

## 科学研究費助成事業（科学研究費補助金）研究成果報告書

平成25年 5月31日現在

機関番号：12608

研究種目：基盤研究（A）

研究期間：2010～2012

課題番号：22246040

研究課題名（和文） シリコン量子ドットの精密位置制御と量子情報素子の作製

研究課題名（英文） Precise position control of silicon quantum dots and fabrication of quantum information devices.

研究代表者

小田 俊理（ODA SHUNRI）

東京工業大学・量子ナノエレクトロニクス研究センター・教授

研究者番号：50126314

研究成果の概要（和文）：ボトムアップ法とトップダウン法の結合により、ナノスケールのシリコン量子ドットデバイスを作製し、量子情報素子への応用を目指した研究を行った。ナノ結晶シリコンの粒径制御にはピエゾバルブが、表面酸化膜の制御にはラジカル窒化法が、3次元配列にはディップコーティング法が有効であることを明らかにした。多重結合量子ドットと単電子トランジスタ電荷検出素子を集積化したデバイスを作製し、量子ドット中の少数電荷を制御することに成功した。

研究成果の概要（英文）：

We have fabricated silicon-based quantum dot devices by the combination of bottom-up and top-down technologies and studied for the application of quantum information devices. It has been clarified that a piezo-valve, radical nitridation, and dip-coating methods are effective for controlling the size, the surface oxide layer, and integration of silicon nanocrystals, respectively. We have also fabricated a nanoscale devices integrated by coupled-quantum-dots and a charge sensor single-electron-transistor, and successfully controlled the number of a few electrons in the quantum dots.

交付決定額

（金額単位：円）

	直接経費	間接経費	合計
2010年度	19,700,000	5,910,000	25,610,000
2011年度	9,000,000	2,700,000	11,700,000
2012年度	8,800,000	2,640,000	11,440,000
年度			0
年度			0
総計	37,500,000	11,250,000	48,750,000

研究分野：工学

科研費の分科・細目：電気電子工学・電子・電気材料工学

キーワード：薄膜・量子構造

## 1. 研究開始当初の背景

トップダウン的微細加工による半導体研究開発は、ムーアの法則に従って着実に集積度の向上を進めてきた。その物理的限界に近づいた現在、大きな岐路に立たされてい

る。これに対して、申請者はボトムアップ型のシリコンテクノロジーとして、ナノ結晶シリコンの粒径と粒子間隔を原子スケールで制御した「ネオシリコン」を提唱し、その機能探索とデバイス応用の研究を進めてきた。

一方、量子計算を目指した研究では、多重量子ビットの集積化が可能な固体量子ビットの研究が盛んであるが、中でも GaAs 系化合物半導体量子ドット中の電子スピンを量子ビットに用いる研究の進展が著しい。95%の原子が核スピンを持たないシリコンの量子ドットを用いることで、電子スピンのコヒーレンス時間の向上が期待されるが、いまだ実現例はない。我々は多重量子ビット化に向けたシリコン量子ドットの開発を行い、その動作確認に成功している。さらに、緩和時間を長くしてスイッチ時間を短くすることにより計算回数を実用的に意味のある数千回程度にするためには、量子ビットの寸法を縮小する必要があるが、本研究で開発したボトムアップ技術によりナノスケールの量子ビットを形成する方法が、大変有望である。

## 2. 研究の目的

本研究の目的は、ナノシリコンドットに最適な精密配列制御技術を確立するとともに、形成された2次元規則配列ドット構造を利用して、ドット間の静電・量子力学的相互作用に基づくナノ量子情報処理デバイスを設計・試作・評価することにある。具体的に本研究の年限内には以下の点を明らかにする。ドット規則配列技術として、(1) ナノシリコンドットインクを用いたディップペンナノリソグラフィによる精密局所配列 (2) 堆積時 in-situ 制御による局所配列、等の手法から最適な技術を見出し、形成条件の最適化を図る。また、形成された2次元ドットアレイを利用した量子情報素子を設計・試作し、その基本素子特性を評価・解析する。

## 3. 研究の方法

まず、(1)「ナノシリコンドットインク開発」を行い、横毛管力等ナノ粒子に作用する物理を解明する。次に(2)「ディップペンナノリソグラフィ」によるパターンニングを行い、ドットの精密配列制御を目指す。インク作製にフィードバックを行い粒子濃度等の最適化を図る。並行して、現有の量子ドットデバイスを使用して(3)「低ノイズ低温測定系開発」を行う。次いで、(4)ラジカル生成装置を組み込むことにより「In-situ 表面処理・配列制御系開発」を行い精密配列制御を目指す。並行して(4)「高周波時間分解測定系開発」を行い、磁性体と高周波電圧を利用した(5)「ネオシリコン多重量子ビット」の実現を目指す。

## 4. 研究成果

- (1) ナノシリコンの粒径縮小を目的としてパルスガス供給に従来の空気作動バルブに変えてピエゾバルブを用いた結果、パル

スの立ち上がり時間を従来の100msから20msに短縮することにより粒径6nmを達成できた。ナノシリコンの配列制御には、ディップコーティング法に電気泳動法を組み合わせることで(図1)、ストライプ構造の発生を抑えた大面積で均一な単層膜の形成に成功した。

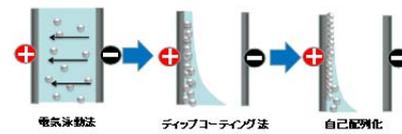


図1：電気泳動法を導入して自己配列。

- (2) 粒径10nmのナノ結晶シリコンを3次元的に堆積した薄膜の電気伝導特性を間隔20-200nmの電極パターンで調べた結果、ナノ結晶シリコンアレイの電子輸送特性は表面の自然酸化膜により制限されることが分かった。この自然酸化膜の形成を抑えるためにラジカル窒化法による極薄窒化膜の形成が有効であることが判明した(図2)。無水フッ酸蒸気を利用したエッチング法により、再酸化を抑えることに成功した。無水フッ酸を利用した場合にフッ素原子がシリコンに結合して再酸化を防止するというモデルを提案した。ナノ結晶シリコン集合体にレーザーアニール処理を施して、電子輸送特性と粒径の関係を調べた。

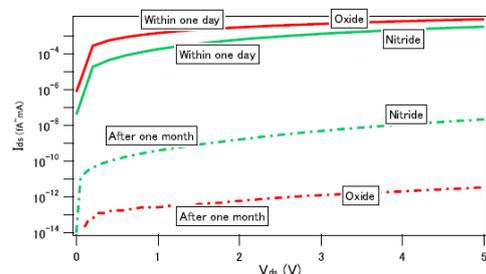


図2：ラジカル窒化法による電気特性経時変化の向上。

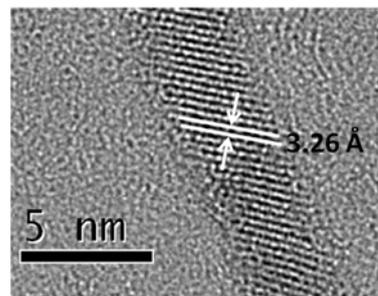


図3：直径3nm世界最小のGeナノワイヤ

- (3) Geナノワイヤの形成条件を調べて、金粒子触媒の大きさと成長温度を制御することにより直径3nmの世界最細ナノワイヤの形成を行った(図3)。また、Ge/Siコアシェルナノワイヤの形成に成功した。

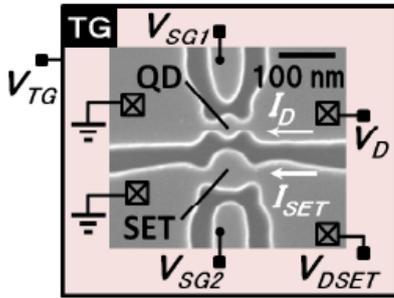


図4: 量子ドットと電荷検出 SET を集積

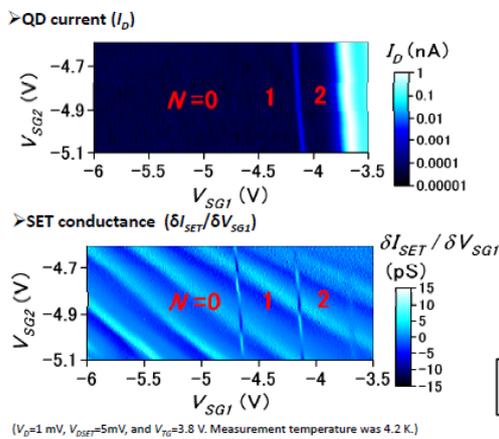


図5: 電荷検出 SET で小数電子状態を観測

- (4) SOI基板上に電子ビーム露光技術により2重または3重に結合したMOS型量子ドットと少数電荷検出用の単電子トランジスタを集積したデバイスを作製した(図4)。結合量子ドット中の電荷数を0個、1個、2個と制御することに成功した(図5)。また、スピン状態を制御するために微小磁石の設計を行い、スピンベースSiQubitを実現するための要素技術を確立した。電極間隔9nmのナノギャップ電極の作製技術を確立し、この間に1個のナノ結晶シリコンを配置したデバイスを作製した(図6)。クーロン振動や特異な磁場依存性の測定を行った。
- (5) スピンベースシリコン量子ビットのスピン緩和時間を明らかにする目的で高周波時間分解測定をケンブリッジ大学と共同研究を行い、2重結合電荷センサ集積デバイスの測定を行うと共に、高周波パルス測定系の構築を行った。

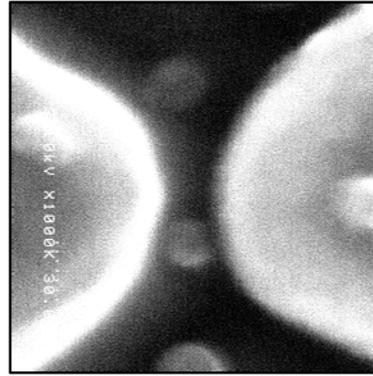


図6: ナノギャップ電極間に単一ドットを配置。

## 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 27 件)

1. Susoma Jannatul Ferdous, Yoshifumi Nakamine, Tetsuo Kodera, Koichi Usami, Yukio Kawano, Shunri Oda, Channel Length Scaling and Surface Nitridation of Silicon Nanocrystals for High Performance Electron Devices, Japanese Journal of Applied Physics, 査読有、52、2013、04CH08 (4 pages)、DOI: 10.7567/JJAP.52.04CH08
2. T. Kambara, T. Kodera, Y. Arakawa and Shunri Oda, Dual Function of Single Electron Transistor Coupled with Double Quantum Dot: Gating and Charge Sensing, Japanese Journal of Applied Physics, 査読有、52、2013、04CJ01 (4 pages)、DOI: 10.7567/JJAP.52.04CJ01
3. K. Takeda, T. Obata, Y. Fukuoka, W. M. Akhtar, J. Kamioka, T. Kodera, S. Oda, and S. Tarucha, Characterization and suppression of low-frequency noise in Si/SiGe quantum point contacts and quantum dots, Applied Physics Letters, 査読有、102、2013、123113 (3 pages)、DOI: 10.1063/1.4799287
4. Daichi Suzuki, Shunri Oda, and Yukio Kawano, GaAs/AlGaAs field-effect transistor for tunable terahertz detection and spectroscopy with built-in signal modulation, Applied Physics Letters, 査読有、102、2013、122102 (4 pages)、DOI: 10.1063/1.4798329
5. Ken Someno, Kouichi Usami, Tetsuo Kodera, Mutsuko Hatano, Shunri Oda, Photoluminescence of Nanocrystalline Silicon Quantum Dots with Various Sizes and Various Phosphorus Doping

- Concentrations prepared by Very High Frequency Plasma, Japanese Journal of Applied Physics, 査読有、51、2012、115202-1-4、  
DOI: 10.1143/JJAP.51.115202
6. G. Yamahata, T. Kodera, H. O. H. Churchill, K. Uchida, C. M. Marcus, and S. Oda, Magnetic field dependence of Pauli spin blockade: A window into the sources of spin relaxation in silicon quantum dots, Physical Review B, 査読有、86、2012、115322 (5 pages)、DOI: 10.1103/PhysRevB.86.115322
  7. K. Horibe, T. Kodera, T. Kambara, K. Uchida, and S. Oda, Key capacitive parameters for designing single-electron transistor charge sensors, Journal of Applied Physics, 査読有、111、2012、  
DOI: 10.1063/1.4711094
  8. T. Ferrus, A. Rossi, W. Lin, D. A. Williams, T. Kodera, and S. Oda, Localization effects in the tunnel barriers of phosphorus-doped silicon quantum dots, AIP Advances, 査読有、2、2012、022114 (9 pages)、  
DOI: 10.1063/1.4707165
  9. Jean Tarun, Shaoyun Huang, Yasuhiro Fukuma, Hiroshi Idzuchi, YoshiChika Otani, Naoki Fukata, Koji Ishibashi, and Shunri Oda, Temperature Evolution of Spin Polarized Electron Tunneling in Silicon Nanowire-Permalloy Lateral Spin Valve System, Applied Physics Express, 査読有、5、2012、045001 (3 pages)、  
DOI 10.1143/APEX.5.045001
  10. Muhammad A. Rafiq, Katsunori Masubuchi, Zahid A. K. Durrani, Alan Colli, Hiroshi Mizuta, William I. Milne, and Shunri Oda, High ON/OFF ratio and multimode transport in silicon nanochains field effect transistors, Applied Physics Letters, 査読有、100、2012、113108 (4 pages)、  
<http://link.aip.org/link/doi/10.1063/1.3694046>
  11. Muhammad Amin Sulthoni, Tetsuo Kodera, Yukio Kawano, and Shunri Oda, A Multi-Purpose Electrostatically Defined Silicon Quantum Dot Structure, Japanese Journal of Applied Physics, 査読有、51、2012、02BJ10 (4 pages)、  
DOI: 10.1143/JJAP.51.02BJ10
  12. M. A. Rafiq, Katsunori Masubuchi, Zahid A. K. Durrani, Alan Colli, Hiroshi Mizuta, William I. Milne, and Shunri Oda, Conduction Bottleneck in Silicon Nanochain Single Electron Transistors Operating at Room Temperature, Japanese Journal of Applied Physics, 査読有、51、2012、025202 (6 pages)、DOI: 10.1143/JJAP.51.025202
  13. Yoshifumi Nakamine, Tetsuo Kodera, Ken Uchida, and Shunri Oda, Removal of Surface Oxide Layer from Silicon Nanocrystals by Hydrogen Fluoride Vapor Etching, Japanese Journal of Applied Physics, 査読有、50、2011、115002 (4 pages)、  
DOI: 10.1143/JJAP.50.115002
  14. Marolop Simanullang, Koichi Usami, Tetsuo Kodera, Ken Uchida, Shunri Oda, Growth of Narrow and Straight Germanium Nanowires by Vapour-Liquid-Solid Chemical-Vapour-Deposition, Japanese Journal of Applied Physics, 査読有、50、2011、105002 (6 pages)、  
DOI: 10.1143/JJAP.50.105002
  15. Muhammad Amin Sulthoni, Tetsuo Kodera, Ken Uchida, and Shunri Oda, Numerical Simulation Study of Electrostatically Defined Silicon Double Quantum Dot Device, Journal of Applied Physics, 査読有、110、2011、054511 (4 pages)、  
<http://link.aip.org/link/doi/10.1063/1.3573991>
  16. C. B. Li, K. Usami, H. Mizuta, and S. Oda, Growth of Ge-Si nanowires heterostructure via chemical vapour deposition, Thin Solid Films, 査読有、519、2011、4174-4176、  
<http://dx.doi.org/10.1016/j.tsf.2011.02.005>
  17. Jean L. Tarun, Shaoyun Huang, Y. Fukuma, H. Idzuchi, Y. Otani, Naoki Fukata, Koji Ishibashi and Shunri Oda, Demonstration of spin valve effects in Silicon nanowires, Journal of Applied Physics, 査読有、109、2011、07C508 (3 pages)、  
<http://link.aip.org/link/doi/10.1063/1.3562904>
  18. Tomohiro Kambara, Tetsuo Kodera, Tsunaki Takahashi, Gento Yamahata, Ken Uchida, Shunri Oda, Simulation study of charge modulation in coupled quantum dots in silicon, Japanese Journal of Applied Physics, 査読有、50、

- 2011, 04DJ05 (4 pages), DOI: 10.1143/JJAP.50.04DJ05
19. Rossi, T. Ferrus, W. Lin, T. Kodera, D. A. Williams, and S. Oda, Detection of variable tunneling rates in silicon quantum dots, *Applied Physics Letters*, 査読有、98、2011、133506 (3 pages), <http://link.aip.org/link/doi/10.1063/1.3573991>
  20. Y. Nakamine, N. Inaba, T. Kodera, K. Uchida, R. N. Pereira, A. R. Stegner, M. S. Brandt, M. Stutzmann, and S. Oda, Size Reduction and Phosphorus Doping of Silicon Nanocrystals Prepared by a Very High Frequency Plasma Deposition System, *Japanese Journal of Applied Physics*, 査読有、50、2011、025002 (5 pages), DOI: 10.1143/JJAP.50.025002
  21. T. Ishikawa, H. Nikaido, K. Usami, K. Uchida, S. Oda, Fabrication of Nanosilicon Ink and Two-Dimensional Array of Nanocrystalline Silicon Quantum Dots, *Japanese Journal of Applied Physics*, 査読有、49、2010、125002 (4 pages), DOI: 10.1143/JJAP.49.125002
  22. B. Pruvost, K. Uchida, H. Mizuta, S. Oda, Design of New Logic Architectures utilizing Optimized Suspended-Gate Single-Electron Transistors, *IEEE Transactions on Nanotechnology*, 査読有、9(4)、2010、504 – 512, DOI:10.1109/TNANO.2009.2030502 pp.504 - 512
  23. J. Ogi, M. A. Ghiass, T. Kodera, Y. Tsuchiya, K. Uchida, S. Oda, and H. Mizuta, Suspended quantum dot fabrication on a heavily-doped silicon nanowire by suppressing unintentional quantum dot formation, *Japanese Journal of Applied Physics*, 査読有、49、2010、044001 (5 pages), DOI: 10.1143/JJAP.49.044001
  24. J. Ogi, T. Ferrus, T. Kodera, Y. Tsuchiya, K. Uchida, D. A. Williams, S. Oda, and H. Mizuta, Experimental observation of enhanced electron-phonon interaction in suspended Si double quantum dots, *Japanese Journal of Applied Physics*, 査読有、49、2010、045203 (5 pages), DOI: 10.1143/JJAP.49.045203
  25. T. Nagami, Y. Tsuchiya, K. Uchida, H. Mizuta, and S. Oda, Scaling Analysis of Nanoelectromechanical Memory Devices, *Japanese Journal of Applied Physics*, 査読有、49、2010、044304 (5 pages), DOI: 10.1143/JJAP.49.044304
  26. 小田俊理, シリコンナノ結晶の CVD 成長と新機能, *日本結晶成長学会誌*, 査読有、37(4)、2010、<http://ci.nii.ac.jp/naid/110008440731>
  27. C. B. Li, G. Yamahata, J.S. Xia, H. Mizuta, S. Oda and Y. Shiraki, Vertical coupled SiGe double quantum dot, *Electronics Letters*, 査読有、46(13)、2010、940-941, DOI: 10.1049/el.2010.0494
- [学会発表] (計 117 件)
1. 蒲原知宏, 小寺哲夫, 河野行雄, 小田俊理, 微小磁性体電極集積によるシリコン 2 重結合量子ドットへの 2 軸磁場印加、第 60 回応用物理学会春季学術講演会、2013 年 3 月 27 日、厚木市
  2. A. Boudraa, A. Seyhan, Y. Nakamine, Y. Ogawa, F. Minami, Y. Kawano and S. Oda, Surface Plasmon Enhanced Light Emission from Silicon Nanocrystals, *IEEE EDS WIMNACT-37*, 2013 年 2 月 18 日、東京
  3. Akhmadi Surawijaya, Tetsuo Kodera, Yukio Kawano, and Shunri Oda, High Density Vertical Silicon Nanowires for Photodetector Applications, *IEEE EDS WIMNACT-37*, 2013 年 2 月 18 日、東京
  4. Susoma Jannatul Ferdous, Nakamine Yoshifumi, Koichi Usami, Tetsuo Kodera, Yukio Kawano, Shunri Oda, Scaling of Channel Length for Highly Conductive Silicon Nanocrystal Films, *Solid State Devices and Materials Conference*, 2012 年 9 月 25 日、京都市
  5. Shunri Oda and Shaoyun Huang, Silicon nanocrystal memory, *Materials Research Society*, 2012 年 4 月 10 日、サンフランシスコ (米国)
  6. 小寺哲夫, 溝口来成, 林 久志堀部浩介, 蒲原知宏, 荒川泰彦, 小田俊理, 正三角形の頂点に配置したシリコン 3 重量子ドットの作製と特性評価、第 73 回応用物理学会学術講演会、2012 年 9 月 14 日、松山市
  7. K. Horibe, T. Kodera, T. Kambara, K. Uchida, S. Oda, Fabrication of few-electron silicon quantum dot devices based on an SOI substrate with a top gate contact, *G-COE PICE International Symposium and IEEE EDS Minicolloquium on Advanced*

- Hybrid Nano Devices: Prospects by World's Leading Scientists, P-11, 2011年10月4日、東京
8. Yoshifumi Nakamine, Ken Someno, Hiroki Nikaido, Masahiro Kouge, Tetsuo Kodera, Yukio Kawano, Ken Uchida, Mutsuko Hatano, and Shunri Oda, Evaluation of Electrical and Optical Property and High-Density Assembly of Nano-Crystalline Silicon Dot Array for Device Application, G-COE PICE International Symposium and IEEE EDS Minicolloquium on Advanced Hybrid Nano Devices: Prospects by World's Leading Scientists, 2011年10月4日、東京
  9. Yoshifumi Nakamine, Tetsuo Kodera, Ken Uchida, Mutsuko Hatano, and Shunri Oda, Electrical Property of Nano-Crystalline Silicon Thin-Films Prepared by Very High Frequency Plasma Deposition System, 24th International Conference on Amorphous and Nanocrystalline Semiconductors (ICANS 24), 2011年8月25日、奈良
  10. S. Oda, NeoSilicon Based Nano-electromechanical Devices, 18th International Conference on Mixed Design of Integrated Circuits and Systems, 2011年6月16-18日、Gliwice (ポーランド)
  11. Yoshifumi Nakamine, Mohammad R. T. Mofrad, Michiel van der Zwan, Johan van der Cingel, Tetsuo Kodera, Ken Uchida, Mutsuko Hatano, Ryoichi Ishihara, and Shunri Oda, Electrical Property of Nano-Crystalline Silicon Thin-Films Transistors Prepared by Very High Frequency Plasma Deposition System, IEEE Silicon Nanoelectronics Workshop, 2011年6月12日、京都
  12. Y. Nakamine, Michiel van der Zwan, Johan van der Cingel, Tetsuo Kodera, Ken Uchida, Ryoichi Ishihara and Shunri Oda, Laser Annealing of Silicon Nanocrystals Thin-films Prepared by VHF Plasma Deposition System, Materials Research Society, 2011年4月27日、サンフランシスコ(米国)
  13. S. Oda, "Scaled silicon NEM hybrid devices", Nano-Electro-Mechanical Devices for Integrated Sensing and Switching: Satellite workshop to

ESSDERC/ESSCIRC 2010, 2010年9月13-17日、Seville(スペイン)

14. T. Kodera, G. Yamahata, T. Kambara, K. Horibe, K. Uchida, C. M. Marcus and S. Oda, Spin-related tunneling in lithographically-defined silicon quantum dots, IEEE Silicon Nanoelectronics Workshop, 2010年、6月13-14日、Honolulu(米国)

[図書] (計 8件)

1. 小田俊理、量子ドットエレクトロニクスの最前線 (エヌ・ティー・エス)、Si量子ドットを用いた単電子トランジスタの研究、2011年、13頁
2. 小田俊理、ナノシリコンの最新技術と応用展開 (越田信義監修、シーエムシー出版)、プラズマ技術によるナノシリコンドットの作製、2010年、13頁

#### 6. 研究組織

##### (1) 研究代表者

小田 俊理 (ODA SHUNRI)

東京工業大学・量子ナノエレクトロニクス  
研究センター・教授

研究者番号：50126314

##### (2) 研究分担者

小寺 哲夫 (KODERA TETSUO)

東京工業大学・量子ナノエレクトロニクス  
研究センター・助教

研究者番号：00466856