



主任研究員 石橋 幸治 (工博)  
ISHIBASHI Koji (Dr. Eng.)

#### キーセンテンス：

1. 原子・分子とカーボンナノチューブでサブ10nmの極微細構造を作る。
2. 量子効果を利用した新しいナノデバイスを動かす。
3. テラヘルツ波を新しいメカニズムで検出するナノデバイスを作る。
4. プラズモニクスを有機光デバイスに生かす。
5. ナノデバイスに向けた無機・有機新材料を探索する。

#### キーワード：

カーボンナノチューブ、半導体ナノワイア、単電子デバイス、量子ナノデバイス、テラヘルツ波検出、プラズモニクス、トポロジカル超伝導、スピン・軌道相互作用

#### 研究概要

当研究室では、将来の新機能ナノエレクトロニクスの実現を目指して、サブ10nm級ナノ構造作製技術および新機能材料の開発、それらの新規物性の探索、そして、ナノデバイスへの応用に関する研究を行っている。さらに、ナノ構造を評価する独自手法の開発、新機能テラヘルツ (THz) 検出器の開発、プラズモニクスを利用して有機光デバイスの性能を向上させる研究も行っている。ナノデバイス用材料として、自己組織化的にサブ10nm構造が形成されるカーボンナノチューブ (CNT)、半導体 (シリコン、ゲルマニウム、III-V属半導体) ナノワイア、グラフェンさらに単一分子を利用し、トップダウン技術とボトムアップ技術の融合により CNT/分子ヘテロ構造や量子ドット構造、超伝導体との複合ナノ構造などを作製している。これらの構造において、電子のスピンや電荷、磁束さらに励起子を1個レベルで操作する技術を開発し、省エネルギー・高機能を有する単電子デバイス、量子情報デバイス (量子ビット)、量子 THz 検出デバイスなどへ応用するための基礎研究を行っている。

#### 1. ナノ構造作製技術の開発と評価 (飛田、南任、山口、富沢\*5、鈴木\*6、石橋)

現在の先端リソグラフィ技術で作製が可能なナノ構造は、小さくても20nm程度であり、実際の動作するデバイスはサブミクロン程度が普通である。この程度のデバイスサイズでは、極低温でしか量子効果が現れないし、仮に現れたとしてもそれを実用的なデバイスにすることは不可能である。ナノ構造を作製する方法には、このようなトップダウン技術とボトムアップ技術が考えられるが、これらを融合することが、実際に動作するデバイスを作製するのに必要である。本研究では、ボトムアップ的に作製される直径が10nm以下のカーボンナノチューブや半導体ナノワイアを Building Block とし、これらをデバイス化する技術の開発を行っている。同時に、究極の原子操作による人工ナノ構造を作製する技術の開発を行い、原子スケールで現れる特異な物性の探索を行っている。

##### (1) 原子操作による人工原子構造の形成と物性評価

自作した低温 STM 装置を用いた原子操作により、吸着種の位置を原子スケールで制御して配列し、表面に新たな電子状態を創り出す実験を行っている。Cu(111)面上に吸着 CO 分子の8×8構造を形成すると、本来等価であるハニカムの二つの副格子に対応する位置で、Fermi 準位近傍の電子状態に差が現れることが明らかになった。この対称性の破れを示す結果は、6×6構造では観察されないことなどから、基板の表面第二層が表面電子状態に与える影響が重要であると推測している。

##### (2) 集束イオンビームを利用した多層カーボンナノチューブ中へのトンネル障壁の形成

1本の多層カーボンナノチューブに局所的にダメージを加え、トンネル障壁を形成する技術を探している。今回は、集束イオンビーム照射を試みた。より微小な領域へのダメージを与えることができるため、制御性や再現性が向上することが期待できる。ダメージを与えたナノチューブの電流電圧特性と温度依存性からトンネル障壁の高さを評価した。その結果、この方法はこれまで試みた他の方法に比べて格段に再現性が向上した。これは、トンネル障壁の高さがより高くなったことと、障壁の幅が小さくなったことによる。この方法を用いてトップゲート型の単電子トランジスタを作成しその動作を確認した。

## 2. ナノ機能の探索とナノデバイスへの応用 (Deacon、佐々、松野、大野、岡本、Wang\*1、前田\*5、辻村\*5、鷹取\*5、山崎\*6、清水\*6、徳永\*6、大島\*6、西野\*4、石橋)

10nm 以下の直径を持つカーボンナノチューブや半導体ナノワイアを Building Block として、量子ドットなどの機能性ナノ構造を作製し、単電子トランジスタや、単一スピンや単一電荷、超伝導電流のコヒーレント制御を目指した研究を行っている。また、これらの量子ドットの人工原子としてのエネルギースケールが、テラヘルツ領域にあることを利用して、テラヘルツ波を光子として検出する、新しいテラヘルツ波量子検出器への応用を研究している。さらに新機能を求めて、酸化物におけるスピン軌道相互作用やトポロジカル超伝導接合の研究も行った。

### (1) シリコン・ゲルマニウムナノワイアのスピン軌道相互作用の評価

金属触媒を利用した CVD 法で、ゲルマニウムナノワイアを薄いシリコンでくるんだコアシェル構造を作製することができる。この構造ではゲルマニウム/シリコン界面にホールガスが形成されていると考えられる。この系では Rashba 型のスピン軌道相互作用が強いことが予想されており、電気的制御が可能なスピン型量子ビットや超伝導電極をつけた場合のマヨラナ状態が現れる系として興味深い。本年度は、これまで開発してきたプロセス技術を用いてナノワイアの磁気抵抗測定を行い、反弱局在効果の解析からスピン軌道相互作用の評価を行った。

### (2) ナノデバイスと超伝導共振器のハイブリッド構造

超伝導回路共振器と量子ビット (人工原子) の間で量子的な相互作用が実現できれば、様々な量子ビット間で量子情報を光子を介してやり取りすることができる。超伝導型の量子ビットではすでに実現されている共振器と量子ビットとの量子的な相互作用を量子ドット中の単一電子スピンの実現することを目指している。そのためにスピン軌道相互作用の強い Ge/Si コアシェルナノワイアや InSb ナノワイアで量子ドットを作製し共振器内に設置するプロセスを開発した。InSb 2 重結合量子ドットと共振器を結合させた系において、量子ドットの状態を共振器特性の変化、すなわち共振周波数の変化と共振特性の広がり (損失) として観測することができた。ドット間を 1 電子がトンネルする場合とドットと電極間をトンネルする場合で、そのメカニズムが異なることを明らかにした。

### (3) 微細シリコン FET デバイスにおけるスピン制御

シリコン FET 素子についてそのスピン機能開発に関する研究を行った。トンネル FET 構造において単一欠陥準位のものであると思われる磁気共鳴信号を検出した。シリコン技術をベースとした単一スピントロニクス、とりわけ磁気計測や将来のスピン量子情報への応用が期待できる。また GaAs 量子ドット素子の核スピン編極ダイナミクスにおいて非線形効果の蓄積による臨界的振る舞いを見出した。長い量子コヒーレンス時間をもつ核スピンの、カオスなど非線形効果との境界領域の実験的探索に道を開くものである。

### (4) 酸化物薄膜におけるスピン軌道相互作用の解明と応用

固体中のスピン-軌道相互作用に由来する新しい学理と機能性の開拓を目指し、重い 5d 遷移元素イリジウム (Ir) を含む酸化物エピタキシャル薄膜をパルスレーザー堆積法 (PLD) により作製した。原子層レベルで平坦な界面を持つ二層膜 SrRuO<sub>3</sub>-SrIrO<sub>3</sub> において、トポロジカルホール効果を観測した。強磁性体の膜厚依存性から、界面での反転対称性の破れによる Dzyaloshinskii-Moriya 相互作用と SrRuO<sub>3</sub> の強磁性相互作用との競合により 10-20 nm 程度の磁気スキルミオンが生成していると解釈される。これにより、界面を用いてスキルミオンを生成する指導原理が得られた。

### (5) 有機光機能材料の開発

新規光異性化色素であるビナフチルアゾ分子について、光励起による構造変化を固相で調べた。ビナフチル基がアゾ色素のトランス-シス構造変化を抑制することを明らかにした。それが効果的に作用することで、光励起によって大きな屈折率変化と緩やかな暗所緩和が生じた。この材料を用いてプラズモニクデバイス (MIM 構造) を作製した。表面プラズモン共鳴によって 150 nm ほどの厚さの薄膜で、光誘起回折効率が増強することを見出した。

### (6) プラズモニクデバイスの開発

2 つの金や銀などのナノ粒子が近接して配置されているとき、その粒子に適当な周波数の光を入射すると粒子間において、非常に強い増強電場が発生する。この場所は非常に大きな表面増強ラマン散乱効果

を示し、ホットサイトとよばれている。これまでは、このホットサイトの生成には2つの粒子が電氣的に接触していないことが必要であると考えられていたが、本研究では、このホットサイトが粒子が接合し、電氣的に繋がっている場合にもホットサイトが生じ、大きな電場増強効果を示すことを準解析的な計算により示した。

---

\*1 国際特別研究員、\*2 特別研究員、\*3 研究員（任期制）、\*4 客員研究員、\*5 JRA、\*6 研修生、\*7 研究嘱託

-----  
**Key Sentence :**

1. Fabrication and characterization of molecular scale nanostructures
2. Physics in quantum nanodevices
3. Application of nanodevices for THz detection
4. Plasmonics applied for organic optical devices

**Key Word :**

carbon nanotubes, semiconductor nanowires, graphene, single electron devices, quantum nanodevices, Terahertz detection, Plasmonics

**Outline**

To explore future nanoelectronics, we develop fabrication processes of sub-10nm structures, and study their electronic and optical properties to apply them to functional nanodevices. We use carbon nanotubes, semiconductor (Si/Ge, InAs, InSb et al.) nanowires, and functional molecules as building block of those nanostructures. We fabricate atomic scale structures by atom manipulation techniques and study physics there. By combining the top-down and bottom-up technologies, we fabricate quantum dots, CNT/molecule heterostructures, and semiconductor/superconductor hybrid nanostructures for use of single electron devices, quantum computing devices and new quantum THz detectors, and so on. We focus on the spin-orbit (SO) interaction to control the spins, and for that we explore new functional oxide materials with a large SO interaction. We also use plasmonic nanostructures to improve efficiencies in the organic electroluminescent devices (OLED) and organic solar cells.

**1. Device fabrication processes in nanoscale** (Hida, Nantoh, Yamaguchi, Tomizawa\*5, Suzuki\*6, Ishibashi)

To realize nanostructures with a size of several nm is difficult only with the conventional lithography techniques (top-down technology). A bottom-up technology in which the nanostructures with several nm are easily formed in a self-assemble manner is an attractive technique for the aim. However, to merge the two technologies is needed to really fabricate extremely nanostructures that can be applied for nanodevices. To do that, we are interested in carbon nanotubes and semiconductor nanowires that have a diameter of several nm and a length longer than micron, as building blocks of nanodevices.

**(1) Atomic scale nanostructure fabricated by the atom manipulation technique**

We have been studying a technique to create novel electronic states by positioning adsorbates on the surface in atomic scale using atom manipulation with the low temperature scanning tunneling microscope, which we have developed. We fabricated a 8x8 structure of CO molecules on a Cu(111) surface, and found that the electronic structure near the Fermi level varies depending on the locations corresponding to two sublattices of a honeycomb which are expected to be equivalent. Since this symmetry breaking does not occur in the case of a 6x6 structure, we speculate that the influence to the surface electronic states from the second layer of the substrate plays an important role, and continue the experiments to reveal the mechanism.

**(2) Tunnel barrier formation in multi-wall carbon nanotubes with focused ion beam irradiation**

To form tunnel barriers in an arbitrary position, the focused ion beam irradiation technique has been developed. It has a diameter of ~10nm, so that the damaged area could be smaller than that formed with our previous methods that used electron beam lithography and the resist development (~50nm). The fabricated damaged region had a resistance in a range of 100~1,000kΩ, and its

variation was much smaller than in the case of the resist opening technique. Characteristics of the fabricated tunnel barrier were estimated by measuring the current-voltage curves and temperature dependence of the resistance. The developed technique is reasonably reproducible and reliable, so that the technique can be used to fabricate more complex devices and circuits with quantum dots.

**2. Physics of nanodevices** (Deacon, Sassa, Matsuno, Ohno, Okamoto, Wang<sup>\*1</sup>, Maeda<sup>\*5</sup>, Tsujimura<sup>\*5</sup>, Takatori<sup>\*5</sup>, Yamazaki<sup>\*6</sup>, Shimizu<sup>\*6</sup>, Ohshima<sup>\*6</sup>, Tokunaga<sup>\*6</sup>, Nishino<sup>\*4</sup>, Ishibashi)

**(1) Estimation of spin-orbit interaction in the Ge/Si core-shell nanowires**

Si/Ge core-shell nanowires are attractive for studying quantum physics associated with the expected large spin-orbit interaction (SOI). With this, the fast electrical control of the spin could be expected. The large Rashba-type spin orbit interaction has been predicted in the core/shell structure. These make the system attractive for the spin qubit. To estimate the SOI, low-temperature magnetoresistance (MR) measurements were carried out with devices where the electric field could be applied perpendicular to the wire-length direction. The anti-weak localization manifested itself in the MR, and from that the SO length was obtained. We could not find a clear evidence of the electric field dependent SOI.

**(2) Quantum dot-microwave cavity interaction**

Quantum mechanical coupling between the qubits and a resonator makes it possible to realize interactions between distant qubits with various kinds, an idea of the hybrid quantum processor. The spin qubit is important for the quantum memory because it can have a long coherence. To this end, we fabricate coupled quantum dots fabricated in the InSb and Ge/Si nanowires that are coupled to the superconducting co-planer waveguide resonator, and study the resonance characteristics that depend on the charge state of the coupled dots. Details of the resonant characteristics such as the resonance frequency and the width of the resonance were measured in the experiments.

**(3) Spin control in the small Si FETs.**

We study spin function in silicon FET devices. Magnetic resonance signal of single defect center was observed in tunnel field effect transistor. This finding can be useful for future single spintronics, such as single spin metrology as well as spin qubit applications. We also find a critical behaviors in a dynamics of polarized nuclear spins in GaAs quantum dot device. This opens up a new way of studying non-linear effects, such as chaos, with the nuclear spins that have a long quantum coherence time.

**(4) Spin orbit interaction and its application in the oxide thin film materials**

Focusing on new physics and functionality of spin-orbit interaction in solids, we fabricated oxide epitaxial thin films containing 5d transition metal Ir by pulsed laser deposition (PLD). We have studied transport properties of bilayers consisting of  $m$  unit cells of SrRuO<sub>3</sub> and 2 unit cells of SrIrO<sub>3</sub>. We observed an anomaly in the Hall resistivity, which can be attributed to topological Hall effect. The topological term rapidly decreases with  $m$ , ending up with a complete disappearance at  $m = 7$ . These results suggest that magnetic skyrmions of 10–20 nm are generated by Dzyaloshinskii-Moriya interaction, which might be caused by both broken inversion symmetry at the interface and strong spin-orbit coupling of SrIrO<sub>3</sub>.

**(5) Functional organic materials for optical devices**

Photo-induced structural changes of molecules (trans-cis conformational changes) in novel azo-binaphthyl chromophores were investigated in solid. It was found that binaphthyl moiety restricts the trans-cis conformational changes effectively, leading to a large refractive change with photoexcitation and also the slow relaxation in dark. Additionally a plasmonic device (MIM structure) was fabricated with this material. An enhanced photoinduced diffraction was successfully observed from a thin layer, only 150 nm, of the material by the surface plasmon resonance effect.

**(6) Plasmonic devices**

When light of appropriate frequencies incidents on adjacent two noble-metallic nanoparticles,

highly enhanced electromagnetic field arises at the gap between two particles. The gap provides intense surface enhanced Raman scattering and is called hot site. So far, the hot site has been considered to require electric discontinuity between the particles. We revealed that the gap is not necessarily required and even electrically connected two particles also exhibits hot site, with semi-analytical calculation.

***Principal Investigator***

石橋 幸治 Koji Ishibashi

菅野 卓雄 Takuo Sugano

柗元 宏 Hiroshi Kukimoto

蒲生 健次 Kenji Gamo

***Research Staff***

岡本 隆之 Takayuki Okamoto

長谷川 英機 Hideki Hasegawa

南任 真史 Masashi Nantoh

白木 靖寛 Yasuhiro Shiraki

佐々高史 Takafumi Sassa

布下 正宏 Masahiro Nunosita

山口 智弘 Tomohiro Yamaguchi

落合 勇一 Yuichi Ochiai

大野 圭司 Keiji Ono

高柳 英明 Hideaki Takayanagi

松野丈夫 Jobu Matsuno

Kotthaus Jorg Peter

飛田 聡 Satoshi Hida

森山 悟士 Satoshi Moriyama

Deacon Russell Stewart

河野 行雄 Yukio Kawano

Wang Rui

根岸 良太 Ryota Negishi

三原 勝 Masaru Mihara

Huang Shaoyun

***Students***

前田 幸祐 Kosuke Maeda,

田畑 博史 Hiroshi Tabata

富沢 啓 Hiroshi Tomizawa

布施 智子 Tomoko Fuse

辻村 翔 Sho Tsujimura

藤原 隆 Takashi Fujihara

鷹取 賢太郎 Kentaro Takatori

清水 麻希 Maki Shimizu

山崎 祐志 Yuji Yamazaki

西野 貴幸 Takayuki Nishino

清水 智樹 Tomoki Shimizu

張 保平 Bao-ping Zhang

徳永 啓佑 Keisuke Tokunaga

伊東 芳子 Itoh Yoshiko

Jonas Wiedenmann

Erwann Bocquillon

石田 俊 Takashi Ishida

大島 拓也 Takuya Oshima

佐藤 将太郎 Shotaro Sato

鈴木 克弥 Katsuya Suzuki

新美 律 Ritsu Niimi

***Assistant and Part-timer***

浅野 頼子 Yoriko Asano

坂井 陽子 Yoko Sakai

***Visiting Members***

上村 洸 Hiroshi Kamimura