

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 5月31日現在

機関番号：82401

研究種目：基盤研究(S)

研究期間：2007～2011

課題番号：19101006

研究課題名（和文） カーボンナノチューブ量子ドットと電磁波の相互作用に関する研究

研究課題名（英文） Interaction between carbon nanotube quantum dots with electromagnetic waves

研究代表者

石橋 幸治 (ISHIBASHI KOJI)

独立行政法人理化学研究所・石橋極微デバイス工学研究室・主任研究員

研究者番号：30211048

研究成果の概要（和文）：

カーボンナノチューブ量子ドットの超高感度電荷計としての特徴、人工原子としてのエネルギースケールがその微細性を反映してテラヘルツ領域にあることに着目し、テラヘルツ波との相互作用を調べた。その結果、単一量子ドットにおいてテラヘルツ光アシストトンネル (THzPAT) を観測した。2重量子ドットをゲートを用いて作製するプロセスを開発し、THzPAT に関する予備的な結果を得た。さらに、GaAs/AlGaAs 2次元電子ガス基板上に作製したカーボンナノチューブ単電子トランジスタを用いた新たな THz 検出メカニズムを発見した。

研究成果の概要（英文）：

Based on quantum dots as an ultrasensitive electrometer and the energy scales associated with carbon nanotube dot being in the terahertz (THz) range, we have studied unique THz responses of the carbon nanotube quantum dots. We have observed the THz photon assisted tunneling (THzPAT) in the single quantum dot. Fabrication processes of the coupled quantum dots have been developed and the preliminary results of the THzPAT were also observed there. The single electron transistors were also fabricated on the GaAs/AlGaAs 2 dimensional electron gas (2DEG) substrate, and the unique THz detection mechanism was observed.

交付決定額

(金額単位：円)

	直接経費	間接経費	合計
2007年度	32,600,000	9,780,000	42,380,000
2008年度	22,000,000	6,600,000	28,600,000
2009年度	6,000,000	1,800,000	7,800,000
2010年度	6,000,000	1,800,000	7,800,000
2011年度	6,000,000	1,800,000	7,800,000
総計	72,600,000	21,780,000	94,380,000

研究分野：複合新領域

科研費の分科・細目：ナノ・マイクロ科学・マイクロ・ナノデバイス

キーワード：カーボンナノチューブ、量子ドット、単電子トランジスタ、テラヘルツ、テラヘルツ光アシストトンネル

1. 研究開始当初の背景

研究開発当初は、カーボンナノチューブ量子ドットの基本的な特性が明らかになり、デバイス応用のためにはナノチューブ独自の新たなプロセス技術の開発の必要性が明らかとなっていた。一方、通常の半導体微細加工技術を適用した量子ドットにおいてもナノチューブ独自の人工原子としてのエネルギースケールや、その他、通常の半導体量子ドットと異なる特徴を利用してバイオセンサーなど新たな応用が始まりつつあった。本研究で着目した電磁波との相互作用、特にテラヘルツ波との相互作用の研究は、カーボンナノチューブ量子ドットならではの応用可能性であった。

テラヘルツ周波数帯は電波と光の中間に位置し、他の周波数帯に比べて技術的に開発が遅れている。しかし、生体分子や環境分子の振動スペクトルの多くはテラヘルツ帯にあるため、この分野の重要性は強く認識されており、光源、検出器ともに開発が望まれていた。本研究に関わる検出器に関しては、低温に冷却したシリコンボロメータが広く用いられている。高感度化、イメージングの高分解能化を目指して新たな技術の開発が望まれていた。

2. 研究の目的

上記のような研究開発背景のもと、カーボンナノチューブ量子ドットならではの電磁波応答、特にテラヘルツ波領域の電磁波応答を調べることを目的とした。これまでの我々のカーボンナノチューブ量子ドットの関する詳細な研究で、量子ドットが簡単な人工原子として振る舞うこと、しかもそのエネルギースケール（1電子帯電エネルギー、閉じ込め準位間隔）がテラヘルツの領域にあることがわかってきた。このことは、カーボンナノチューブの微細性によるもので、通常のリソグラフィ法で作製した半導体量子ドットでは、典型的なサイズがサブミクロン程度であるため、エネルギースケールはカーボンナノチューブ量子ドットに比べて1桁から2桁小さく、周波数に換算するとマイクロ波からミリ波程度の領域になる。そこで、テラヘルツ帯の新たな材料としてのカーボンナノチューブの可能性を調べることにした。

本研究では、量子ドットの特徴を生かしたテラヘルツ応答を調べた。ここで、量子ドットの特徴とは、カーボンナノチューブにおいては、そのエネルギースケールがテラヘルツ帯にあること、そして、量子ドット（あるいは、量子ドットにソースドレイン電極をつけた単電子トランジスタ）の超高感度電荷検出

器としての特徴である。さらに、ナノデバイス典型的なサイズが数十から数百ナノメートルであること、テラヘルツ波の典型的な波長である100ミクロン程度であることを考えると、両者の間には3～4桁程度のサイズの隔たりがあり、テラヘルツ波を効率的にナノデバイスに結合させることも課題となると考えられる。そこで、テラヘルツ波に対するアンテナ構造を作製し、テラヘルツ波を効率的にナノデバイスへの結合させることを検討した。

テラヘルツ領域で、量子ドットを用いた光アシストトンネル（THzPAT）の観測は報告されていない。THzPATは単一量子ドットはもとより、2重結合量子ドットの場合により興味深い。単一量子ドットの場合は、ドットと電極間でTHzPATが生じる。一方、2重結合量子ドットでは、各ドットに形成された離散準位間でTHzPATが生じる。前者では、離散準位と連続準位の間、後者では離散準位間という違いがある。このことは、温度依存性にもっとも影響があると思われる。すなわち、単一ドットでは、THzPATが可能のためには電極の電子のエネルギー分布の広がり周波数よりも小さくなくてはならない（ $hf \gg k_B T$ ）。これに対し、2重結合量子ドットでは離散準位の広がり閉じこめの程度にだけ依存するので温度の影響は受けないと思われる（格子振動の影響は受ける）。したがって、より高温動作が可能と考えられる。カーボンナノチューブを用いた2重結合量子ドット形成自体の報告は少ない。そこで、我々独自の2重結合量子ドット作製プロセスを開発し、テラヘルツ応答を調べることも目的とした。

3. 研究の方法

本実験全般において、アンテナの効果を調べる実験をのぞき、作製したデバイスを光学（THz用）窓のついたクライオスタットに装着し液体ヘリウム温度にまで冷却し、外部から炭酸ガスレーザー励起の遠赤外ガスレーザー（いくつかの周波数を離散的に選択可能）を照射し、デバイスのクーロンブロック特性を調べた。

1) 単一量子ドットのテラヘルツ応答

単一量子ドットの作製には、通常のリソグラフィ法を用いて1本のナノチューブの両端に金属電極をつける方法を用いた。

2) GaAs/AlGaAs 2次元電子ガス基板上的単電子トランジスタ

分子線エピタキシー法で作製した2次元電子ガスを含むGaAs/AlGaAs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

た。基板の上に作製した金属ゲートを利用することのほかに、2次元電子ガスそのものをゲートとして利用することもできる。このゲートの場合、基板面に垂直に磁場を印可すると2次元電子ガスはランダウ準位を形成する。ランダウ準位間隔は、テラヘルツ領域にあるので、この系では単電子トランジスタの予想をしなかったユニークな応答を観測することができた。詳細は、次項で述べる。

3) アンテナ構造の作製による応答の効率化
 テラヘルツ光の波長とナノデバイスのサイズには、3~4桁程度の差がある。そこで、アンテナ構造を用いてテラヘルツ波を空間的にできるだけ集束しナノデバイスに照射することを試みた。本研究では波長程度の周期を持つ同心円状の金属リングからなるブルザイアンテナを作成する技術を開発し、その効果を調べた、ナノデバイスへ応用する前段階としてアンテナ構造の効果を見るために、GaAs/AlGaAs 2次元電子ガス量子ホール効果センサーを用いてアンテナ設置の効果を調べた。

4) 2重結合量子ドットの作製とテラヘルツ応答

カーボンナノチューブで2重結合量子ドットを作製するために、ナノチューブ上に微細フィンガーゲートを作製し、負の電圧を印可することによりトンネル障壁を形成し、2重量子ドットを作製するプロセスを開発した。

4. 研究成果

1) 単一量子ドットのテラヘルツ応答

単一量子ドットの液体ヘリウム温度におけるテラヘルツ応答を図1に示す。図に示すように、テラヘルツ波を照射すると、メインクーロンピークの右側にサテライトピークが観測されるようになる。サテライトピーク的位置は、照射する周波数が大きくなるとメインピークから離れる。メインピークとサテライトピークの間ゲート電圧差をエネルギーに換算すると周波数と一致することがわかる。このことから、サテライトピークの起源は、ドットの中の電子がテラヘルツ吸収を吸収することによって、ドレイン電極側にトンネルする光アシストトンネルであるといえる。

実際には、このような周波数に依存して位置が変わるサテライトピークのほかに、ピーク位置が周波数に依存しないサテライトピークも現れる。この場合は、ドレイン電極の電子が光アシストトンネルによりドットないにトンネルし、クーロンブロッケード状態がとけると、バイアス窓に THzPAT で電子がはいった準位のしたの量子準位を通して電流が流れるパスが可能である。このようなメカニズムでは、サテライトピーク的位置は周波数に依存しない。この場合に、メインピー

クとサテライトピークの高さのテラヘルツパワー依存性を測定することができ、定性的には関数的な振る舞いが観測された。

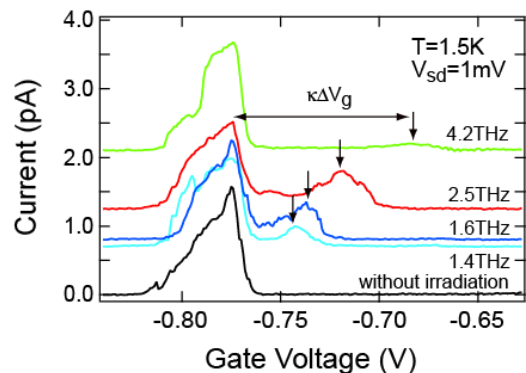


図1：クーロン振動ピークのテラヘルツ応答

2) GaAs/AlGaAs 2次元電子ガス基板上的の単電子トランジスタ

作製したデバイスを液体ヘリウム温度に冷却し、さらに強磁場を印可して、基板の2次元電子ガスが量子ホール効果状態になる状況にする。周波数、強度を一定にしてテラヘルツ波を照射しながら、磁場を変えながらクーロン振動ピークの変化の様子を測定した結果が図2である。図からわかるように、磁場を増加させるにつれて、クーロンピークは移動し、ある磁場でそのシフト量が最大になった後、また、元に戻るという振る舞いをする。このような振る舞いは、別な周波数でもみられた。しかも、ピークシフトが最大になる磁場では、サイクロトロン共鳴の条件が満たされていることがわかった（下図矢印）。

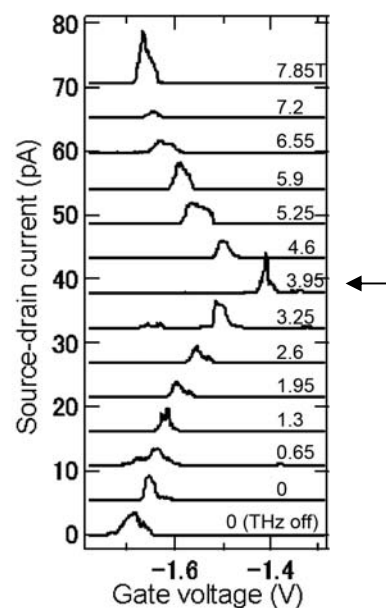


図2：1.6THzのテラヘルツ波を照射したときのクーロン振動の磁場によるシフト

このような振る舞いは次のように説明することができる。この場合、テラヘルツ波はカーボンナノチューブには影響を与えず、基板の2次元電子ガスに影響を与えている。すなわち、強磁場によりランダウ準位を形成している2次元電子ガス系にテラヘルツ波が照射されると、サイクロトロン共鳴条件が満たされたときに共鳴的に準位間の遷移が起こる。遷移が起こると、基板上的カーボンナノチューブトランジスタを取り巻く電荷の分布が変化し、その結果クーロンピークがシフトしたと考えられる。したがって、クーロンピークのシフト量は、サイクロトロン共鳴条件が満たされたところで最大となるが、そのシフト量は試料によって変わる。単電子トランジスタは究極の電荷計であることから、このメカニズムによるテラヘルツ検出感度はきわめて高感度であると考えられる。

3) アンテナ構造の作製による応答の効率化
電解メッキ法により、GaAs/AlGaAs 2次元電子ガス上に、図3のようなブルザイアンテナ構造を作製した。

アンテナを作製したことによるテラヘルツ応答信号への効果を調べるために、ホールバー構造に加工した2次元電子ガスに強磁場を印可し、量子ホール効果状態における縦抵抗の変化を測定した。その結果、図3に示す

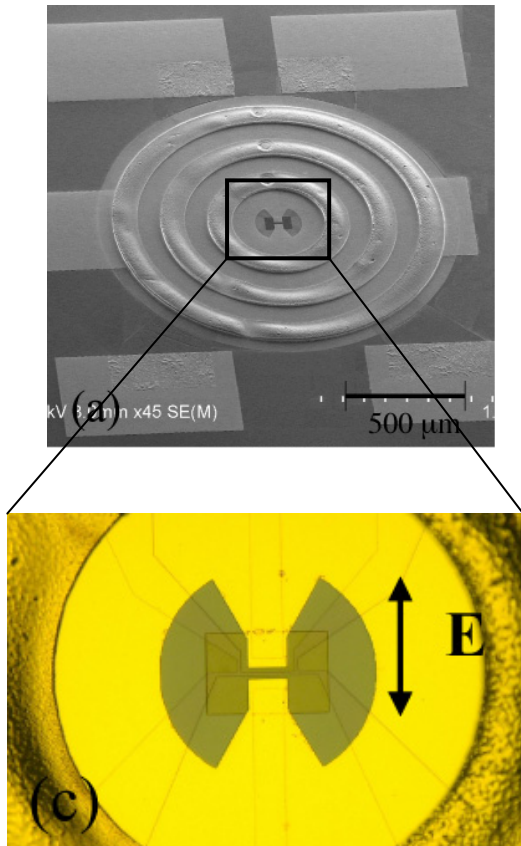


図3：2次元電子ガス基板上に作製したブルザイアンテナ

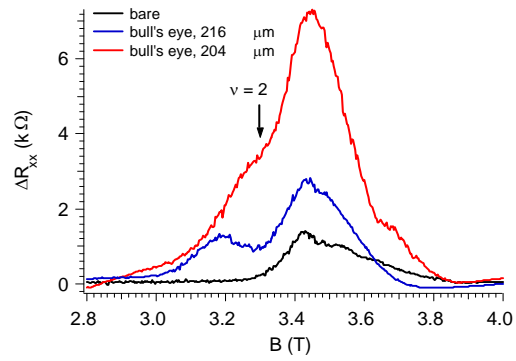


図3：テラヘルツ照射による抵抗値の変化

ようにアンテナ設置した場合にテラヘルツ交渉者による抵抗の変化量は約3倍程度増加した。

4) 2重結合量子ドットの作製とテラヘルツ応答

作製した2重結合量子ドットの電子顕微鏡写真を図4に示す。3本あるゲートのうち真ん中のゲートはドットを2つに分けるためのゲートである。他の2つのゲートはドットのポテンシャルを変えるためのゲートである。ここでは、ナノチューブと金属ゲートの界面をもトンネル障壁として利用している。

2重結合量子ドットが形成されていることは図5の電荷安定図から確認できる。この電荷安定図において、電流が流れる矢印で示したゲート電圧付近でテラヘルツ応答を調べた。その予備的な結果が図6である。図6にはメインピークの横に THzPAT によるサテライトピークが観測されている。これだけでは、単一量子ドットの場合と変わらない。単一ドットと2重結合量子ドットの違いは、温度特性に表れるはずであり、今後その測定が必要である。

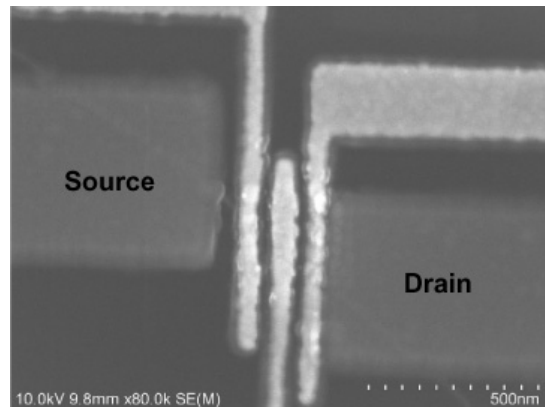


図4：2重結合量子ドットの電子顕微鏡写真

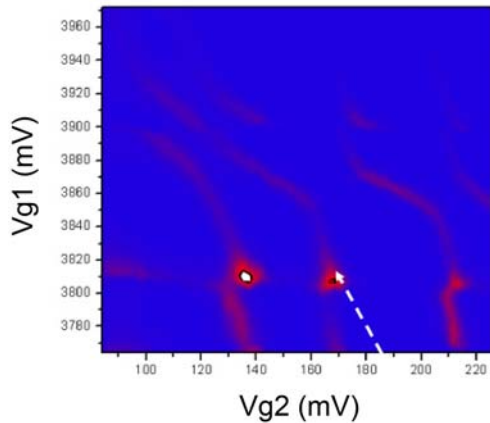


図5：2重結合量子ドットの電荷安定図

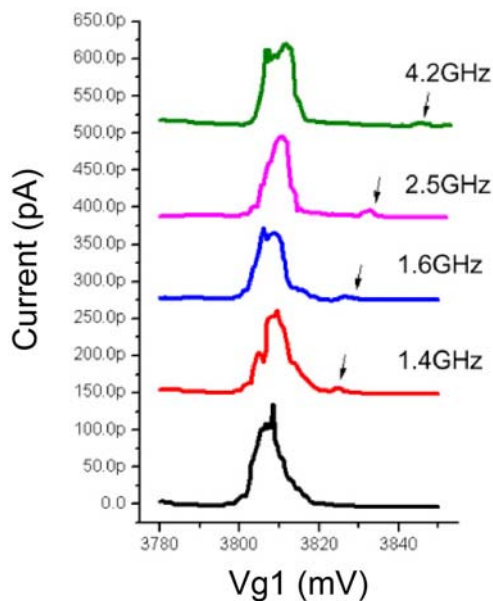


図6：2重結合量子ドットの共鳴トンネルピークのテラヘルツ照射効果(図5の矢印のところで照射)

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6件)

1. Jungwoo. Song, Gregory Aizin, Yukio Kawano, Koji Ishibashi, Nobuyuki Aoki, Yuichi Ochiai, John L. Reno, and Jonathan P. Bird, "Evaluating the performance of the quantum point contacts as nanoscale terahertz sensors", Optics Express, Vol.18, No.5, 4609-4614 (2010) (査読あり)
2. Yukio Kawano, Takao Uchida, and Koji Ishibashi, "Terahertz sensing with a carbon nanotube/two-dimensional electron gas

hybrid transistor", Appl. Phys. Lett. **95**, 083123 (2009) (査読あり)

3. Y. Kawano, T. Fuse, S. Toyokawa, T. Uchida, K. Ishibashi, "Terahertz photon-assisted tunneling in carbon nanotube quantum dots", J. Appl. Phys. **103**, 034307 (2008) (査読あり)
4. Yukio Kawano and Koji Ishibashi, "An on-chip near-field terahertz probe and detector", Nature Photonics, **2**, 618-621 (2008) (査読あり)
5. K. Ishibashi, S. Moriyama, T. Fuse, Y. Kawano, S. Toyokawa, T. Yamaguchi, "Artificial atom and quantum terahertz response in carbon nanotube quantum dots", J. Phys: Condensed Matter, a special issue, **20**, 454205 (1-5), (2008) (査読あり)
6. Y. Kawano, T. Fuse, and K. Ishibashi, "Ultra-highly sensitive terahertz detection using carbon-nanotube quantum dots", International Journal of High Speed Electronics and Systems **17**, 567-570 (2007) (査読あり)

[学会発表] (計15件)

1. K. Ishibashi, H. Hida, H. Tabata, T. Nishio, S. Y. Huang, M. Shimizu (invited), "Carbon nanotubes and semiconductor nanowires for building block of quantum nanodevices", 2010 International RCIQE/CREST Joint Workshop, Sapporo, Japan, March 1-2, 2010
2. K. Ishibashi, A. Hida, H. Tabata (invited), "Quantum dots in carbon nanotube and their molecular scale nanostructures", International Symposium on Quantum Nanostructures and Spin-related Phenomena (QNSP2010), Tokyo, Japan, March 9-11, 2010
3. K. Ishibashi and A. Hida (invited), "Carbon nanotube quantum dots and their molecular scale nanostructures", The 37th International Symposium on Compound Semiconductors (ISCS2010), Takamatsu, Japan, 31 May – 4, June, 2010
4. K. Ishibashi, A. Hida, S. Y. Huang, T. Nishio (invited), "Carbon nanotubes and semiconductor nanowires for building blocks of quantum nanodevices", International Workshop on Physics of Micro and Nano Scale Systems, Ystad, Sweden, June 20-24, 2010
5. K. Ishibashi, A. Hida, S. Y. Huang, T. Nishio, (Selected Poster Presentation) "Carbon nanotubes and semiconductor nanowires for building blocks of quantum nanodevices", Gordon Research Conference

- on Nanostructure Fabrication, Tilton School, Tilton, NH, USA. July, 19-24, 2010
6. K. Ishibashi, A. Hida, S. Moriyama, T. Fuse and T. Yamaguchi (Keynote Lecture), "Carbon nanotubes and graphenes for building blocks of nanodevices", 11th Edition of the "Trends in NanoTechnology" International Conference (TNT2010), Braga, Portugal, September 06-10, 2010
 7. Y. Kawano and K. Ishibashi, "Near-field terahertz detection on one chip", International Workshop on Optical Terahertz Science and Technology 2009, Santa Barbara, USA, 7-11 March, 2009
 8. K. Ishibashi, A. Hida, H. Tabata, Y. Kawano and T. Yamaguchi (invited), "Carbon nanotube quantum dots and nanostructures", Frontiers in Nanoscale Science and Technology (FNST2009), Harvard University, Boston, USA, May 29-31, 2009
 9. K. Ishibashi, H. Hida, H. Tabata, Y. Kawano, and T. Yamaguchi (invited), "Carbon nanotube quantum dots and molecular scale nanostructures", RIKEN /LUND /HARVARD Joint Symposium on Nanoengineering and Functional Materials, Wako, Japan, 16,17, Nov. 2009
 10. K. Ishibashi, T. Fuse, Y. Kawano, S. Toyokawa, and T. Yamaguchi (invited): "THz photon assisted tunneling in carbon nanotube quantum dots", 2008 RCIQE International Seminar on Advanced Semiconductor Materials and Devices, Hokkaido University, 3-4th, March, 2008
 11. K. Ishibashi, S. Moriyama, T. Fuse, Y. Kawano, S. Toyokawa, S. Y. Huang, N. Fukata, and T. Yamaguchi (invited): "Quantum-dot devices with carbon nanotubes and Si nanowires", International Baltic Sea Region conference "Functional materials and nanotechnologies (FMNT08)", The conference is devoted to 30th anniversary of Institute of Solid State Physics, University of Latvia., Riga, Latvia, April, 1-4, 2008
 12. Y. Kawano, T. Fuse, S. Toyokawa, T. Uchida, and K. Ishibashi, "Highly Sensitive and Frequency-Tunable THz Detector Using Carbon Nanotube Quantum Dots", 33rd International Conference on Infrared, Millimeter and Terahertz Waves, Pasadena, USA, September 15-19, 2008
 13. K. Ishibashi, Y. Kawano, T. Fuse, and S. Toyokawa (invited): "Artificial atom in carbon nanotube quantum dots and its THz response", 15th Annual International Conference on Composite/Nanoengineering, Haikou, Hainan, China, July 15-21, 2007
 14. K. Ishibashi, Y. Kawano, T. Fuse, and S. Toyokawa (invited): "THz Photon assisted tunneling in carbon nanotube quantum dots", QTNH2007 International Workshop on THz-Related Phenomena in Semiconductor Nanostructures, Chiba, Japan, 28th, July, 2007
 15. K. Ishibashi (invited): "THz photon assisted tunneling in carbon nanotube quantum dots", 8th Japan-Sweden QNANO workshop, Lund, Sweden, 13-14, December, 2007
- [図書] (計4件)
1. Koji Ishibashi: "Nanoelectronics" (pp451-480) in "Nanofabrication Handbook" edited by Stefano Cabrini and Satoshi Kawata (CRC Press, Florida, 2012)
 2. 石橋幸治、フラーレン・ナノチューブ・グラフェン学会 編「カーボンナノチューブ・グラフェンハンドブック」(分担執筆)、5.2 CNT の電気伝導 (コロナ社 2011年)
 3. 青柳克信、石橋幸治、高柳英明、中ノ勇人、平山祥郎 共著「基礎からわかるナノデバイス」(コロナ社 2011年)
 4. 石橋幸治:「ナノカーボンハンドブック」(遠藤守信/飯島澄男監修、エヌティーエス 2007年7月) 分担執筆 (3章3節 2項3. CNT によるナノデバイス 327-334)
- [産業財産権]
- 出願状況 (計1件)
- 名称: テラヘルツ光検出装置とその検出方法
 発明者: 河野行雄、石橋幸治
 権利者: 理化学研究所
 種類: 特許
 番号: 特願 2008-222980
 出願年月日: 平成 20 年 9 月 1 日
 国内外の別: 国内
- [その他]
- なし
6. 研究組織
- (1) 研究代表者
石橋 幸治 (ISHIBASHI KOJI)
 独立行政法人理化学研究所・石橋極微デバイス工学研究室・主任研究員
 研究者番号: 3 0 2 1 1 0 4 8
- (2) 研究分担者
 なし
- (3) 連携研究者
 なし