OUKA
The University of Osaka
Institutional Knowledge Archive

Title	Study on Discrete Current Fluctuation in Carbon Nanotube/Redox Active Molecule Hybrid Device
Author(s)	Setiadi, Agung
Citation	大阪大学, 2017, 博士論文
Version Type	VoR
URL	https://doi.org/10.18910/67136
rights	
Note	

The University of Osaka Institutional Knowledge Archive : OUKA

https://ir.library.osaka-u.ac.jp/

The University of Osaka

Abstract of Thesis

Name （SETIADI AGUNG ）	
Title	Study on Discrete Current Fluctuation in Carbon Nanotube/Redox Active Molecule Hybrid Device (分子・カーボンナノチューブ複合素子に発現する離散的電流変動に関する研究)

Abstract of Thesis

Carbon nanotube (CNT) has attracted many attentions due to its excellent electronic properties. Due to its one-dimensionality, it is well known that the CNT is very sensitive to the environment around its surface. A simple deformation, like bending, and the presence of adsorbed molecules could alter the electronic properties of the CNT itself. Functionalizing the CNT with another molecule is one of the interesting subject to fabricate novel electronic devices.

Electronic transport of CNT field-effect-transistor (FET) is mainly governed by the Schottky barrier at the interface between CNT and metal electrodes. In the case of bottom contact CNT-FET device, the CNT will be bent at the contact point with metal electrodes. It was found that the bending causes the shift of the Fermi level of the CNT towards the valence band as indicated by the down-shift of the G band peak in Raman spectra of CNT. The shift of the Fermi level also resulting in the change of the FET transfer characteristic from ambipolar to p-type characteristic. It was also found that embedding the metal electrodes inside the substrate could maintain the original shape of the CNT at the contact point with metal electrodes.

Molecular functionalization of the CNT open a wide range of potential application in electronic and sensing devices. It was found that the addition of a molecule with high redox activity to a CNT-FET provides tunable current fluctuation noise. A unique charge-trap state in the vicinity of the CNT surface due to the presence of the single molecule generates a prominent and unique noise in the form of random telegraph signal (RTS) and Lorentzian-shaped power spectral density (PSD) in time- and frequency-domain signal, respectively. Distinctive RTS and Lorentzian-shaped PSD in CNT device were observed due to adsorption of protoporphyrin, Zn-protoporphyrin, and phosphomolybdic acid molecules. It is considered that those fluctuation is caused by the single charge trapping-detrapping event which change molecular charge state from neutral to positively or negatively charged.

The fluctuation which were caused by molecular adsorption were utilized to fabricate CNT-based stochastic resonance (SR) devices with self-noise source. SR is an intrinsic noise usage system for small-signal sensing found in various living creatures. The noise-enhanced signal transmission and detection system, which is probabilistic but low-power-consumption, has not been used in modern electronics. Summing network SR device based on multiple-CNT junctions aligned parallel to each other that detects small sub-threshold signals with very low current flow was demonstrated. The nonlinear current-voltage characteristics of this CNT device, which incorporated Cr electrodes, were used as the threshold level of signal detection. The adsorption of redox-active polyoxometalate molecules on CNTs generated additional noise, which was utilized as a self-noise source. The functional capabilities of the present small-size summing network SR device, which rely on dense nanomaterials and exploit intrinsic spontaneous noise at room temperature, offer a glimpse of future bio-inspired electronic devices.

様式 7

論文審査の結果の要旨及び担当者

氏　　名	（ SETI ADI　AGUNG ）	
論文審査担当者	（職）	氏　　名
	主 査　教授	桑原　裕司
	副 査　教授	森川　良忠
	副 査　准教授	ディニョ　ウィルソン
	副 査　教授	葛西　誠也（北海道大学量子集積エレクトロニクス研究センター）

論文審査の結果の要旨

本論文の要旨は、カーボンナノチューブ（Carbon nanotube：CNT)を母体としたデバイス作製、また、その構造歪、有機分子吸着による CNT の機能制御を通じて、新規なデバイス特性の発現、及び、確率共鳴デバイス等新しい概念にもとづいた機能デバイス構築のための基礎的なデータを蓄積したものである。

カーボンナノチューブ（Carbon nanotube：CNT) は その特異な電子物性から、さまざまな分野で注目を集めている。特に、CNT の高い一次元性により、その電子物性は表面環境に非常に敏感であることが良く知られている。例えば、屈曲による構造歪、CNT 表面の吸着分子の存在等は、CNT の電子物性を変調させるのに十分である。特に、分子吸着による CNT の機能化は、新奇な電子デバイスの作製・制御の観点から、昨今、興味深い対象として研究が続けられている。

CNT をチャンネルとして扱うデバイスの作製には、ボトムコンタクト型、トップコンタクト型の両手法が採用される。ボトムコンタクトの場合では、スピンコーティング法や、交流電気泳動法により CNT を担持する。この時、従来の蒸着法により電極を作製した場合、極微サイズの CNT は、電極端の段差のため強く変形し、CNT のフェルミレベルが価電子帯方向にシフトする。結果的に、CNT 電界効果トランジスタ（FET）の特性に影響を与える。申請者はそれを克服するために埋め込み電極を提案・作製し、電極との接点においても CNT の形状変形を最小限に抑えることに成功している。

一方で、有機分子吸着による CNT の機能化は、電子デバイスあるいはセンサ等、応用への道を拓いてきた。センサの選択性向上や感度向上は、分子吸着による機能付加の大きな利点の一つである。特に、単分子吸着の影響は、分子修飾した CNT デバイスにより評価が可能となる。すなわち、分子吸着は、CNT の電荷トラップとして働き、CNT デバイスの電荷輸送特性に特異な摂動（分子雑音）を与える。それらは、時間スケールではランダムテレグラフノイズ（Random telegraph noise:RTS）と呼ばれる揺らぎであり、周波数特性では、ローレンツ型パワースペクトル密度（Lorentzian-shaped power spectral density:PSD)として現れる。本研究では、CNT にプロトポルフィリン、鉛ポルフィリン、リン・モリブデン酸（PMo_{12}）を吸着させることにより、分子固有の RTS 信号と、ローレンツ型 PSD を観測している。これらの揺らぎは、CNT の単一電荷の捕獲・解放過程に起因し、その際分子は中性状態から正あるいは負のイオン状態に移行することを明らかにしている。

また、この分子吸着に由来する揺らぎを、CNT をベースにした確率共鳴素子（stochastic resonance (SR) devices）の自発型ノイズ源に利用可能である。SR 素子では、それらノイズが信号伝達そのものを増幅することが知られており、多チャンネル化・非線形応答・独立ノイズ源が SR デバイスを実現するために必要とされる。分子吸着 CNT では、CNT/有機分子の接点で発生する独立なノイズを利用することにより上記の要求をすべて満足する SR 素子が構築可能である。本論文では、PMo_{12} 分子を吸着させた CNT デバイスにおいて、実際に SR 効果を観測している。

以上のように、本論文は CNT を母体としたデバイス作製、さらに有機分子吸着時に発生する分子雑音の定量的評価、さらにはそれらの機能発現を利用した新規なデバイス試作を行うことで、あたらしい概念にもとづいた機能デバイス実現に向けての、基礎的且つ重要な情報を提供するものである。

よって本論文は博士論文として価値あるものと認める。