

カーボンナノチューブ量子ドットのテラヘルツ波応答

石橋 幸治, 河野 行雄, 布施 智子, 豊川 聖子, 山口 智弘

Quantum Terahertz Response of Carbon Nanotube Quantum Dots

Koji ISHIBASHI, Yukio KAWANO, Tomoko FUSE, Seiko TOYOKAWA and Tomohiro YAMAGUCHI

Electron transport properties of the carbon nanotube (CNT) quantum dots (QDs) have been studied under the continuous terahertz (THz) wave irradiation. CNT-QDs showed Coulomb blockade oscillations without THz irradiation. However, when the THz wave was irradiated, satellite peaks appeared. We attribute this to the THz photon assisted tunneling (THz-PAT), where an electron in the dot tunnels out to the drain electrode by absorbing the THz photon even in the Coulomb blockade regime.

Key words: quantum dots, carbon nanotube, single electron transistor, terahertz photon assisted tunneling

量子ドットとは狭い空間に電子を閉じこめた構造をいう。そのサイズは、半導体リソグラフィ技術で作製することのできるサブミクロン程度のもので、分子レベルの数ナノメートルのものまでさまざまである。量子ドットでは、閉じ込めポテンシャルに電子が束縛されるという意味で、人工原子とみることもできる^{1,2)}。自然の原子との類似から、量子ドットに重要なエネルギースケールは、電子1個を量子ドットに充電するための1電子帯電エネルギー（原子ではイオン化エネルギーに対応）と閉じ込めにより形成される量子準位の間隔である。前者は、量子ドットの自己容量を用いて、 $E_c = e^2/C_s$ 、後者は、 ΔE と表される。1本の単層カーボンナノチューブに形成できる量子ドットでは、これらのエネルギースケールが、サブミリ波からテラヘルツ波の領域にあることから、カーボンナノチューブ量子ドットではテラヘルツ (THz) 波に対する量子的な応答が期待できる³⁾。すなわち、テラヘルツ波をフォトン（光子）として検出する可能性がある。このような量子的な応答は光の領域では半導体との相互作用においてよく知られているが、周波数が低い MHz 程度以下の電波は明らかに古典的な交流（波）として振る舞うので、電波と光の中間にあるテラヘルツ領域において、電磁波が量子的に振る舞うのか古典的に振る舞うかは自明ではない。量子的な応答が実現できれば、それを利用した高感度な検出器への

応用も開ける。本稿では、カーボンナノチューブ量子ドットにテラヘルツ波を照射した場合に観測された量子的な応答について、その基本的なメカニズムを紹介する。

1. 量子ドットと単電子トランジスタ⁴⁾

量子ドットに電流を流すためのデバイスが単電子トランジスタである。その等価回路図を図1 (a) に示す。量子ドットの両側に微小なトンネル接合を通してソース (S) とドレイン (D) 電極がついている。したがって、電流はトンネル効果によって流れる。また、量子ドットには、普通のコンデンサー（トンネルできない）を通してゲート電極がついており、このゲート電極にかかる電圧を変えると、量子ドットの電位（ポテンシャル）を変えることができる。

量子ドットが十分小さく、1電子帯電エネルギー (E_c) が温度に比べて十分に大きいときは、左のソース電極から量子ドットに電子がトンネルするためには、 E_c 程度のエネルギーが必要となる。このことを模式的に書いたのが図1 (b) 左図である。この場合、量子ドットには電子は N 個入っており、その次の $N+1$ 番目の電子が入るべき準位は、 N 番目の電子の準位よりも E_c だけ上にある。この準位が、ソースドレイン電圧 (V_{sd}) で決まるバイアス窓の中に入っていない場合（図1 (b) 左図）、電流は流れない。これをクーロンブロック現象とよぶ。ゲート電圧をさ

理化学研究所石橋極微デバイス工学研究室 (〒351-0198 和光市広沢 2-1) E-mail: kishiba@riken.jp

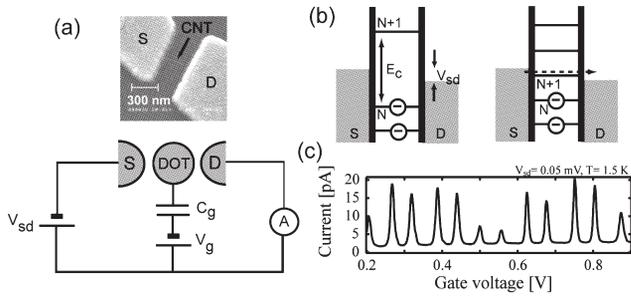


図1 (a) 単電子トランジスタの等価回路。写真は1本の単層カーボンナノチューブ (CNT) にソースドレイン電極をつけて作製した単電子トランジスタ。 (b) 量子ドットのエネルギーダイアグラム。左はクーロンブロック状態、右はクーロンブロックが破れた状態。 (c) カーボンナノチューブ単電子トランジスタにおけるクーロン振動。

らに正の向きに印可し、 $N+1$ 番目の準位がバイアス窓にはいると、クーロンブロックが破れ電流が流れる (図1 (b) 右図)。このとき、量子ドット全体でみれば、ドットの中に電子が N 個入っている状態と、 $N+1$ 個入っている状態はエネルギー的に縮退している。電流が流れる様子に特徴があり、電子数 N 個のとき、ソース電極から電子が1個トンネルして $N+1$ 個になり、ドットの電子が1個ドレイン電極にトンネルして、ドットの電子数は元に戻る。これを繰り返して電流が流れる。あたかも、水道の蛇口を絞ると水滴が1滴ずつこぼれ落ちる様子に似ている。これが単電子トランジスタに電流が流れるメカニズムである。 V_{sd} を小さな値に固定して (線形応答領域)、ゲート電圧を連続的に変えると、電流がスパイク状に流れる。これをクーロン振動といい、図1 (c) はカーボンナノチューブ量子ドットでみられるクーロン振動の例である。クーロンブロック状態にあり本来は電流が流れないところで、テラヘルツ光子のエネルギーを利用して電子のトンネルを可能にしようというのが基本的な考え方である。

2. カーボンナノチューブ量子ドットのテラヘルツ応答

カーボンナノチューブ量子ドット (単電子トランジスタ

一) に周波数の異なるテラヘルツ波を照射しながら、流れる直流電流がどのように変化するかを調べた⁵⁾。1.5 K で測定した結果を図2 (a) に示す。この図では、1つのクーロン振動ピークに着目している。テラヘルツ波を照射していないときは (一番下)、クーロン振動ピークだけが見られる。ピークの形が図1 (c) に比べて広がっているように見えるのは、図1 (c) よりも大きな V_{sd} を印可しているからである。このクーロン振動ピークがテラヘルツ波の照射とともに変化する様子を見ると、テラヘルツ波の照射とともにクーロン振動ピーク (メインピークとよぶ) の右側に、テラヘルツ波の照射により初めて現れるサテライトピークが観測される。サテライトピークの位置は、照射する周波数を大きくしていくとメインピークから離れてゆく方向に動く。サテライトピークの高さは周波数によって異なる。メインピークとサテライトピークの間ゲート電圧の大きさをエネルギーに変換し、周波数に対してプロットすると、図2 (b) のようになる。すなわち、各点は傾きが1の直線上にのる。

サテライトピークが生じるメカニズムは図2 (c) のように理解することができる。この状態ではクーロンブロックの状態であるので電流は流れない。しかし、量子ドットの一番上にいる電子がテラヘルツ光子を吸収しドレイン電極にトンネルし (光支援トンネル)、空いたところに左のソース電極から電子が入れば、結果的に電子が1個ソース電極からドレイン電極に移動したことになる。このようなプロセスが繰り返されると電流として検出される。サテライトピークがピークの形状をとる理由は、量子ドット内の電子が、 V_{sd} できまるドレイン側のバイアス窓に入ったときだけ、電流として寄与するからである。

テラヘルツ波を照射したときのメインピークとサテライトピークの照射強度依存性は興味深い。図3 (a) はメインピーク ($V_g \sim -485$ mV) とサテライトピーク ($V_g \sim -500$ mV) のテラヘルツ強度依存性である。このデータでは、

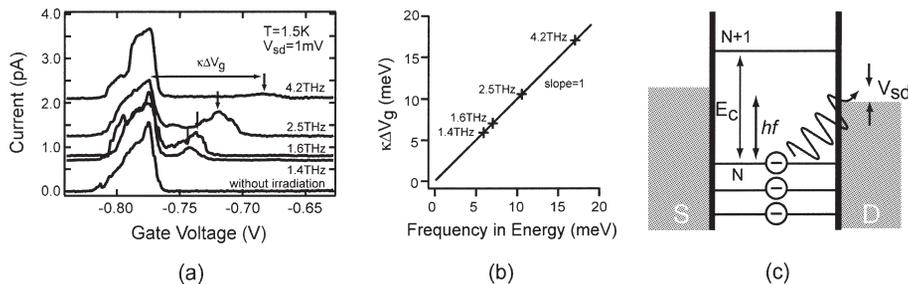


図2 (a) さまざまな周波数のテラヘルツ波を照射したときのクーロン振動ピークの様子。 (b) メインピークとサテライトピークの間ゲート電圧差をエネルギーに変換し、周波数に対してプロットした図。 (c) サテライトピークが生じるメカニズムを表したエネルギーダイアグラム。

図2 (a) とは違い、サテライトピークはメインピークの左側に現れている。メカニズムの詳細は紙面の都合で省略するが、サテライトピークはドレイン側の電子がテラヘルツ光子を吸収して量子ドットにトンネルするプロセスに起因していることがわかっている⁶⁾。図からわかるように、テラヘルツ波の強度の増加に対してメインピークの高さは低くなる傾向にあるのに対し、サテライトピークは逆に大きくなる (点線矢印)。このことを、テラヘルツ強度の関数としてプロットすると図3 (c) のようになる。この特性は、マイクロ波を照射した超伝導トンネル接合でみられる光アシストトンネルと同じで、Tien-Gordon モデルで定性的に説明できる⁷⁾。すなわち、量子ドットにテラヘルツ波が照射されると、テラヘルツ振動電界は電子に直接作用せず (電極間隔が約 300 nm 程度とテラヘルツ波の波長 $\sim 100 \mu\text{m}$ に比べて十分小さいので、電極により遮蔽される)、ソースドレイン電圧を振動させる。振動電圧は2つのトンネル障壁に分圧される。Tien-Gordon モデルによれば、トンネル障壁の両端に交流電圧を印可すると、ベッセル関数で変調された間隔が hf の光サイドバンドが形成される (電子工学における周波数変調と同じである)。トンネルはこのサイドバンドを通して生じるために、トンネル確率は、 $J_n^2(eV/hf)$ のように変化する。ここで、 n はベッセル関数の指数で、ゼロはフォトンの吸収のないメインピーク、 $n=1$ は1個のフォトンの吸収を表す。実験で観測されたピーク高さのテラヘルツ強度依存性は、このベッセル関数の形を反映している。

最後に、このようなテラヘルツ光子の吸収という量子的な応答が現れるための条件について考察する。まず、電子がテラヘルツで振動する電界を感じるために、電子が量子ドットを通過する時間 (エスケープ時間) が振動周期よりも十分長いことが必要である。このことは、単電子トンネルの場合、エスケープ頻度が $\Gamma \sim I/e$ ($I \sim 1 \text{ pA}$ とすると $\Gamma \sim 10 \text{ MHz}$) で与えられることから、この条件は今の場合十分満たされている。次に、テラヘルツ光子のエネルギー hf が温度よりも十分大きいことが必要である。電極のフェルミエネルギー付近の電子には、温度のエネルギー kT 程度の広がりがあることから、図2 (c) のようなプロセスが明確に生じるためにはドレイン電極のフェルミエネルギー付近の電子の広がり hf に比べて十分小さくなくてはならない。このことは、液体ヘリウム温度 ($3 \text{ K} \sim 0.26 \text{ meV}$) 程度では十分満たされている ($2.5 \text{ THz} \sim 10 \text{ meV}$)。このことが、逆にこのメカニズムの温度の上限を決めている。最後に、図2 (c) のようなプロセスが起こるためには、 E_c が hf に比べて十分に大きいことが必要であるが、

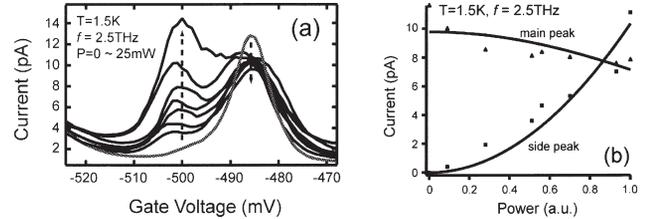


図3 (a) テラヘルツ照射強度を変化させた場合のメインピークとサテライトピークの変化の様子。(b) それぞれのピーク高さを強度に対してプロットした図。

この試料の場合、 $E_c \sim 20 \text{ meV}$ であり、条件は十分に満たされている。

トンネル障壁に交流電圧をかけたときに生じる光支援トンネルは、マイクロ波の領域では超伝導接合でよく知られた効果である⁸⁾。しかし、このメカニズムは超伝導ギャップエネルギーの大きさに制限されており、通常の超伝導材料ではテラヘルツ領域まで達しない。今回紹介したメカニズムは、クーロンブロック効果に光支援トンネルを適用し、さらにそれをナノテクノロジーによって量子ドットを微細化することによりテラヘルツ領域まで周波数範囲を拡大したところに特徴がある。このメカニズムでは、材料は超伝導体である必要はなく、量子ドットが小さければ小さいほど周波数範囲は広がる。単一量子ドットでは、周波数の上限は温度で制限されるが、二重結合量子ドットの量子準位間での光支援トンネルを利用するならば、温度の制限は緩くなる可能性がある。

量子ドットという新しい機能性構造をテラヘルツ検出器への応用可能性について述べた。現在はまだ、テラヘルツ応答の新しい量子メカニズムを観測したという段階であり、すぐに検出器に応用できるという段階ではないが、デバイス作製の信頼性が向上し、アンテナの設置による効率の増大が実現できれば、分光機能をもちかつ高感度なテラヘルツ領域における新しい検出器として利用できる可能性は十分にある。

文 献

- 1) S. Tarucha, *et al.*: Phys. Rev. Lett., **77** (1996) 3613-3616.
- 2) S. Moriyama, *et al.*: Phys. Rev. Lett., **94** (2005) 186806.
- 3) T. Fuse, *et al.*: Nanotechnology, **18** (2007) 044001.
- 4) 石橋幸治: “量子ドットと単電子デバイス”, Computer Today, No. 109 (2002) 30-37.
- 5) Y. Kawano, *et al.*: J. Appl. Phys., **103** (2008) 034307.
- 6) K. Ishibashi, *et al.*: J. Phys. Condens. Matter, **20** (2008) 454203.
- 7) P. K. Tien, *et al.*: Phys. Rev., **129** (1963) 647-651.
- 8) J. R. Tucker, *et al.*: Rev. Mod. Phys., **57** (1985) 1055-1113.

(2008年9月10日受理)