

平成 22 年 3 月 31 日現在

研究種目：若手研究（B）
 研究期間：2008～2009
 課題番号：20740177
 研究課題名（和文） カーボンナノチューブの電界・応力による動的バンドエンジニアリングと光情報通信応用
 研究課題名（英文） Tunable bandgap engineering of carbon nanotubes with electric field and strain, and application to optical communication
 研究代表者
 牧 英之（MAKI HIDEYUKI）
 慶應義塾大学・理工学部・専任講師
 研究者番号：10339715

研究成果の概要（和文）：

現在の半導体技術は、バンド端変調とバンドギャップ制御という 2 つの要素技術を組み合わせたバンドエンジニアリングにより発展したが、次世代のバンドエンジニアリングとして外部からの入力により動的にバンドを制御することがその一つとなると考えられる。そこで、本研究では、カーボンナノチューブに注目して、(a)電界によるバンド端変調と(b)応力によるバンドギャップ制御という外部入力による連続可変なバンドエンジニアリングを構築を行った。

研究成果の概要（英文）：

Semiconductor technology was developed by the bandgap engineering, which is the combination of the bandgap and bandedge control. One of the future bandgap engineering is the tunable control of bandgap by external inputs. In this study, we have realized the tunable control of carbon nanotube bandgap and bandedge with electric field and strain.

交付決定額

（金額単位：円）

	直接経費	間接経費	合計
2008 年度	2,100,000	630,000	2,730,000
2009 年度	1,300,000	390,000	1,690,000
年度			
年度			
年度			
総計	3,400,000	1,020,000	4,420,000

研究分野：数物系科学

科研費の分科・細目：物理学・物性 I

キーワード：半導体、カーボンナノチューブ

1. 研究開始当初の背景

半導体は、今日のエレクトロニクスを支える基幹材料であるが、この半導体を特徴付ける最も重要な物性値として、バンドギャップがある。現在の半導体技術は、このバンドギャップをエネルギー的・空間的に制御する“バンドエンジニアリング”により、キャリアの挙動を自在に制御することで様々な機

能素子が実現されてきた。半導体のバンドエンジニアリングは、不純物ドーピングによるキャリア制御・組成変化によるバンドギャップ制御・ヘテロ接合などにより発展してきたが、現在のバンドエンジニアリングは、組成制御やドーピングなどの材料・素子作製時のプロセスで導入されるため、一旦デバイスを作製すると、外部から変調することは難しい。

そのため、次世代のバンドエンジニアリングとしては、外部からの入力により自由にバンドを制御することがその一つとなると考えられる。バンドギャップを外部入力により自由に制御することが可能となれば、波長可変発光素子や新規光検出素子など従来には無い新たな発想に基づく新規機能デバイスを提案・開発することが可能となる。このような外部入力による半導体バンドギャップ変調を実現するために、本研究では、単層カーボンナノチューブへの電界および歪印加によるバンドギャップの動的制御を試みた。

半導体カーボンナノチューブは、従来の固体半導体と比べて電界による大きなキャリア制御性があることが知られており、カーボンナノチューブ FET では、ゲート電圧を加えることによりキャリア濃度を自由に調整することができるだけでなく、ゲート電圧の極性を変化させることでキャリアタイプを電子または正孔に選択することができる。さらに、従来の固体半導体 FET における半導体-絶縁体界面の電子状態変調とは異なり、電界印加によってカーボンナノチューブ全体の電子状態を変化させることが可能であるとともに、固体半導体のドーピングによるヘテロ接合では不可能な外部入力による連続可変バンド変調も可能であることから、従来のキャリアドーピングに変わる(a)電界によるバンド端変調が期待される。また、カーボンナノチューブは大きな機械的弾性を持つことが知られており、数%程度の大きな弾性歪みが得られるとされている。この特性を利用し、外部入力として引っ張りなどの応力をカーボンナノチューブに印加することにより、広範囲でのバンドギャップの連続制御が可能となることから、固体半導体では実現できない(b)応力によるバンドギャップ制御が可能と考えられる。そこで本研究では、(1) “電界・応力” という外部入力により可変的に “バンド端変調・バンドギャップ変調” を行う新たなバンドエンジニアリングを構築することを試みた。

2. 研究の目的

従来の固体半導体におけるバンド端変調は、不純物ドーピングにより行われている。ここでは、空間的なキャリアの閉じ込めや分離が起こることから、キャリアの寿命制御や非平衡キャリアの導入などが可能となり、バンドエンジニアリングの一端を担っている。一方、カーボンナノチューブは、電界により物質全体の電子状態を大きく変えることができることから、この特性に注目し、本研究では、カーボンナノチューブに対してソース・ドレイン電極を形成することによってカーボンナノチューブ内に直接電界を印加し、電界印加に伴うバンド端の長さ方向の変調

とそれによる発光特性の制御を試みた。

また本研究では、応力印加によるバンドギャップの制御も試みた。ここでは、一本のカーボンナノチューブに対して歪を印加できる素子を開発し、歪によるバンドギャップの制御を行った。この素子を利用し、本研究では、数百 Hz 程度での高速歪印加を行い、バンドギャップの高速変調性を明らかにすることを旨とした。

3. 研究の方法

電界印加中の発光測定では、微細加工および化学気相成長法 (CVD) によって、架橋構造を有するカーボンナノチューブ素子を作製した。ここでは、架橋カーボンナノチューブの両端に対して電極が形成されており、電極に電圧を印加することにより、カーボンナノチューブ内に長さ方向の電界を印加可能である。この素子を光学窓付きのクライオスタット内に取り付けることにより、低温において、電界印加下のフォトルミネッセンス測定を行った。

また、歪印加によるバンドギャップ制御に関しては、圧電素子を用いた歪印加素子および微細加工による歪印加素子の開発に着手した。圧電素子を用いた応力印加素子では、予めクラックを設けて CNT を架橋成長させた SiO_2/Si 基板を圧電素子に接着した構造であり、圧電素子に電圧を印加することによりクラックのギャップが開くことにより、CNT に引っ張り歪を印加することが可能である。これまでの研究で、本素子を用いて引っ張り歪を印加することにより、バンドギャップの連続的な制御に成功している。そこで、本研究では、これらの成果をさらに発展させて、歪印加素子に対して、数百 Hz 程度の矩形波を印加して、バンドギャップの高速変調性を明らかにした。この場合、高速変調された一本の CNT からの微弱な発光を通常の顕微フォトルミネッセンス測定装置で測定することは感度的に困難であることから、高速かつ高感度な測定系の構築が必要となる。そこで、本研究では、一般に発光の時間分解測定で用いられている単一光子計数法を応用した高速・高感度測定法を構築し、高速バンドギャップ変調の観測を試みた。この測定では、圧電素子に矩形波を印加して発光波長を繰り返し変化させるとともに、この矩形波と同期した信号を時間相関光子計数装置にトリガーとして入力する。一方、得られた波長可変発光のうち、特定の波長のみをバンドパスフィルタで取り出し、アバランシェフォトダイオードに入射し、その信号を時間相関光子計数装置に入力する。これにより、時間に対して得られる光子数をカウントすることでヒストグラム表示させ、バンドギャップ変調を高速かつ高感度に観測することを試みた。

4. 研究成果

カーボンナノチューブ素子において、電界印加下でのフォトルミネッセンス測定を行い、電界が発光特性に与える影響を調べた。電圧印加によって、発光強度および発光エネルギーに変化が観測された。この変化は、電圧印加によってカーボンナノチューブ内のバンドが傾斜することにより電界が発生し、電界によって発光スペクトルが変化すると考えられるが、詳細は現在解析中である。このような電界印加による発光波長制御は、半導体の量子ドットにおいては既によく知られている効果であるが、外部からの電界印加によるカーボンナノチューブのフォトルミネッセンスにおいて、電界印加による発光波長制御が観測された報告は無く、カーボンナノチューブ発光素子における電界に対する発光特性の変化として重要な意味を持つ。

また、歪印加素子に関しては、413Hzの矩形波を圧電素子に印加し、アバランシェフォトダイオードを用いて時間分解測定を行った結果、繰り返しの歪印加に応じて発光波長が変化することに起因し、 piezo 電圧に同期して、フォトンカウント数の変調が観測された。また、バンドパスフィルタの中心波長を歪印加有・無の中心波長に合わせたところ、フォトンカウント数変調の位相が反転することが観測された。以上のことから、高速繰り返し歪印加によるバンドギャップの高速変調を観測することに成功した。

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2件)

牧英之 “歪印加によるカーボンナノチューブバンドギャップ制御と光素子応用”
日本電子材料技術協会会報 Vol.40pp41-44
(2009) 査読無

H. Maki, T. Mizuno, S. Suzuki, T. Sato, and Y. Kobayashi “Multi-Back-Gate Control of Carbon Nanotube Double-Quantum Dot”
Jpn. J. Appl. Phys. Vol.48 pp04C201/1-4
(2009) 査読有

[学会発表](計13件)

Y. Kawai, H. Maki, T. Sato “Stark effect of SWNT photoluminescence induced by external electric field”
The 38th Fullerenes Nano Tubes general Symposium
(2010年3月4日)(名古屋)

H. Wakahara, H. Maki, T. Sato and S. Suzuki “Excitation and free carrier electroluminescence from a SWNT observed through simultaneous measurements of electrical conductivity and emission spectra”
The 38th Fullerenes Nano Tubes general Symposium

(2010年3月3日)(名古屋)

H. Maki, S. Suzuki, N. Hibino, Y. Kobayashi, and T. Sato “Short wavelength electroluminescence from single-walled carbon nanotubes with high bias voltage”
The 38th Fullerenes Nano Tubes general Symposium
(2010年3月2日)(名古屋)

若原弘行、牧英之、佐藤徹哉、鈴木哲
“発行・電気伝導の同時測定によるカーボンナノチューブからの励起子・自由キャリア電界”
第46回日本電子材料技術協会秋期講演大会(2009年11月20日)(東京)

Hideyuki Maki, Tetsuya Sato “Fast Band-Gap Tuning of Carbon Nanotube with Repetitious Uniaxial Strain”
WONTON '09(2009年6月7-10日)(松島)

牧英之、佐藤徹哉 “歪印加素子によるカーボンナノチューブの高速バンドギャップ変調観測”
第56回応用物理学関係連合講演会
(2009年3月31日)(つくば)

日比野訓士、牧英之、鈴木哲、佐藤徹哉、小林慶裕 “High Energy Electroluminescence from CVD-grown Single-walled Carbon Nanotubes”
International Symposium on Nanoscale Transport and Technology (ISNTT2009), p.p. 167(2009年1月20-23日)(厚木)

牧英之、日比野訓士、佐藤徹哉、鈴木哲、小林慶裕、
“歪印加によるカーボンナノチューブバンドギャップ制御と光素子応用”
第45回日本電子材料技術協会秋期講演大会
(2008年11月14日)(東京)

日比野訓士、牧英之、鈴木哲、佐藤徹哉、小林慶裕 “Transport property control of CVD single-walled carbon nanotube field effect transistor using electrode metals high and low work function”
International Symposium on Surface Science and Nanotechnology, p.p. 312(2008年11月11日)(東京)

日比野訓士、牧英之、鈴木哲、佐藤徹哉、小林慶裕 “Electroluminescence from CVD-grown single-walled carbon nanotube”
2008 International Conference on Solid State Devices and Materials (SSDM 2008)
(2008年9月25日)(東京)

牧英之、水野智行、鈴木哲、佐藤徹哉、小林慶裕 “Multi-backgate control of carbon nanotube double quantum dot”
2008 International Conference on Solid State Devices and Materials (SSDM 2008)
(2008年9月25日)(東京)

牧英之、 “Carbon Nanotube Electronic and Optoelectronic Devices”、
Technical University of Munich - Keio University
Joint Workshop on Nanoelectronics
(2008年9月16日)(ミュンヘン)

牧英之、佐藤徹哉、石橋幸治、 “Wavelength tuning in an Individual Single-Walled

Carbon Nanotube with Uniaxial Strain”、
8th International Conference on Physics of
Light-Matter Coupling in Nanostructures
(PLMCN8) (2008年4月9日) (東京)

[産業財産権]

出願状況(計2件)

名称:カーボンナノチューブ発光素子、及
び、その製造方法

発明者:牧英之、日比野訓士、鈴木哲、小
林慶裕

権利者:同上

種類:特許

番号:特願 2008-134443

出願年月日:2008年5月

国内外の別:国内

名称:グラファイト膜の形成方法

発明者:鈴木哲、小林慶裕、牧英之、水野
智行

権利者:同上

種類:特許

番号:特願 2008-095904

出願年月日:2008年4月

国内外の別:国内

6. 研究組織

(1) 研究代表者

牧 英之 (MAKI HIDEYUKI)

慶應義塾大学・理工学部・専任講師

研究者番号:10339715

(2) 研究分担者

該当なし

(3) 連携研究者

該当なし