ナノギャップ電極を用いた量子トランジスタの 作製と電子伝導

平川 一彦^{*1,*2,*3}・柴田 憲治^{*1}・梅野 顕憲^{*1}

Fabrication and Transport Properties of Quantum Nanotransistors Coupled with Nanogap Electrodes

Kazuhiko HIRAKAWA^{*1,*2,*3}, Kenji SHIBATA^{*1} and Akinori UMENO^{*1}

^{*1}Institute of Industrial Science, University of Tokyo, 4-6-1 Komaba, Meguro-ku, Tokyo 153-8505, Japan

^{*2}Institute for Nano Quantum Information Electronics, University of Tokyo, 4-6-1 Komaba, Meguro-ku, Tokyo 153-8505, Japan

^{*3}CREST, JST, 4-1-8 Honcho, Kawaguchi, Saitama 332-0012, Japan

(Received November 18, 2011, Accepted December 27, 2011)

Electrical manipulation and read-out of quantum mechanical states in single quantum dots and molecules by nanogap metal electrodes is expected to bring about great innovation in ICT (information-communication technology) devices. We have been working on technologies of accessing to single molecules and quantum dots by nanogap electrodes and exploring device applications of novel physics manifested in such nanotransistors.

1. はじめに

VLSI (very large scale integrated circuits) はスケーリング則に従い微細化の一途をたどり、現在ではチャンネル長が数十 nm のシリコントランジスタが実現されている。このままの割合でスケーリングが続けば、2030年頃にはチャンネル長は1 nm を切り、分子レベルの寸法に達してしまう¹⁾。このことは、すなわち微細化が限界に近づきつつあることを示しており、CMOS (complimentary metal-oxide-semiconductor transistors) を越える新しい原理の素子 (いわゆる beyond CMOS 素子) を探索することが急務となっている。

一方、活性層がナノメートル領域に入ると、その電子状態は量子力学的によく記述された離散的なものになり、従来のバルクにない様々な性質が顕著になる。従って、ナノ量子系の状態を金属電極により電氣的に制御・読み出すことができれば、演算や記憶を司る情報処理デバイスに、全く新しい展開をもたらすことができるであろう。

そのような将来のデバイス像を探索する研究が盛んに行われており、なかでもナノ量子系の電子材料としてカーボンナノチューブ、半導体ナノワイヤー、量子ドット、分子など、bottom-up 的ナノ構造が注目を集めつつある。特に電子系の自由度を極限まで制御した0次元電子系となる自己組織化量子ドットや単一分子は量子情報処理技術などに対しても大きな可能性を秘めている。

本稿では典型的な0次元電子系として単一自己組織化量子ドットと単一分子に着目し、それらを活性層とする極限ナノトランジスタの作製と物理、デバイス応用に関する最近の展開を紹介する。

2. 単一量子ドットトランジスタの電子伝導とその応用

2.1 自己組織化量子ドット

半導体基板上に格子定数が数%程度異なる別の半導体を数原子層堆積させると、Stranski-Krastanow モードと呼ばれる特殊な結晶成長モードにより、自己組織的に一辺が数十 nm オーダーの3次元的な立体ナノ構造が成長する²⁾。この3次元立体ナノ構造は自己組織化量子ドットと呼ばれ、転位などを含まない高品質のナノ構造が高密度に成長できるという特徴を有している。特に、III-V族化合物半導体であるGaAs と InAs は約7%の格子定数の不整合を有しており、GaAs 基板表面に適切な条件でInAs を1.7原子層以上成長すると、自己組織化量子ドットが形成され、高性能半導体レーザや単一光子発生素子などの光デバイスに盛んに応用されている³⁾。

しかし、自己組織化 InAs 量子ドットは、伝導特性においても興味深い性質を有している。InAs は半導体の中でも特異な物質で、ショットキー接合のピニング準位が伝導帯下端よりも上方に位置する⁴⁾。このことは、ナノメートルオーダーの InAs 量子ドットに金属を接触させても、量子ドットが空乏化しない可能性があることを意味しており、通常の半導体と金属とのショットキー接合界面付近には空乏層が形成され、電子が存在し得ないのとは大きく異なる点である。

2.2 単一量子ドットトランジスタ

GaAs 基板表面に InAs を数原子層堆積させると、In の供給量や基板温度、ひ素圧などの成長条件により、直径約20 nm~100 nm の自己組織化 InAs 量子ドット構造が形成される。1個の量子ドットに電氣的にアクセスするために、ギャップ間隔と幅を適切に設計した微細金属電極対 (以下、ナノギャップ電極と呼ぶことにする) を用い、これをトランジスタのソース、ドレイン電極とする。また、例えばドーパされた n 型基板を用いることにより、それをバックゲートとし

^{*1} 東京大学生産技術研究所 (〒153-8505 東京都目黒区駒場 4-6-1)

^{*2} 東京大学ナノ量子情報エレクトロニクス研究機構 (〒153-8505 東京都目黒区駒場 4-6-1)

^{*3} 科学技術振興機構 (〒332-0001 埼玉県川口市本町 4-1-8)

て用いれば、トランジスタ構造とすることができる (Fig. 1 参照)⁵⁾。

通常の自己組織化成長を行った量子ドットは、基板にはばランダムに分布しているため、ナノギャップ電極を多数作製し、ギャップ内に量子ドットが1個だけ入っているような接合を探す必要がある。現状では、そのような単一量子ドットトランジスタが作製できる歩留まりは数%程度であるが、今後、量子ドットの位置制御技術などが確立されれば、この値は大幅に改善できるであろう。

Fig. 2(a)に、金で作製したナノギャップ電極をソース・ドレインとする単一量子ドットトランジスタの電流-電圧特性を示す。図に示すように階段状の電流-電圧特性を示す。また、ドレイン電圧ゼロ付近で伝導が抑制されているが、その電圧幅もゲート電圧で変調される。このような電流-電圧特性はクーロン階段 (Coulomb staircase) 特性と呼ばれ、単一電子トンネル効果に特徴的なものである⁶⁾。またこの電流-電圧特性を微分して、微分コンダクタンスを濃淡で表現したものを Fig. 2(b)に示す。この図はクーロン安定化ダイアグラムと呼ばれ、ダイヤモンド状のパターン (Coulomb diamond) が多数見て取れる。ソース・ドレイン電圧がゼロ付近のダイヤモンドの内側では、クーロンブロード効果により伝導電子数は離散的な値に固定されている⁶⁾。重要なことは、ゲート電圧がゼロの状態付近にもクーロンダイヤモンドが観測されていることで、GaAs 基板表面に形成された量子ドットに金属電極を接合させても、電子がドット中に存在することを意味している。

観測された伝導特性を総合すると、InAs 量子ドットに金属電極を接合した単純な構造は、通常の電界効果トランジスタではなく、自然に量子ドットをクーロン島 (Coulomb island) とする単一電子トランジスタ (single electron transistor; SET) になっていると言うことで⁵⁾、これは InAs 量子

Fig. 1 (a) A cross-sectional view of the single quantum dot transistor, (b) A microscope image of a sample. The inset is an SEM image of the junction.

ドットに特有の著しい特徴である。

2.3 量子ドットの殻構造

量子ドットは“人工原子”とも呼ばれ、その中に3次元的に量子化された明瞭な軌道を有していることが知られている⁷⁾。それが、単一電子トランジスタの特性にどのように反映されるのであろうか。Fig. 3は、直径約80 nmの量子ドットをクーロン島とする単一量子ドットトランジスタの線形コンダクタンスを示したものである⁸⁾。Fig. 3からわかるように、単一量子ドットトランジスタの線形コンダクタンスは、クーロン振動と呼ばれるピークを示す。しかも、そのピークが2, 4, 6個とバンチングしていることがわかる。この数は、2次元ディスク中の1s, 2p, 3d+2s軌道の縮重度と一致しており、量子ドット中に明瞭な殻構造が形成されていることを示している^{8,9)}。

Fig. 2 (a) Drain current as a function of the source-drain voltage measured for various gate voltages. (b) A color-coded differential conductance is plotted as a function of the gate voltage and the source-drain voltage. (Ref. 5)

Fig. 3 A linear conductance is plotted as a function of the gate voltage. N is the number of electrons in the dot. (Ref. 8)

一般に、量子ドット中に電子が N 個存在する状態に、さらに電子を 1 個追加するために必要なエネルギー $\Delta\mu$ は、付加エネルギー (addition energy) と呼ばれ、電子数が N の時と $N+1$ の時の電気化学ポテンシャルの差として、

$$\Delta\mu = \mu_{N+1} - \mu_N = (E_{N+1} - E_N) + e^2/C. \quad (1)$$

と表される⁶⁾。ここで、 e は電荷素量、 E_i ($i=0, 1, 2, \dots$) は i 番目の電子の軌道量子化エネルギー、 C は量子ドットとソース、ドレイン、ゲート電極との間の静電容量の総和を表す。右辺第 2 項 e^2/C は、電子の帯電エネルギーと呼ばれ、電子間のクーロン反発力により、静電ポテンシャルが増大する効果を表している。例えば、 N 番目と $N+1$ 番目の電子が、軌道は同じで、スピンだけが異なるような状態を占める場合は、 $(E_{N+1} - E_N) = 0$ なので、 $\Delta\mu$ は帯電エネルギーのみとなる。

実験的には、付加エネルギー $\Delta\mu$ は、クーロンドiamondの頂点のソース・ドレイン電圧として求めることができる。**Fig. 4** はクーロンドiamondから求めた電子の付加エネルギーのスペクトルを表したものである。電子数 N が奇数の場合は、次に入る電子はスピンのみが異なる状態を占有することになるので、付加エネルギーは帯電エネルギーのみからなる。一方、 $N=2, 6$ の状態において、付加エネルギーが増大している。これは、 $N=2$ では $1s$ 軌道が、また $N=6$ では $2p$ 軌道が充満するために、それぞれ $2p$ 軌道、 $3d$ 軌道と一つ上の殻に電子が励起されることが必要となるためである。**Fig. 4** の付加エネルギースペクトルも、量子ドット内に明瞭な殻構造が形成されていることを表している^{8,9)}。

2.4 超伝導・強磁性電極を用いた新機能トランジスタ

InAs 量子ドットは金属を接合しても空乏しないという著しい特徴がある。この特性を利用すれば、従来のトランジスタでは受動的な役割しか演じてこなかったソース・ドレイン電極に、超伝導や強磁性等の特徴を示す金属を用いることにより、素子に新しい機能を付加できると考えられる。

2.4.1 自己組織化 InAs 量子ドット/超伝導電極接合

単一量子ドットトランジスタのソース・ドレイン電極に超伝導金属を用いることにより、単一のクーパー対の注入を制御できるような超伝導トランジスタが実現できるであろう

Fig. 4 The addition energy spectra as a function of the number of electrons in the dot. The inset shows the charging energies for various shells. (Ref. 8)

か。単一電子トランジスタは、基本的には単一電子トンネル効果を示す構造であり、2つの電子がペアとなったクーパー対を量子ドット中に注入することは難しい。しかし、単一量子ドットの帯電エネルギーを小さくして、電子数が2だけ変化するような過程も許容し、クーパー対の注入を可能にするか、単一電子の注入であっても、2つの電子がコヒーレンスを保ちながらトンネルするような状況を作れば、超伝導単一量子ドットトランジスタが実現できる可能性がある。

単一量子ドットトランジスタにおいて、InAs 量子ドットにおける超伝導近接効果を、静電反発効果(帯電エネルギー)やスピン相関伝導(近藤効果)の強さをパラメータとして調べることで、量子ドットにおける電氣的・磁氣的相互作用が超伝導近接効果に果たす役割について詳細に議論することができる¹²⁻¹⁴⁾。例えば、帯電エネルギーが $1-3$ meV 程度の大きな InAs 量子ドットに超伝導電極 (Al) を接合して作製した超伝導単一量子ドットトランジスタでは、ドットと電極の結合を非常に高めることにより、互いのクーロンピークが重なり合い、同時に電子数が2だけ変化するような過程も許容されるような状況を作り出すことができる。**Fig. 5** からわかるように、ゲート電圧による InAs の電子状態の変調により、近接効果による超伝導電流が変調される様子が観測されている¹⁴⁻¹⁶⁾。観測された超伝導電流は、ドット内の電子数の偶奇性に非常に強く依存し、偶数領域では超伝導電流が観測されるが、奇数電子領域では強い電子間相互作用による超伝導電流の抑制が観測された¹⁵⁻¹⁷⁾。

一方、奇数電子領域において強い近藤効果が観測される試料においては、振る舞いが全く異なり、近藤効果のエネルギースケールが超伝導ギャップエネルギーを超える場合には、大きな超伝導電流が観測されることもわかった¹⁴⁾。このことは、近藤効果により、スピン相関を持ったコヒーレントな伝導チャネルが量子ドット中に形成され、これにより2つの電子が位相を保ちつつ伝導できるようになるためと考えられている。

Fig. 5 (a) An energy band structure for an InAs quantum dot/superconductor junction. (b) I - V characteristics of the quantum dot/superconductor junction at $V_G = 3.825$ V. (c) The color coded differential conductance map as a function of V_G and V_{sd} . E and O in the figure denote the regions where the number of electron in the dots is even and odd, respectively. Superconducting current appears as thin lines at $V_{sd} = 0$ for the E regions.

Fig. 6 (a) An SEM image of a single quantum dot transistor with ferromagnetic electrodes. (b) and (c) show the tunneling magnetoresistances at different gate voltages.

2.4.2 強磁性電極を用いた単一電子スピントランジスタ

1990年, Datta と Das は, ヘテロ構造 2 次元電子系に強磁性金属をソース・ドレイン電極とするスピントランジスタを提案した¹⁸⁾. それ以来, スピントランジスタの実現を目指して多くの研究がなされてきた. この素子では, 強磁性体ソースよりスピン偏極した電子を注入し, 2 次元電子チャンネルで電子のスピンの向きをスピン軌道相互作用を用いて変調し, 強磁性体のドレイン電極でスピンの向きを検出するという動作を仮定している. しかし, 一般に 2 次元電子チャンネルには不可避的に散乱が存在し, その実現には困難が予想される.

一方, 量子ドット中では電子の運動は 3 次元的に量子化されているため散乱は存在しない. 従って, 単一量子ドットトランジスタの電極材料として強磁性体を用いることにより, 1 つの素子にスピン注入, スピン操作, スピン検出の 3 つの機能を持たせ, 記憶機能を付加した新しいトランジスタが実現できると期待される.

具体的には, **Fig. 6(a)** のように強磁性ナノギャップ電極の形状を非対称とし, 電極の保磁力が異なる値にした構造を用いる. この素子に面内磁場を印加・掃引することで, ナノギャップを挟んだ強磁性電極の磁化の向きを平行・反平行に制御し, トンネル磁気抵抗を測定する¹⁹⁻²²⁾. **Fig. 6(a)** の素子構造に対して, 一定のゲート電圧下で, 面内に磁場を印加して掃引しながらトンネル電流を測定すると, **Fig. 6(b)** のような明瞭なトンネル磁気抵抗のヒステリシスが観測された. この状態から, **Fig. 6(c)** に示すようなゲート電圧の僅かな変化によるドットの電子状態の変調により, 磁気抵抗値は急激に変化し, 負のトンネル磁気抵抗も観測された¹⁹⁻²¹⁾. このことはトンネル磁気抵抗をゲートで制御できるスピントランジスタが実現されたことを意味している.

3. 原子スケールナノギャップ電極の作製と単一分子トランジスタへの応用

3.1 単一分子素子とナノギャップ電極作製

単一分子を活性領域に用いてデバイスを実現しようという考え方は分子エレクトロニクスと呼ばれ, エレクトロニクス

の黎明期から提案がなされてきた^{23,24)}. 一般に分子は 1 nm 以下程度の寸法であり, 電氣的に単一分子にアクセスすることは極めて困難である. しかし, 1999年から2000年にかけて, 当時カリフォルニア大学にいた Park, McEuen らは, エレクトロマイグレーションを応用してナノギャップ電極を作製する手法を提案し, 分子エレクトロニクスの分野に大きなブレイクスルーをもたらした^{25,26)}.

ヒューズや電球のフィラメントが切れるように, 金属線に過大な電流を流すと, 金属線はやがて断線してしまうことが知られている. これは通電によって金属中の格子原子が平衡位置を保てなくなり, 原子が流動 (マイグレーション) を起こし, やがて結晶構造自体が破壊されうること示している. このような通電による原子の流動はエレクトロマイグレーションと呼ばれている²⁷⁻³⁰⁾. エレクトロマイグレーションは, 様々な故障の原因であり, エレクトロニクスにおいては抑制すべき現象であると考えられている. 例えば, 大規模集積回路 (VLSI) の中では, 金属配線は数 MA/cm² という電流密度で断線してしまう¹⁾.

しかし近年, エレクトロマイグレーションを積極的に利用し, 単一分子を捕獲できるような原子スケールのナノギャップ電極を作製する新しい手法が注目を集めている^{25,26,31-33)}. 容易に想像できるように, 分子接合の作製は非常に困難である. フラーレンやベンゼンといった分子の寸法は一般に非常に小さく, 金属電極を接触させて接合を作製しようとするれば, 1 nm 程度の間隔まで接近したナノギャップ電極が必要となる.

本節では, 極微細金属ナノ接合を用い, エレクトロマイグレーションによるナノギャップ形成過程を精密に制御することにより, 原子 1 個ずつマイグレーションさせることができるようになることを示す. さらに, その過程の精密な解析から, 原子スケールでのエレクトロマイグレーションの機構を明らかにするとともに, その制御を通して, 高い歩留まりで単一分子接合を作製する技術に関する最近の取り組みについて紹介する.

3.2 エレクトロマイグレーションに対する従来の描像

集積回路の金属配線のエレクトロマイグレーションに対する信頼性を調べる研究では, 金属配線が断線するまでの平均寿命 τ が指標とされ, τ を決定する主要なパラメータが配線の温度 T と電流密度 j であり, エレクトロマイグレーションの主要な機構が, 通電に伴う Joule 熱の発生と電子風効果と呼ばれる 2 つの効果による原子移動であると考えられている^{1,27-30)}. Joule 熱が発生すると格子の温度が上昇し, 原子移動が促進される. 一方, 電子風効果は, 金属原子が高い電流密度に曝されている状況で, 伝導電子が結晶格子と何度も衝突し, やがて原子が格子の平衡位置に戻れなくなる効果であり, 電流密度 j によって特徴づけられる. 一般的にはエレクトロマイグレーションの生じる臨界電流密度 j_c は, 銅や金などの良導体で数 MA/cm² の値が報告されている^{1,27-30)}.

一般にこのような議論では, 電子が金属線を伝導するとき, 何度も散乱を経験する拡散的伝導領域にあることが仮定されており, この散乱の効果で Joule 熱や電子風効果が発生

する。しかし、単一分子デバイスのような原子スケールの極微細金属ナノ接合では、金属ナノ接合の寸法が電子の平均自由行程よりも短い、いわゆるバリスティック伝導領域に入ると考えられる。このような散乱のない原子スケールの金属ナノ接合においては、全く別の機構が関与しているのではないかという疑問が湧く。

3.3 原子スケールのナノギャップ形成と原子移動の臨界電圧

Fig. 7(a)は断線させる前の金ナノ接合で、2層レジストを用いた電子線リソグラフィと傾斜蒸着法によって作製してある。このようなナノ接合に、接合のコンダクタンスをモニターしつつ、フィードバックをかけながら通電し、エレクトロマイグレーションを誘起すると、やがてナノギャップが得られる^{31,34)}。

Fig. 7(b), (c)は、接合伝導度 $G_J (=1/R_J)$ と接合電圧 V_J の時間発展を示したものである。伝導度の値は、量子化伝導度 $G_0 \equiv 2e^2/h$ を単位にしている (e は電荷素量, h はプランク定数) ので, **Fig. 7(b), (c)** の縦軸の数値は、接合の狭窄部分の断面にある原子の個数にほぼ等しい。 **Fig. 7(b)** は金接合の狭窄部分が200原子程度の比較的高伝導度の大きな領域, **Fig. 7(c)** は40原子程度の伝導度の小さな領域について示している³⁴⁾。特に40原子程度の極微細金属接合になると、コンダクタンスがステップ状に減少し、減少の大きさもおおよそ G_0 またはその整数倍程度になっている。このことは、40原子程度の極微細構造になると伝導が拡散的なものからバリスティックな状態になること、さらに接合部から1個ずつ原子が脱離していくことを示している。

Fig. 7(c)において、接合伝導度 G_J が減少するときの接合電圧 V_J の値（つまり V_J の鋸波の頂点）をエレクトロマイグレーションの臨界電圧 V_C と呼ぶことにして、 V_C に着目

Fig. 7 The sample conductance as a function of the applied voltage for an entire electrical break junction process for gold. (b), (c) Time evolutions of the junction voltage and the junction conductance during the electrical break junction process when the junction conductance is around $200G_0$ and $40G_0$, respectively. (Ref. 34)

してより詳細な解析を行う。 **Fig. 8** は、室温と4.2 K に冷却した場合について臨界電圧 V_C の接合抵抗 R_J に対する依存性を示したものである。 R_J は量子化抵抗 $R_0 \equiv h/2e^2$ を単位にプロットしてある。これを見ると、エレクトロマイグレーションには少なくとも2つのフェーズが存在することがわかる。 **Fig. 8** において、 $R_J \leq 0.02R_0$ のような接合が比較的高い領域では（接合の原子数にして50原子程度まで）、 V_C^2/R_J が一定値になるように V_C が増加することがわかる。 V_C^2/R_J は電力の次元を持ち、接合での消費電力がある臨界値 $P_C (=V_C^2/R_J)$ に達した時、エレクトロマイグレーションが進行することを示している。このことは、金属線のエレクトロマイグレーションが、接合における Joule 発熱に伴う温度上昇によるものであるという従来の描像と整合する^{1,27-32)}。

しかし **Fig. 8** の $R_J \geq 0.02R_0$ の領域のように、金属ナノ接合の断面にある原子数が50以下の極微領域に入ると、 V_C は消費電力一定の法則に従わなくなり、 R_J が増大してもそれほど変化しなくなる。

3.4 エレクトロマイグレーションの素過程

Fig. 9 は、バリスティック領域における単一原子マイグレーションの頻度を、臨界電圧を階級としてヒストグラムに表したものである。我々は、このプロットをエレクトロマイグレーション分光と呼んでいる。これより、バリスティック伝導領域にある金のナノ接合においては、接合電位差が0.4 V に達した時に原子のマイグレーションが最も頻繁に生じ

Fig. 8 The critical junction voltage vs the junction conductance measured at 4.2 K and 300 K for gold nanojunctions.

Fig. 9 A histogram of the critical junction voltage for gold nanojunctions (electromigration spectrum). The inset shows a schematic illustration for the electromigration in the ballistic regime.

Fig. 10 The electromigration spectra for Au, Cu, and Ni. The arrows indicate the positions of the surface diffusion potentials for various metal species.

ることがわかる．この臨界電圧0.4 V の背景にある物理は何であろうか．

エレクトロマイグレーションにおいては，原子は金属表面のあるサイトから別のサイトに移動する．その時，ある大きさのエネルギー障壁（表面拡散ポテンシャルと呼ばれる）を越えなければならない．この表面拡散ポテンシャル (E_{diff}) の値は，走査トンネル顕微鏡 (STM) などにより様々な金属表面に対して調べられており，金表面の場合は約0.4 eV である³⁵⁾．Fig. 9 で得られたヒストグラムのピークが，表面拡散ポテンシャルにほぼ等しいということは，Fig. 9 の挿入図に示すように，1 個の伝導電子がそのすべてのエネルギーを1 個の原子に渡すことで単一原子の表面拡散を励起していることを示している³⁴⁾．

Fig. 10に金に加えてニッケルや銅で作製したナノ接合のエレクトロマイグレーション分光の結果を示す．材料の違いによってスペクトルの最頻値が異なり，表面拡散ポテンシャル E_{diff} で決まる臨界電圧 E_{diff}/e で頻繁に単一原子のマイグレーションが生じることがわかる^{34,36,37)}．この知見を利用すれば，ヒストグラムのピークが現れる電圧付近でバイアスすることによって，原子1 個ずつマイグレーションさせることができ，原子スケールの超精密なナノギャップの加工が可能になる．

3.5 通電断線法を用いた単一分子トランジスタ構造の作製

2000年に Park らはエレクトロマイグレーションを用いてナノギャップ電極を作製し，単一の C60分子を活性層とするトランジスタを実現した²⁶⁾．この成果は単一分子デバイスの研究に大きなインパクトを与えた．現在，通電断線によるナノギャップ電極の作製は，単一分子接合の作製手法として広く用いられている．しかし，分子接合の作製過程には多くの確率的な過程が含まれており，現段階では，分子がナノギャップ部分に捕獲されるかどうかの制御は難しい．従って，ナノギャップを有する電極の作製歩留まりを極めて高くすることは必須である．

断線前の金属ナノ接合表面に，溶媒に溶かした分子を塗布し，試料とする．クライオスタットに試料を装着し，約4.2 K に冷却した後，フィードバック通電断線を行い，単一分子トランジスタを作製する．我々のグループでは，通電断線プロセスを，PC を用いてほぼ自動化しており，約10～20分

Fig. 11 A histogram of the resistances of nanogaps fabricated by electrical break junction method with and without feedback control.

Fig. 12 (a) Current-voltage characteristics of a Au/C60 single molecule transistor measured for various gate voltages. (b) An I-V curve and a differential conductance of a Au/C60 single molecule transistor.

で精密な断線が完了する．**Fig. 11**は，フィードバック通電断線制御を行った場合と，制御を行わなかった場合の，ナノギャップ電極のトンネル抵抗のヒストグラムをプロットしたものである．フィードバック制御を行うことにより，ナノギャップの抵抗が約4桁も小さくなることがわかる．また爆発的な断線は完全に抑制され，ナノギャップ電極が作製できる歩留まりは，ほぼ100%である．

Fig. 12は，金電極に C60分子を塗布して得られた単一 C60分子トランジスタの電流-電圧特性を示す．塗布された C60分子は，Van der Waals 力で金の表面に吸着するが，あるものは偶然ナノギャップにトラップされ，単一分子トランジスタが作製される．この過程は，それほど制御性が高いものではないが，我々の場合，約10～20%の確率で分子トランジスタが作製できる．通常のトランジスタのように，ゲート電圧に対して一様に電流が変化せず，クーロンブロード

効果を反映した単一電子トランジスタ的な特性を示す。また、C60分子は非常に微小なため、帯電エネルギーが非常に大きく、通常のゲート電圧の掃引範囲では1個の電子の出し入れができる程度である。

4. ま と め

これまで、単一分子伝導は機械的ブレークジャンクション法やSTMなどを用いて、詳細な検討がなされてきたが、これらの手法は基本的に2端子計測を行うものであり、電気化学ポテンシャルを制御するための第3の電極であるゲートを作製することが困難であった。本研究で用いた通電断線法は、基板をゲートとして用いることができるため、原理的には2端子構造よりも、はるかに機能が高い。しかし、従来はナノギャップ電極作製の歩留まりの低さにより、系統的な議論を行うことが困難であった。

今回、我々が報告した原子スケールでのエレクトロマイグレーションの機構の解明と、その知見を利用した通電断線プロセスを制御する方法は、ナノギャップ電極の作製における制御性と再現性を飛躍的に高めるものであり、今後単一分子エレクトロニクスの進展に大きく貢献するものと考えている。また、我々が明らかにした原子レベルのエレクトロマイグレーションの機構は、ますます微細化するVLSIの配線技術の将来に新しい展開をもたらすものである。

謝辞

本研究は、研究室の研究員・大学院生諸氏、さらに樽茶清悟教授・大岩 顕講師（東京大学工学系研究科）、町田友樹准教授（東京大学生産技術研究所）、塚田 捷教授（東北大学WPI）、高柳英明教授（東京理科大、NIMS）の各グループの方々との共同研究の成果によるものである。この場を借りて感謝申し上げる。本研究は、科学技術振興機構CREST、科学技術振興調整費「先端融合領域イノベーション創出拠点の形成」の支援を受けて行われた。

〔文 献〕

- 1) <http://www.itrs.net/>
- 2) P. M. Petroff, A. Lorke and A. Imamoglu: *Phys. Today*, **54** (2001) 46.
- 3) D. Bimberg, M. Grundmann and N. N. Ledentsov: *Quantum Dot Heterostructures* (Wiley, Chichester, 1999).
- 4) H. Hasegawa and H. Ohno: *J. Vac. Sci. Technol. B*, **4** (1986) 1130.
- 5) M. Jung, K. Hirakawa, Y. Kawaguchi, S. Komiyama, S. Ishida and Y. Arakawa: *Appl. Phys. Lett.*, **86** (2005) 033106.
- 6) H. Grabert and M. H. Devoret ed.: *Single Charge Tunneling: Coulomb Blockade Phenomena in Nanostructures*, (Plenum and NATO Scientific Affairs Division, New York, 1992).
- 7) S. Tarucha, D. G. Austing, T. Honda, R. J. van der Hage and L. P. Kouwenhoven: *Phys. Rev. Lett.*, **77** (1996) 3613.
- 8) M. Jung, T. Machida, K. Hirakawa, S. Komiyama, T. Nakaoka, S. Ishida and Y. Arakawa: *Appl. Phys. Lett.*, **87** (2005) 203109.

- 9) K. Shibata, M. Jung, K. M. Cha, M. Sotome and K. Hirakawa: *Appl. Phys. Lett.*, **94** (2009) 162107.
- 10) Y. Igarashi, M. Jung, M. Yamamoto, A. Oiwa, T. Machida, K. Hirakawa and S. Tarucha: *Phys. Rev. B*, **76** (2007) 081303R.
- 11) K. Shibata, M. Jung, K. Hirakawa, T. Machida, S. Ishida, Y. Arakawa and H. Sakaki: *J. Cryst. Growth*, **731** (2007) 301.
- 12) K. Shibata, C. Buizert, A. Oiwa, K. Hirakawa and S. Tarucha: *Appl. Phys. Lett.*, **91** (2007) 112102.
- 13) C. Buizert, A. Oiwa, K. Shibata, K. Hirakawa and S. Tarucha: *Phys. Rev. Lett.*, **99** (2007) 136806.
- 14) Y. Kanai, R. S. Deacon, A. Oiwa, K. Yoshida, K. Shibata, K. Hirakawa and S. Tarucha: *Phys. Rev. B*, **82** (2010) 054512.
- 15) R. S. Deacon, Y. Kanai, A. Oiwa, K. Yoshida, K. Shibata, K. Hirakawa and S. Tarucha: *AIP Conf. Proc.*, **1199** (2010) 275.
- 16) Y. Kanai, R. S. Deacon, K. Yoshida, K. Shibata, K. Hirakawa, A. Oiwa and S. Tarucha: *J. Physics: Conference Series*, **150** (2009) 022032.
- 17) R. S. Deacon, Y. Tanaka, A. Oiwa, R. Sakano, K. Yoshida, K. Shibata, K. Hirakawa and S. Tarucha: *Phys. Rev. Lett.*, **104** (2010) 076805.
- 18) S. Datta and B. Das: *Appl. Phys. Lett.*, **56** (1990) 665.
- 19) K. Hamaya, M. Kitabatake, K. Shibata, M. Jung, M. Kawamura, K. Hirakawa, T. Machida, T. Taniyama, S. Ishida and Y. Arakawa: *Appl. Phys. Lett.*, **91** (2007) 022107.
- 20) K. Hamaya, M. Kitabatake, K. Shibata, M. Jung, M. Kawamura, S. Ishida, T. Taniyama, K. Hirakawa, Y. Arakawa and T. Machida: *Phys. Rev. B*, **77** (2008) 081302R.
- 21) K. Hamaya, M. Kitabatake, K. Shibata, M. Jung, M. Kawamura, K. Hirakawa, T. Machida, T. Taniyama, S. Ishida and Y. Arakawa: *Appl. Phys. Lett.*, **93** (2008) 222107.
- 22) K. Hamaya, M. Kitabatake, K. Shibata, M. Jung, S. Ishida, T. Taniyama, K. Hirakawa, Y. Arakawa and T. Machida: *Phys. Rev. Lett.*, **102** (2009) 236806.
- 23) R. P. Feynman: *29th Annual Meeting of the American Physical Society* (1959).
- 24) Aviram and M. A. Ratner: *Chem. Phys. Lett.*, **29** (1974) 277.
- 25) H. Park, A. K. Lim, A. P. Alivisatos, J. Park and P. L. McEuen: *Appl. Phys. Lett.*, **75** (1999) 301.
- 26) H. Park, J. Park, A. K. L. Lim, E. H. Anderson, A. P. Alivisatos and P. L. McEuen: *Nature (London)*, **407** (2000) 57.
- 27) H. B. Huntington and A. R. Grone: *J. Phys. Chem. Solids*, **20** (1961) 76.
- 28) J. R. Black: *IEEE Trans. Electron Devices*, **16** (1969) 338.
- 29) P. S. Ho and T. Kwok: *Rep. Prog. Phys.*, **52** (1989) 301 and references therein.
- 30) M. Etzion, I. A. Blech and Y. Komem: *J. Appl. Phys.*, **46** (1975) 1455.
- 31) D. R. Strachan, D. E. Smith, D. E. Jonston, T. H. Park, M. J. Therien, D. A. Bonnell and A. T. Johnson: *Appl. Phys. Lett.*, **86** (2005) 043109.
- 32) A. Houck, J. Labaziewicz, E. K. Chan, J. A. Folk and I. L. Chuang: *Nano Lett.*, **5** (2005) 1685.
- 33) Z. M. Wu, M. Steinacher, R. Huber, M. Calame, S. J. van der Molen and C. Schonenberger: *Appl. Phys. Lett.*, **91** (2007) 053118.
- 34) A. Umeno and K. Hirakawa: *Appl. Phys. Lett.*, **94** (2009) 162103.
- 35) S. Günther, A. Hitzke and J. Behm: *Surf. Rev. Lett.*, **4** (1997) 1103.
- 36) K. Yoshida, A. Umeno, S. Sakata and K. Hirakawa: *Appl. Phys. Express*, **3** (2010) 045001.
- 37) S. Sakata, A. Umeno, K. Yoshida and K. Hirakawa: *Appl. Phys. Express*, **3** (2010) 115201.