) を用いて実現した電子系と THz 電磁波のハイブリッド結合をさらに展開し、トポロジカル SRR ダイマーを繋いだ構造を用いて、空間的に離れた量子ドット間に相関を生成させる研究に取り組む。

4) 赤外領域の超強電場とナノギャップ電極の相互作用：

通電断線法で実現できる 1 nm 以下のギャップを有する電極に強度を制御した赤外パルス照射し、光誘起電界放射の実験を試み、新しい光電界検出素子の開発を進める。さらに、超強電界と分子との相互作用に関して検討を進める。

6. これまでの発表論文等 (受賞等も含む)

【学術論文】

- (1) S. Du, Y. Hashikawa, H. Ito, K. Hashimoto, Y. Murata, Y. Hirayama, and K. Hirakawa: “Inelastic Electron Transport and Ortho-Para Fluctuation of Water Molecule in $\text{H}_2\text{O}@C_{60}$ Single Molecule Transistors”, Nano Letters, vol. 21, pp. 10346–10353, (2021). (査読あり)
- (2) Y. Zhang, S. Du, and K. Hirakawa: “Deep-nanometer-scale terahertz spectroscopy using a transistor geometry with metal nanogap electrodes”, Light: Advanced Manufacturing, vol. 2, p. 31 (2021). (査読あり)
- (3) F. Valmorra, K. Yoshida, L. C. Contamin, S. Messelot, S. Massabeau, M. R. Delbecq, M. C. Dartiailh, M. M. Desjardins, T. Cubaynes, Z. Leghtas, K. Hirakawa, J. Tignon, S. Dhillon, S. Balibar, J. Mangeney, A. Cottet, and T. Kontos: “Vacuum-field-induced THz transport gap in a carbon nanotube quantum dot”, Nature Communications vol. 12, p. 5490 (2021). (査読あり)
- (4) S. Du, Y. Zhang, K. Yoshida and K. Hirakawa: “Ultrafast rattling motion of a single atom in a fullerene cage sensed by terahertz spectroscopy”, Applied Physics Express, vol.13, 105002 (2020). (査読あり)

【受賞】平川一彦：令和2年度応用物理学会業績賞

7. ホームページ等

<https://www.iis.u-tokyo.ac.jp/ja/research/archive/3729/>, <https://www.eurekalert.org/news-releases/939406>