

科学研究費助成事業 研究成果報告書

平成 30 年 6 月 9 日現在

機関番号：12608

研究種目：若手研究(B)

研究期間：2015～2017

課題番号：15K17483

研究課題名(和文) ナノメカニカルクーロンブロッケードシャトル現象を用いた電流標準素子の実現

研究課題名(英文) Current standard devices by nanomechanical Coulomb blockade shuttle phenomena

研究代表者

東 康男 (Azuma, Yasuo)

東京工業大学・科学技術創成研究院・准教授

研究者番号：80452415

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 2,900,000円

研究成果の概要(和文)：ナノメートルスケールの機械的振動に伴う電子の逐次転送現象であるナノメカニカルクーロンブロッケードシャトル現象を固体基板上で実現することで、電流標準素子を作製することができる。本研究では電子線描画法を用いて固体基板上にナノギャップ電極構造を作製し、これと金属ナノ粒子を組み合わせ、単電子トランジスタを作製することで、金属ナノ粒子上の電子数を制御することを行った。合わせて機械的振動が可能となるナノメートルスケールの梁構造を含むナノギャップ電極構造を、梁を静電気力によって機械的に振動させた際に、ナノギャップ電極間に流れるトンネル電流の測定を行ったところ、梁の固有振動周波数に対応した電流が測定された。

研究成果の概要(英文)：Current standard devices can be realized based on nanomechanical Coulomb blockade shuttle phenomena, which is electron shuttle transportation by mechanical vibration in nanometer scale. Here we fabricated nanogap electrodes on substrates by electron-beam lithography. Combining the nanogap electrodes and metal nanoparticles, single-electron transistors are fabricated and the number of electrons on the nanoparticles are controlled. We also fabricated nanogap electrodes including a beam structure. Under the application of the RF signal, we observe a tunneling current between the nanogap electrodes with the beam structure. The tunneling current shows a peak value at a specific frequency which corresponds to an eigenfrequency of the beam structure. From the peak current value and the eigenfrequency, almost one electron transport in a period of beam vibration. Therefore, electron shuttle phenomena can be demonstrated on solid-state devices.

研究分野：ナノエレクトロニクス

キーワード：単電子デバイス

1. 研究開始当初の背景

電子は電荷の最小単位であり、電荷の流れである電流の最小構成要素である。従って電子の輸送を1つ1つ制御することができれば、電流の基準となる電流標準素子として用いることができる。単電子の輸送現象を用いたデバイスとして2つの電極(ソース・ドレイン電極)間に、クーロン島と呼ばれる中間電極をトンネル障壁を介して配置し、さらにクーロン島の電位を変調させるゲート電極を有する単電子トランジスタが知られている。さらにこの単電子トランジスタの応用の1つとして、ソース・ドレイン電極間に2つの中間電極を直列に配置し、それぞれの中間電極の電位を2つのゲート電極で独立に制御することで1つ1つの電子を輸送させることができるターンスタイルと呼ばれる素子も提案されている。単電子トランジスタはクーロンブロック現象などの単電子現象を動作原理の基本とすることから、低消費電力動作を実現できることから注目を集めているデバイスである。しかし中間電極近傍に存在するトラップ電荷などに起因する浮遊電荷がゲート電極による変調効果と同等の効果を示してしまうため、環境の変化が素子特製の変化につながってしまうという動作上の課題点がある。これはターンスタイルにおいても同様であり、浮遊電荷は電子を1つ1つ輸送させる際にも障害となりうる要因である。従って単電子トランジスタやターンスタイル等の単電子デバイスを単純に用いることだけでは電流標準素子を実現することは難しい。

研究代表者らはこれまでに単電子デバイスに機械的振動を取り込んだナノメカニカルクーロンブロックシャトル現象を実証するために、走査型トンネル顕微鏡(STM)のシステムを用いて、カンチレバー/Auナノ粒子/STM探針で構成される20トンネル接合構造において、カンチレバーを機械的に励振させた際にトンネル電流の測定を行ってきた。その結果このトンネル電流がカンチレバーの固有振動周波数に対応した値で量子化するという現象を示してきた。この結果は単電子デバイスに機械的な振動を取り込むことによって電流標準素子を実現出来る可能性を示すものである。一方でデバイスを固体基板上に作製する上でSTM探針を電極として用いる方法は現実的ではなく、デバイス構造を個体基板上で実現する必要がある。

2. 研究の目的

本研究ではナノメカニカルクーロンブロックシャトル現象を用いることで、電流標準素子を固体基板上で作製することを目的としている。上記で述べたようにデバイスを固体基板上に作製する上でSTM探針を電極として用いる方法は現実的ではなく、固体基板上で単電子デバイス、及び機械的振動を示す電極構造の作製が必要となる。これを実現す

るために、微細加工技術を用いることで単電子デバイス並びに機械的振動を起こしうる梁構造の作製を行う。

3. 研究の方法

固体基板上での単電子デバイスの作製

Si/SiO₂基板上に電子線描画を用いてドレイン・ソース・2つのサイドゲート電極パターンを描画した後、電子線蒸着装置によりTi(3 nm)/Au(15 nm)電極を蒸着する。リフトオフ後、フォトリソグラフィ、電子線蒸着装置を用いてTi(5 nm)/Au(45 nm)のコンタクト用電極パッドを形成する。次に無電解金メッキ液を調製する。まず、ヨードチンキ(2KI+I₂ ↔ 2K⁺+I₃⁻+I⁻)に金箔を溶かす。次に還元剤としてビタミンC(L(+)-ascorbic acid: C₆H₈O₆)を加えることで、溶液中の残留ヨウ素を還元する。調整した溶液を超純水で希釈し、電極パターンを形成した基板をよく洗浄した後、メッキ液に浸漬する。溶液中のビタミンCにより基板上的金電極表面がエレクトロニックリッチな状態となり、金電極表面の電子と溶液中のAu³⁺が反応することで、金電極表面だけに選択的に金がメッキされ、ドレイン・ソース電極間が狭窄化される。狭窄化に伴いAu³⁺の供給が少なくなるため、ドレイン・ソース電極間のメッキの進行速度が低下し、結果として自己停止機能が働くため、ナノギャップ電極が形成される。

このようにして作製したナノギャップ電極を、ヘキサチオール(CH₃(CH₂)₅SH)溶液中に

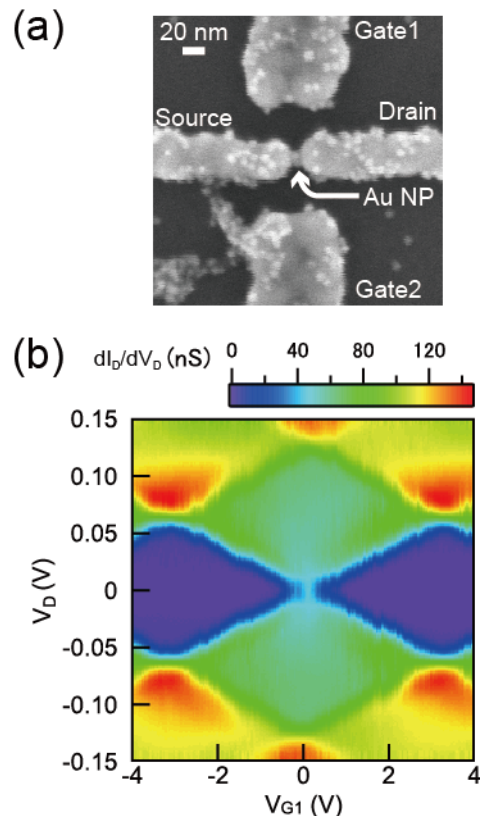


図1 (a)作製した単電子トランジスタの走査電子顕微鏡像。(b) (a)の素子で観測されたクーロンドiamond。

浸漬することで、電極表面に自己組織化単分子膜を形成した後、オクタンジチオール(HS(CH₂)₈SH)溶液中に浸漬する。これによりヘキサンチオール自己組織化単分子膜の一部をオクタンジチオールで置換した、混合自己組織化単分子膜を形成することができる。その後デカンチオール保護金ナノ粒子(平均粒径 6.2 nm)溶液に浸漬する。電極表面に存在するオクタンジチオールと保護基であるデカンチオールを置換させることで、金ナノ粒子をナノギャップ電極に化学吸着させることで単電子デバイスの作製を行った。

機械的振動を示す電極構造の作製

Si/SiO₂ 基板上に電子線描画にてパターンを作製し、EB 蒸着に Au/Ti 電極を作製した後、HF による SiO₂ ウェットエッチングを行うことで、Au/Ti 梁構造の作製を行った。このような試料に対し、梁の側面に配置した上部電極に RF 信号を入力した際に、梁-下部電極間を流れるトンネル電流の測定を行った。

4. 研究成果

(i) 単電子デバイスにおけるクーロンダイヤモンドの観察

図 1 (a) に作製した単電子デバイスの走査電子顕微鏡像を示す。ドレイン-ソース電極の間に金ナノ粒子が存在している様子が確認できる。このようにして作製した単電子デバイスにおいて、ドレイン電圧 V_D とゲート電圧 V_{G1} を変化させた際のドレイン電流 I_D の微分コンダクタンス (dI_D/dV_D) を 2 次元平面にプロットした結果を図 1 (b) に示す。いわゆるクーロンダイヤモンドと呼ばれる、菱形の領域が観測されており、作製した素子が単電子トランジスタとして動作していることがわかる。図 1 (b) で菱形の領域で示される電圧条件では、金ナノ粒子上の電子数は量子化しており電子数の制御がなされている状態である。従ってここで作製した単電子トランジスタでは、金ナノ粒子上の電子数を 1 つ 1 つ制御できていると言える。

(ii) 単電子トランジスタによるメモリ動作の実証

(i) で作製した、単電子トランジスタの機能を発展させることを目指し、図 2 (a) のように金ナノ粒子の近傍に浮遊ゲート電極を配置した構造を作製し、この浮遊ゲート電極への電荷の出入りにより、ソース電極・ドレイン電極の間を流れる電流 (I_D) が変化するメモリ効果を示すことを行った。図 2 (b) に制御電極にパルス電圧 V_{CG} を印加した際の I_D の変化を示す。 $V_{CG}=20$ V を印加した直後は数 pA の電流が流れるのに対し、 $V_{CG}=-15$ V を印加した直後は電流が流れなくなっており、浮遊電極上に存在する電荷によってメモリ動作を示している様子がわかる。ここで用いたナノギャップ電極並びに浮遊ゲート電極は電子線描画法のみで作製したものである。電子線描画法のみで

ナノギャップ電極を作製できるということは、電極構造を直接電子線描画で規定できることを示しており、この結果はナノメカニカルクーロンブロッケードシャトル素子の作製に寄与するものである。

(iii) 梁の機械的振動に伴うトンネル電流の増幅現象

図 3 (a) に作製した梁構造の走査電子顕微鏡像を示す。長さ 500 nm、幅 50 nm の梁構造が確認できる。上部電極に RF 信号を入力した際の、梁と下部の電極間(電圧 $V_D=0.1$ mV を印加)に流れるトンネル電流の測定を行った。図 3 (b) はこのトンネル電流の入力 RF 信号周波数依存性である。 $f=515$ MHz においてトンネル電流の増大が検出されていることが分かる。RF 信号の入力によって梁には静電気力が発生し、静電気力は入力電圧の 2 乗となることから、実際の梁の振動周波数は、入力 RF 信号の 2 倍の周波数である 1.03 GHz であることが予測される。さらにここで観測された電流のピーク値 0.17 nA に注目すると、この電流値は振動周波数 1.03 GHz に素電荷量 1.6×10^{-19} C を掛け合わせた値に対応していることがわかる。従ってここで作製した梁構造においては、梁の振動 1 周期に対して 1 個の電子が逐次転

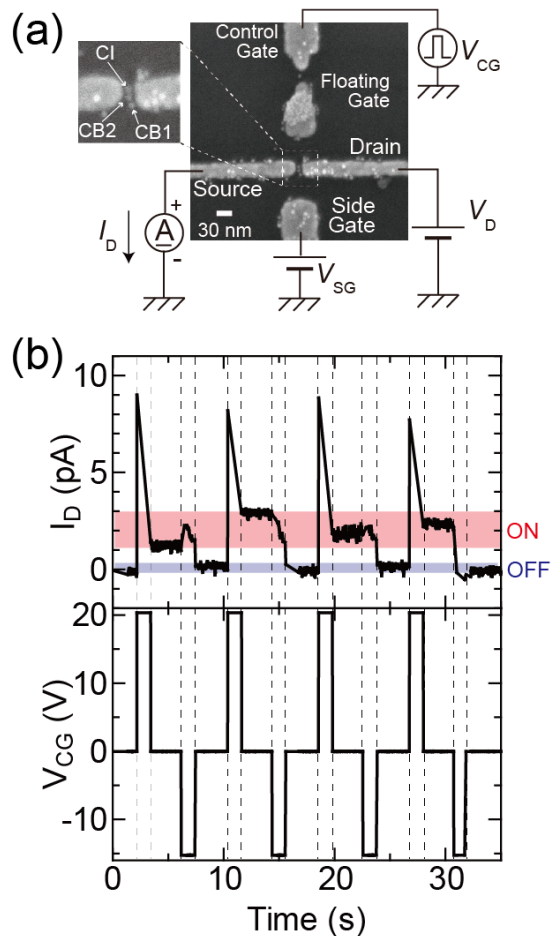


図 2 (a) 浮遊電極を有する単電子トランジスタの走査電子顕微鏡像。(b) パルス電圧印加時におけるドレイン電流の変化の様子。

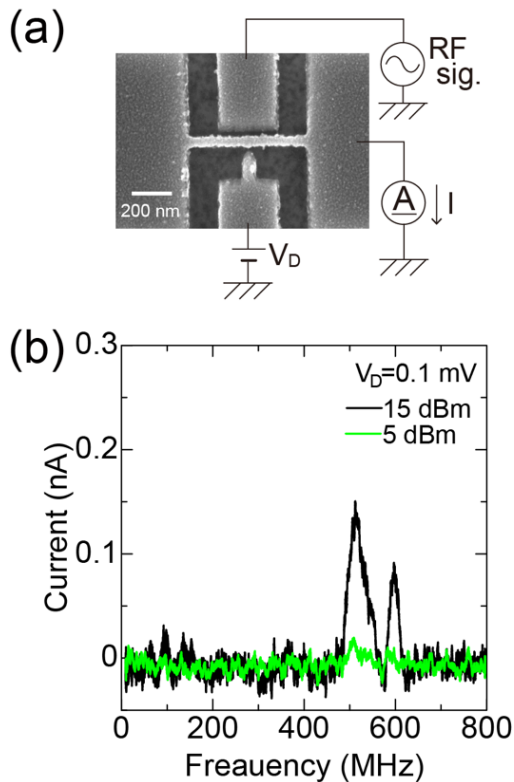


図3 (a)作製した梁構造の走査電子顕微鏡像。(b)上部電極にRF信号を入力した際の、梁-下部電極間のトンネル電流の振る舞い。梁-下部電極間には $V_D=0.1$ mVの電圧を印加している。

送されており、固体基板上での電子の逐次転送現象が実証されている。

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3件)

1. Yasuo Azuma, Yuto Onuma, Masanori Sakamoto, Toshiharu Teranishi, and Yutaka Majima, "Rhombic Coulomb diamonds in a single-electron transistor based on an Au nanoparticle chemically anchored at both ends" *Nanoscale*, **8**, 4720-4726 (2016). DOI: 10.1039/c5nr08965d 査読あり
2. Yasuo Azuma, Masanori Sakamoto, Toshiharu Teranishi, and Yutaka Majima, "Memory Operations in Au Nanoparticle Single-electron Transistors with Floating Gate Electrodes" *Appl. Phys. Lett.*, **109**, 223106 (2016). DOI: 10.1063/1.4971190 査読あり
3. Makoto Yamamoto, Yasuo Azuma, Masanori Sakamoto, Toshiharu Teranishi, Hisao Ishii, Yutaka Majima, Yutaka Noguchi, "Molecular floating-gate single-electron transistor" *Sci. Rep.*, **7**, 1589 (2017). DOI: 10.1038/s41598-017-01578-7 査読あり

[学会発表] (計11件、主要なものを示す)

1. Yasuo Azuma, Yuto Onuma, Masanori Sakamoto, Toshiharu Teranishi, Yutaka Majima "Double Chemically Anchored Au Nanoparticle Single-Electron Transistor" Eight International Conference on Molecular Electronics and Bioelectronics (M&BE8), A-P31, Tokyo Jun. 2015.
2. Yasuo Azuma, Naoki Kusunoki, Masanori Sakamoto, Toshiharu Teranishi, Yutaka Majima "Floating Gate Memory Operation in Au Nanoparticle Single-Electron Transistor" 2016 MRS Spring Meeting & Exhibit, INT6.10.05, Phoenix, Mar. 2016.
3. Yasuo Azuma, Yutaka Majima, "Electrical characteristics in Ni nanogap electrodes with asymmetric width under application of magnetic field" International Conference on Materials and Systems for Sustainability 2017 (ICMass2017), P-iLIM-2-82, Nagoya, Sep. 2017.
4. Yasuo Azuma, Yuto Onuma, Masanori Sakamoto, Toshiharu Teranishi, Yutaka Majima "Rhombic Coulomb diamonds in a single-electron transistor based on an Au nanoparticle chemically anchored at both ends" The Tenth International Conference on the Science and Technology for Advanced Ceramics (STAC-10), 2pP022/T, Yokohama, Aug. 2017
5. 東 康男, 大沼悠人、坂本 雅典、寺西 利治、真島 豊: 両末端化学吸着型ナノ粒子単電子トランジスタ: 第76回 応用物理学会秋季学術講演会、16a-4A-3、名古屋、2015年9月
6. 東 康男、坂本 雅典、寺西 利治、真島 豊: フローティングゲート電極を有するナノ粒子単電子トランジスタ: 第63回応用物理学会春季学術講演会、21a-S323-10、東京、2016年3月
7. Yoonyoung Choi, Yasuo Azuma, Yutaka Majima: Single-Electron Transistors made by Pt-based Narrow Line Width Nanogap Electrodes: 第77回 応用物理学会秋季学術講演会、13a-C42-2、新潟、2016年9月
8. 東 康男、大沼悠人、坂本 雅典、寺西 利治、真島 豊: ナノ粒子単電子トランジスタにおけるゲート容量のナノギャップ電極形状依存性: 第77回 応用物理学会秋季学術講演会、13a-C42-3、新潟、2016年9月
9. 東 康男、真島 豊: 非対称 Ni ナノギャップ電極構造における磁場中での電気伝導特性: 第78回応用物理学会秋季学術講演会、7a-PB1-3、福岡、2017年9月

6. 研究組織

(1)研究代表者

東 康男 (AZUMA YASUO)

東京工業大学・科学技術創成研究院・准教授
研究者番号: 80452415