

科学研究費助成事業（科学研究費補助金）研究成果報告書

平成 24 年 6 月 22 日現在

機関番号：82108

研究種目：若手研究（B）

研究期間：2010～2011

課題番号：22760235

研究課題名（和文） グラフェン単電子集積回路の開発

研究課題名（英文） Development of single-electron devices with graphene

研究代表者

津谷 大樹 (TSUYA DAIJU)

独立行政法人物質・材料研究機構・ナノテクノロジー融合ステーション・主任エンジニア

研究者番号：10469760

研究成果の概要（和文）：本研究は、炭素原子 1 層から数層で構成されるグラファイトシート（グラフェン）を単電子デバイスの Building Block として着目し、グラフェンを用いた単電子トランジスタの高温動作化および単電子論理回路への可能性を探求した。高温動作化においては、単電子トランジスタの核となるアイランドをより小さくする必要があるため、本研究ではより小さなグラフェンアイランドの作製手法と、それを用いたデバイス作製手法を開発し、従来よりも高温で動作するグラフェン単電子トランジスタの動作実証を行った。

研究成果の概要（英文）：Graphene is an attractive material as a building block of next-generation electronic devices because of its excellent material property. In this study, we focused on graphene as an island of a single-electron transistor, and researched how to fabricate the device to operate in a higher temperature range and to apply to a single-electron integrated circuit.

交付決定額

（金額単位：円）

	直接経費	間接経費	合計
2010 年度	2,200,000	660,000	2,860,000
2011 年度	1,000,000	300,000	1,300,000
年度			
年度			
年度			
総計	3,200,000	960,000	4,160,000

研究分野：工学

科研費の分科・細目：電気電子工学，電子・電気材料工学

キーワード：薄膜・量子構造，グラフェン，単電子トランジスタ，単電子集積回路

1. 研究開始当初の背景

半導体集積回路は、トランジスタ素子を微細化することによって、高速化、高集積化を実現してきた。しかし、近年微細化の限界と同様に、半導体集積回路の構成にも限界が近付いているといえる。その大きな要因の一つが集積回路における消費電力の増大である。最近では、コンピュータの中央演算処理装置の発熱を冷却技術の開発によってカバーし

てきたが、それももはや限界であり、増大し続ける消費電力や単位面積当たりの発熱量に対して、デバイスやシステム自体の考え方を大きく変えなければならない転換期に直面している。そのような中で、少数電子での動作によって消費エネルギーを抑え、さらに素子のサイズを小さくすればするほど特性が向上する単電子デバイスは、次世代エレクトロニクスに要求されるさらなる高集積化、

低消費電力化が見込めるため、次世代情報処理デバイスとして大きな可能性を持っている。固体素子として最も有望である量子ドットを用いた単電子エレクトロニクスは、その可能性が期待されながらも、半導体材料では微細化の限界による動作温度の限界（液体ヘリウム温度）の問題、さらに近年の固体素子量子コンピューティングを目指した量子ドット素子の応用では、微細化の問題に加えて、コヒーレンスの維持という深刻な問題が存在するため、高性能化・新機能化が指摘されながらも現時点では実現は困難であると言わざるを得ない。そのような中、2005年のグラフェンの電気伝導測定成功(K.S. Novoselov et al, Nature 438, 197 (2005)等)から、カーボン系材料を用いた低次元量子伝導素子としての可能性が期待されている。特に新規量子デバイスの観点からこの材料は注目され、スピン注入(N. Tombros et al., Nature 448, 571 (2007))等、欧州・米国を中心にデバイスの研究が活発に進められてきているが、量子ドットや量子細線といった量子ナノデバイスは未だ基礎研究段階で、多くのグループが挑戦を行っている。

2. 研究の目的

我々は、これまでに同じ炭素系材料であるカーボンナノチューブを用いて量子ドットを作製し、この系では世界で初めて2個の単電子トランジスタで構成される相補型単電子インバータ、さらに単電子 XOR ゲート動作実証による単電子素子独自のアーキテクチャである多値論理回路の実証に成功してきた(D. Tsuya et al., Appl. Phys. Lett., 87, 153101 (2005), K. Ishibashi and D. Tsuya et al., Appl. Phys. Lett., 82, 3307 (2003) 等)。グラフェンの特性はカーボンナノチューブと非常に近く、その2次元的に広がったシートの構造を微細加工技術によってトップダウンでナノ量子構造を作製すれば、集積化した単電子回路構造の実現が可能である。これまで蓄積した微細加工技術と単電子デバイス測定技術を礎に、さらに新たなグラフェン加工プロセス技術を開発し、集積化した単電子デバイスを極低温ではなく、室温動作までを視野に入れた温度領域での動作を実現できると考え、本研究の着想に至った。

3. 研究の方法

単電子トランジスタの高温動作化のためには、より小さなアイランドが必要となるため、まず小さなグラフェンアイランドの形成技術の開発を行った。キッシュュグラフィートを機械的剥離法によってへき開し、SiO₂/Si基板上に転写することによって、基板上に数10μm角程度のグラフェンを形成する(図1)。

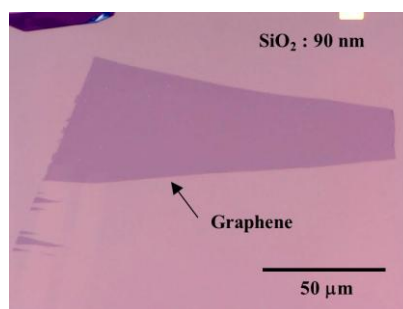


図1. SiO₂/Si基板上に転写したグラフェンの光学顕微鏡像

図1のような基板の上の大きなグラフェンからナノスケールのグラフェンアイランドを作製する方法として電子ビーム描画とドライエッチング技術を用いた。直径100~500nm程度にグラフェンを加工し、その後、そのグラフェンアイランドに高精度に制御された重ね合わせ電子ビーム描画技術と真空蒸着法を用いてコンタクト電極を形成し、単電子トランジスタを作製した(図2, 3)。作製した素子は室温および低温での電気伝導測定を行い、単電子輸送特性および温度変動による特性変化の評価を行った。

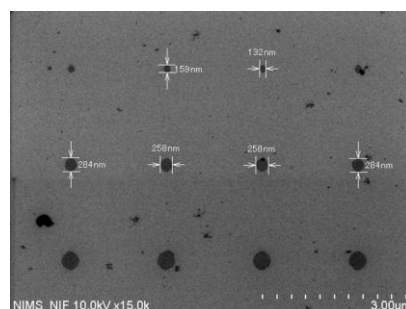


図2. 電子ビーム描画およびドライエッチングによってナノスケールに加工したグラフェンの電子顕微鏡像

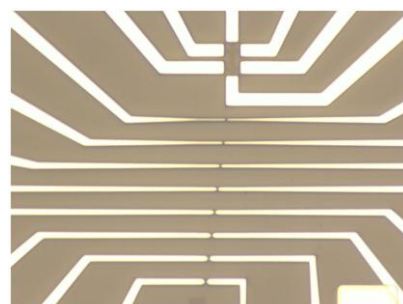


図3. コンタクト電極形成後の光学顕微鏡像

4. 研究成果

図4は作製したグラフェン単電子トランジスタの一例である。電極はTi/Auで作製し、電極間隔はアイランドの大きさによって異なるが、およそ200nmである。これらの素子を $T=1.6\text{K}$ において測定した。この低温下において、単電子トランジスタの特性を示すクーロンブロック現象を観測した(図5)。また、ゲート電圧の変化によってI-V特性が変調しているため、これらの素子は単電子トランジスタとして機能していることがわかる。図6はゲート電圧 $-5\text{V}\sim 20\text{V}$ まで変調させた際のクーロンダイヤモンド特性である。このクーロンダイヤモンド特性から、この単電子トランジスタの帯電エネルギー(E_c)は約50meV、温度に換算すると約600Kである。これは室温(約300K)と比較して十分大きく、グラフェン単電子トランジスタの高温動作化に向けた大きな結果である。ただし、このクーロンダイヤモンド特性からも見てわかるように、ダイヤモンドの周期、大きさが一様でない上、本特性から見積もられるアイランドサイズも20nm程度であることから、この単電子トランジスタは円形に加工したグラフェン全体が一つのアイランドとして機能しているのではなく、それよりも非常に小さいアイランドが複数形成されてしまっていると考えられる。この要因としては、グラフェン内の何らかの欠陥に因るものか、もしくはグラフェン表面に電荷を帯びた不純物が付着し、それが局所的な電場を作り、グラフェンのエネルギーポテンシャルが揺らいだことに因るものと思われる。

本研究期間においては、単一のアイランドによる単電子トランジスタでの高温動作は実証できなかったが、ナノサイズのグラフェンをアイランドとしたグラフェン単電子トランジスタの作製技術を確立し、多重アイランドではあるが、室温よりも十分大きな帯電エネルギーを得ることができた。これらの成果は今後のグラフェン単電子トランジスタの高温動作化に向けた大きな結果であると考えている。

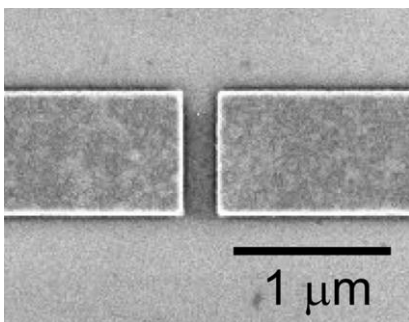


図4. 作製したグラフェン単電子トランジスタの電子顕微鏡像

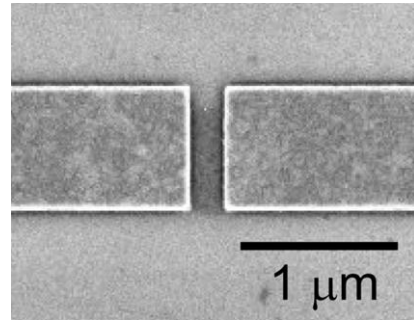


図4. 作製したグラフェン単電子トランジスタの電子顕微鏡像

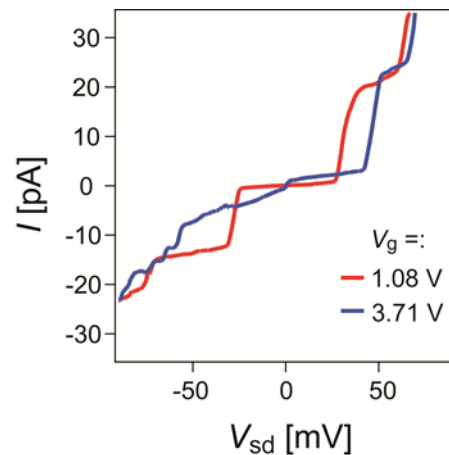


図5. 作製した素子の $T=1.6\text{K}$ における電流電圧特性

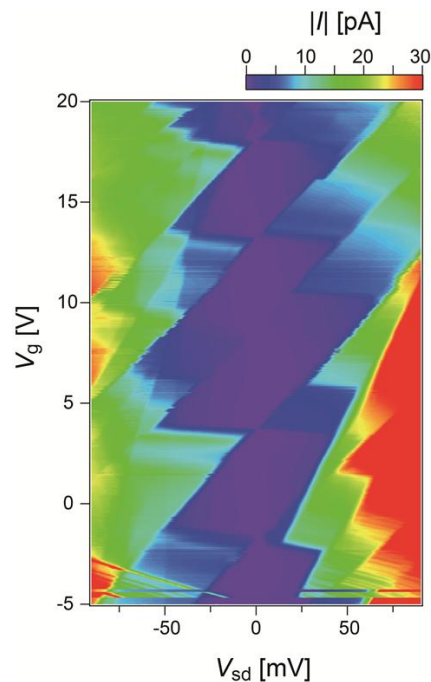


図6. $T=1.6\text{K}$ でのクーロンダイヤモンド特性

5. 主な発表論文等

(研究代表者、研究分担者及び連携研究者には下線)

[雑誌論文] (計 12 件)

- ① E. Watanabe, A. Conwill, D. Tsuya, Y. Koide: “Low contact resistance metals for graphene based devices”, *Diamond and Related Materials* 24, 171-174 (2012). (査読有り)
- ② N. Ikeda, Y. Sugimoto, M. Ochiai, D. Tsuya, Y. Koide, D. Inoue, A. Miura, T. Nomura, H. Fujikawa, K. Sato: “Color filter based on surface plasmon resonance utilizing sub-micron periodic hole array in aluminum thin film”, *IEICE Transactions on Electronics E95-C*, 251-254 (2012). (査読有り)
- ③ K. Asakawa, Y. Sugimoto, N. Ikeda, D. Tsuya, Y. Koide, Y. Watanabe, N. Ozaki, S. Ohkouchi, D. Inoue, T. Matsui, A. Miura, H. Fujikawa, K. Sato: “Nano photonics Based on Semiconductor - Photonic Crystal/Quantum Dot and Metal-/Semiconductor - Plasmonics”, *IEICE Transactions on Electronics E95-C*, 178-187 (2012). (査読有り)
- ④ Y. Ishiwata, T. Shiraiishi, N. Ito, S. Suehiro, T. Kida, H. Ishii, Y. Tezuka, Y. Inagaki, T. Kawae, H. Oosato, E. Watanabe, D. Tsuya, M. Nantoh, K. Ishibashi: “Metal-insulator transition sustained by Cr-doping in V2O3 nanocrystals”, *Applied Physics Letters* 100, 043103 1-3 (2012). (査読有り)
- ⑤ S. Nagashima, T. Hasebe, D. Tsuya, T. Horikoshi, M. Ochiai, S. Tanigawa, Y. Koide, A. Hotta, T. Suzuki: “Controlled formation of wrinkled diamond-like carbon (DLC) film on grooved poly(dimethylsiloxane) substrate” *Diamond and Related Materials* 22, 48-51 (2012). (査読有り)
- ⑥ M. Tagaya, T. Yamazaki, D. Tsuya, Y. Sugimoto, N. Hanagata, T. Ikoma: “Nano/Microstructural Effect of Hydroxyapatite Nanocrystals on Hepatocyte Cell Aggregation and Adhesion”, *Macromolecular Bioscience* 11, 1586-1593 (2011). (査読有り)
- ⑦ D. Inoue, A. Miura, T. Nomura, H. Fujikawa, K. Sato, N. Ikeda, D. Tsuya, Y. Sugimoto, Y. Koide: “Polarization independent visible color filter comprising an aluminum film with surface-plasmon enhanced transmission through a subwavelength array of holes”, *Applied Physics Letters* 98, 093113 1-3 (2011). (査読有り)
- ⑧ H. Tomori, A. Kanda, H. Goto, Y. Ootsuka, K. Tsukagoshi, S. Moriyama, E. Watanabe, D. Tsuya: “Introducing Nonuniform Strain to Graphene Using Dielectric Nanopillars”, *Applied Physics Express* 4, 075102 1-3 (2011). (査読有り)
- ⑨ S. Migita, N. Hanagata, D. Tsuya, T. Yamazaki, Y. Sugimoto, T. Ikoma: “Transfection efficiency for size-separated cells synchronized in cell cycle by microfluidic device”, *BIOMEDICAL MICRODEVICES* 13, 725-729 (2011). (査読有り)
- ⑩ D. Inoue, A. Miura, T. Nomura, H. Fujikawa, K. Sato, N. Ikeda, D. Tsuya, Y. Sugimoto, Y. Koide: “Polarization independent visible color filter comprising an aluminum film with surface-plasmon enhanced transmission through a subwavelength array of holes”, *Applied Physics Letters* 98, 093113 1-3 (2011). (査読有り)
- ⑪ S. Kim, R. Ishiguro, M. Kamio, Y. Doda, E. Watanabe, D. Tsuya, K. Shibata, K. Hirakawa, H. Takayanagi: “ π junction transition in InAs self-assembled quantum dot coupled with SQUID”, *Applied Physics Letters* 98, 063106 1-3 (2011). (査読有り)
- ⑫ S. Moriyama, Y. Morita, E. Watanabe, D. Tsuya, S. Uji, M. Shimizu, K. Ishibashi: “Fabrication of quantum-dot devices in grapheme”, *Science and Technology of Advanced Materials* 11, 054601 1-5 (2010). (査読有り)

[学会発表] (計 3 2 件)

- ① H. Tomori, H. Goto, Y. Nukui, Y. Toyota, K. Tsukagoshi, Y. Ootsuka, S. Moriyama, E. Watanabe, D. Tsuya, A. Kanda:

- “Inducing Nonuniform Strain in Graphene Using Dielectric Nanopillars: Toward Strain Engineering”, Material research society 2011 Fall meeting (MRS 2011), Boston, USA, 11/28-12/02 (2011).
- ② 津村公平, 大杉正樹, 林朋美, 渡辺英一郎, 津谷大樹, 野村晋太郎, 高柳英明: “Fabrication and Transport Measurement of Graphene-based Superconducting Interference Device”, International Workshop on Quantum Nanostructures and Nanoelectronics, Tokyo, Japan, 10/3-10/4 (2011).
- ③ H. Tomori, H. Goto, Y. Nukui, Y. Toyota, Y. Ootsuka, S. Moriyama, K. Tsukagoshi, E. Watanabe, D. Tsuya, A. Kanda: “Introducing Nonuniform Strain to Graphene: Toward Strain Engineering”, 2011 International Conference on Solid State Devices and Materials, Nagoya, Japan, 9/27-9/30 (2011).
- ④ 矢ヶ部恵弥, 石黒亮輔, 中村壮智, 大里啓孝, 渡辺英一郎, 津谷大樹, 高柳英明, 前野悦輝: “Nb/Ru/Sr2RuO4 超伝導接合を用いたマイクロ SQUID の温度特性”, 2011 年秋季物理学会, 富山大学, 9/21-9/24 (2011).
- ⑤ 石渡洋一, 白石達也, 末廣智, 木田徹也, 石井啓文, 手塚泰久, 渡辺英一郎, 津谷大樹, 稲垣祐次, 河江達也: “Cr ドープ V2O3 ナノ粒子の金属絶縁体転移”, 2011 年秋季物理学会, 富山大学, 9/21-9/24 (2011).
- ⑥ 友利ひかり, 後藤秀徳, 豊田行紀, 大塚洋一, 塚越一仁, 森山悟士, 渡辺英一郎, 津谷大樹, 神田晶申: “非一様歪みのあるグラフェンの形成と電気伝導測定”, 2011 年秋季物理学会, 富山大学, 9/21-9/24 (2011).
- ⑦ 津村公平, 大杉正樹, 林朋美, 渡辺英一郎, 津谷大樹, 野村晋太郎, 高柳英明: “グラフェンを用いた超伝導量子干渉計の作製と輸送測定”, 2011 年秋季物理学会, 富山大学, 9/21-9/24 (2011).
- ⑧ 神尾充弥, 金鮮美, 井上亮太郎, 矢吹絃久, 定昌史, 野田武司, 渡辺英一郎, 津谷大樹, 高柳英明: “自己形成 InAs 量子リング素子における微分コンダクタンスの磁場依存性”, 第 72 回応用物理学会学術講演会, 山形大学, 8/28-9/2 (2011).
- ⑨ 石黒亮輔, 矢ヶ部恵弥, 中村壮智, 渡辺英一郎, 大里啓孝, 津谷大樹, 高柳英明, 前野悦輝: “Ru-Sr2RuO4 共晶と Nb 用いた立体型 nanoSQUID の開発”, 第 72 回応用物理学会学術講演会, 山形大学, 8/28-9/2 (2011).
- ⑩ 大杉正樹, 津村公平, 林朋美, 渡辺英一郎, 津谷大樹, 野村晋太郎, 高柳英明: “グラフェンを用いた超伝導量子干渉計”, 第 72 回応用物理学会学術講演会, 山形大学, 8/28-9/2 (2011).

6. 研究組織

(1) 研究代表者

津谷 大樹 (TSUYA DAIJU)
独立行政法人物質・材料研究機構
ナノテクノロジー融合ステーション
主任エンジニア
研究者番号: 10469760

(2) 研究分担者 なし

(3) 連携研究者 なし