

| |
|---|
| 研究種目： 基盤研究（C） |
| 研究期間： 2007～2009 |
| 課題番号： 19560338 |
| 研究課題名（和文） ナノギャップ電極を用いた単一 InAs 量子ドットの電子状態の解明と素子応用の探索 |
| 研究課題名（英文） Physics and application of single self-assembled InAs quantum dot transistors |
| 研究代表者 柴田 憲治（SHIBATA KENJI） 東京大学・生産技術研究所・助教 研究者番号： 00436578 |

研究成果の概要（和文）：

自己形成 InAs（インジウム砒素）量子ドットは、先端光学デバイスや量子情報処理への応用が期待されている。本研究では、極微ギャップを有する金属電極により単一の量子ドットにアクセスし、その電子状態の制御と読み出しを電気的に行う技術の開拓と新規物性の解明に従事した。その結果、電子を1個の単位で制御可能な単一電子トランジスタを形成することに成功した。更に、この素子においては、電子スピン相互作用やクーロン相互作用、電極材料の物性（超伝導や強磁性）などを巧みに用いることで、新たな機能を付加することができることを明らかにした。

研究成果の概要（英文）：

We have fabricated lateral electron tunneling structures by forming nanogap electrodes directly contacting single self-assembled InAs quantum dots (QDs) grown on GaAs surfaces. The fabricated junctions showed single electron tunneling behaviors and exhibited clear shell fillings. When quantum mechanical coupling between electrons in the QDs and the electrodes was strong, the Kondo effect was observed up to the very high temperature of $T_K \sim 80$ K.

Owing to the good compatibility of InAs QDs with metals, further functionalities can be added to the structure by using superconducting or ferromagnetic nanogap electrodes.

交付決定額

(金額単位：円)

| | 直接経費 | 間接経費 | 合計 |
|--------|-----------|-----------|-----------|
| 2007年度 | 2,100,000 | 630,000 | 2,730,000 |
| 2008年度 | 700,000 | 210,000 | 910,000 |
| 2009年度 | 700,000 | 210,000 | 910,000 |
| 年度 | | | |
| 年度 | | | |
| 総計 | 3,500,000 | 1,050,000 | 4,550,000 |

研究分野：工学

科研費の分科・細目：電気電子工学・電子デバイス・電子機器

キーワード：電子デバイス・集積回路、量子ドット

1. 研究開始当初の背景

「人工原子」とも呼ぶべき自己組織化 InAs 量子ドットは、これまで量子ドットレーザ、光増幅器など、量子ドットアンサンブルとしての応用が重点的に研究されてきたが、近年、量子情報処理技術への関心の高まりとともに、単一量子ドット内の電子状態や物性を巧みに利用した単一光子発生素子、単一光子検出素子、量子ビットなどが注目を集めている。

このような単一量子ドットを用いた素子の実現には、その電子状態を解明する必要があるが、これまでは比較的容易に測定ができる単一量子ドットの光学特性が主に研究されてきた。一方、量子ドットの電気的特性に関しては、電氣的に量子ドットにアクセスすることが困難であったため、走査プローブ顕微鏡や縦型トンネル構造を用いた数例の研究があるだけであった。

本研究グループでは、電子ビームリソグラフィ技術を駆使することにより、単一の 10 nm 級の自己組織化量子ドットの上から直接にコンタクトを形成することで、単一電子トランジスタの作製に成功した。さらに、この素子のトンネル伝導特性を計測し、解析することにより、量子ドット中の電子の殻構造や、電子のスピンに由来する特異な伝導現象（近藤効果）の存在についての知見を得ることに成功した。

2. 研究の目的

本研究では、電子をナノ構造制御する手法を拡張し、また、新規な物理現象を探索するために、単一の 10 nm 級の InAs 量子ドットに対して、その上から直接ナノギャップを有する極微細電極を形成して単一電子トランジスタ構造を作製し、電極構造やクーロン相互作用、電子スピン相互作用、テラヘルツ電磁波などを用いて、系の電子状態が多彩に制御できることを実証するとともに、新しい素子への応用を探索することを目的とする。

本研究では、以下の3点を目標として研究を遂行した。

(1) 単一量子ドット中の電子状態の解明と素子応用

(2) 単一量子ドットのテラヘルツ伝導ダイナミクスの解明とその応用

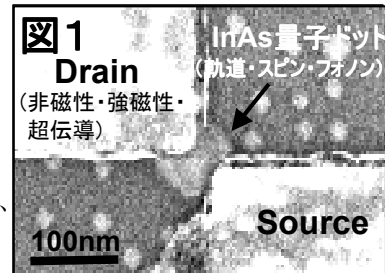
(3) 超伝導体・強磁性体電極を用いた新しいタイプの単一量子ドット素子の作製とその応用

3. 研究の方法

研究は、以下のような実験的手法によって行われた。まず、分子線エピタキシー法によ

り、最適な密度と大きさの量子ドットを GaAs 基板表面に成長し、その後、電子ビームリソグラフィによって、単一の量子ドットに非磁性、強磁性、超伝導体からなる極微細金属電極を形成した図1のような構造を作製する。この試料に対して、低温・強磁場環境下

での伝導特性評価を行うことによって、その電子状態を反映した特性を観測し、議論を行った。



4. 研究成果

本研究では、自己形成 InAs 量子ドットを介したトンネル伝導についての実験的な研究を行い、以下のような実績を上げた。

(1) 自己形成 InAs 量子ドット/ナノギャップ電極接合が、ドット中の電子数を正確に決定可能な単一電子トランジスタとして機能することを示した。また、この系において 30 meV 程度の大きな軌道量子化エネルギーと帯電エネルギーを観測した。さらに、InAs 量子ドット内に明瞭な殻構造が形成され、人工原子のように振る舞うことを見いだした (図2 参照)。

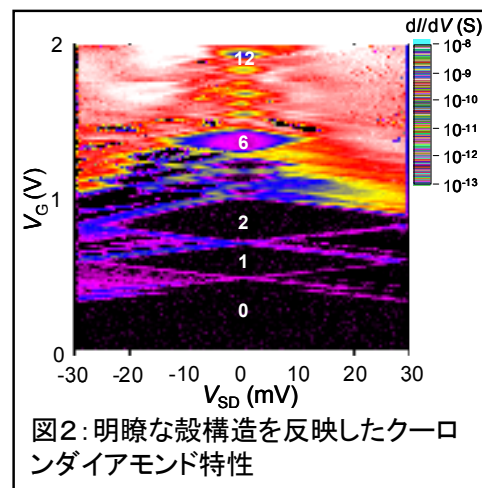


図2: 明瞭な殻構造を反映したクーロンドiamond特性

(2) この系において、 $|g| \sim 8$ 程度の大きな g 因子を観測した。さらに、電極と QD 中の電子との結合エネルギーを制御することで、多体スピン効果である近藤効果を人工的なナノ構造としては世界最高となる 80K まで観測することに成功した (図3 参照)。以上から、本素子においては、従来までの GaAs 系における 2次元電子系を用いた量子ドットに

比べて、スピン状態の操作が容易であることが明らかとなった。

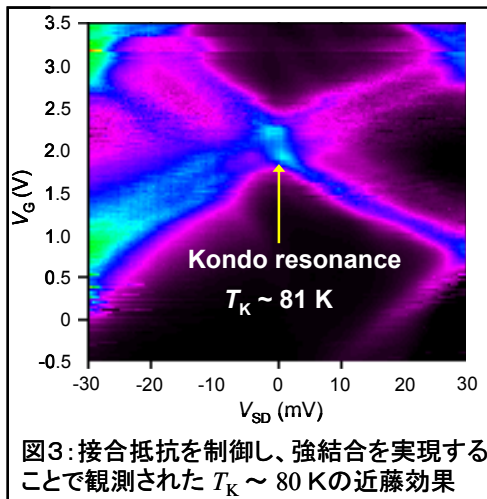


図3: 接合抵抗を制御し、強結合を実現することで観測された $T_K \sim 80$ Kの近藤効果

(3) 超伝導 (アルミニウム) 極微細電極を用いた超伝導体・量子ドット接合を作製し、量子ドットに超伝導電流を流すことに成功すると同時に、超伝導と近藤効果の競合現象を観測した (図4参照)。

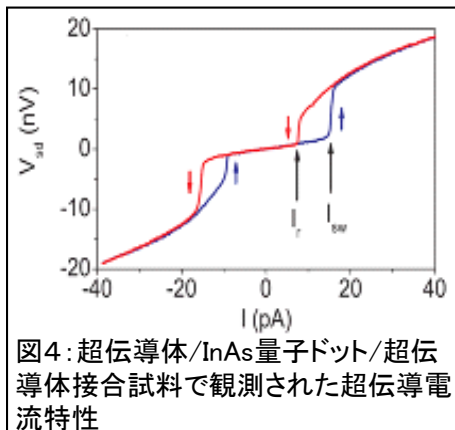


図4: 超伝導体/InAs量子ドット/超伝導体接合試料で観測された超伝導電流特性

(4) 強磁性 (ニッケル) 極微細電極を用いた試料を作製することで強磁性・量子ドット接合の作製に成功し、この系におけるトンネル磁気抵抗効果を観測すると同時に、試料がスピンバルブ素子として動作することを示した (図5参照)。

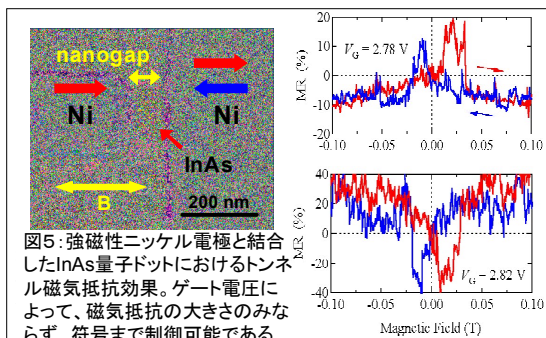


図5: 強磁性ニッケル電極と結合したInAs量子ドットにおけるトンネル磁気抵抗効果。ゲート電圧によって、磁気抵抗の大きさのみならず、符号まで制御可能である

(5) 試料作製の歩留まりの向上とナノ構造制御による新機能を実現すべく、量子ドットの位置・形状制御にも取り組み、走査プローブ顕微鏡による陽極酸化と分子線エピタキシーを組み合わせることで、これまでに直径が 80 nm 程度の位置制御された InAs 量子ドット配列の形成に成功した (図6 a参照)。この手法を応用することで、今後、任意の形状の InAs ナノ構造を任意の位置に形成することが可能になると期待される (図6 b参照)。

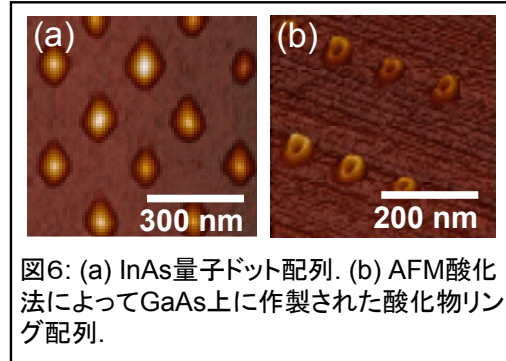


図6: (a) InAs量子ドット配列. (b) AFM酸化法によってGaAs上に作製された酸化物リング配列.

(6) 量子ドット内のキャリアのテラヘルツ (THz) ダイナミクスの観測に繋げるべく、可視光照射下の量子ドット素子の伝導特性の観測を行った。その結果、量子ドット接合の周囲を取り囲む多数の量子ドットにおける電子の充放電が、素子特性の安定性を著しく低下させることが判明した。THz 照射下においても同様の事態が予想されるため、今後、周囲の量子ドットを完全に排除などの対策がテラヘルツ伝導ダイナミクスの解明には必須であると考えられる。

上記のように、本研究では、他の研究グループに先駆けて採用した試料構造 (数十 nm 級の単一の自己組織化 InAs 量子ドットに対して、その上から直接ナノギャップを有する金属電極を作製する構造) を採用することで、超低消費電力デバイスである高機能単一電子トランジスタ (図2) や超伝導トランジスタ (図4)、単一電子スピンを用いた究極の不揮発メモリ素子である単一スピントランジスタ (図5) などの高機能デバイスを世界に先駆けて示した。このような研究は世界的に見ても他に例がない。更に、最近になって位置や形状が制御された量子ドット構造の形成にも成功したため、これまで困難であった素子特性の極めて高い歩留まりと再現性を確保し、高機能・低消費電力デバイス実現のための基盤技術が確立されたと考えられる。

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 23 件)

- (1) K. Shibata, M. Jung, K. M. Cha, and K. Hirakawa: “Control of tunnel coupling strength between InAs quantum dots and nanogap metallic electrodes through In-Ga Intermixing” *Physica E*, 査読有、(2010) in press (4 pages).
- (2) R. S. Deacon, Y. Tanaka, A. Oiwa, R. Sakano, K. Yoshida, K. Shibata, K. Hirakawa, and S. Tarucha: “Tunneling spectroscopy of Andreev energy levels in a quantum dot coupled to a superconductor” *Phys. Rev. Lett.*, 査読有、**104** (2010) 076805.
- (3) R. S. Deacon, Y. Tanaka, A. Oiwa, R. Sakano, K. Yoshida, K. Shibata, K. Hirakawa, and S. Tarucha: “Kondo-enhanced Andreev transport in single self-assembled InAs quantum dots contacted with normal and superconducting leads” *Phys. Rev. B*, 査読有、**81** (2010) 121308(R).
- (4) R. Moriya, H. Kobayashi, K. Shibata, S. Masubuchi, K. Hirakawa, S. Ishida, Y. Arakawa, T. Machida: “Fabrication of single-electron transistor composed of a self-assembled quantum dot and nanogap electrode by atomic force microscope local oxidation” *Appl. Phys. Express*, 査読有、**3** (2010) 035001.
- (5) R. S. Deacon, Y. Kanai, A. Oiwa, K. Yoshida, K. Shibata, K. Hirakawa, and S. Tarucha: “Proximity supercurrent in self assembled InAs quantum dots” *AIP Conference Proceedings Series*, 査読有、**1199** (2010) 275.
- (6) Y. Kanai, R. S. Deacon, K. Yoshida, K. Shibata, K. Hirakawa, A. Oiwa, and S. Tarucha: “Observation of supercurrent in single InAs self-assembled quantum dots coupled to superconducting leads” *Journal of Physics: Conference Series*, 査読有、**150** (2009) 022032.
- (7) K. Hamaya, M. Kitabatake, K. Shibata, M. Jung, S. Ishida, T. Taniyama, K. Hirakawa, Y. Arakawa, and T. Machida: “Spin-related current suppression in a semiconductor-quantum-dot-spin-diode structure” *Phys. Rev. Lett.*, 査読有、**102** (2009) 236806.
- (8) K. Shibata, M. Jung, K. M. Cha, M. Sotome, and K. Hirakawa: “Effect of In-Ga intermixing on the electronic states in self-assembled InAs quantum dots probed by nanogap electrodes” *Appl. Phys. Lett.*, 査読有、**94** (2009) 162107.
- (9) K. Shibata and K. Hirakawa: “The Kondo effect observed up to ($T_K \sim 80$ K) in self-assembled InAs quantum dots laterally coupled to nanogap electrodes” *Journal of Crystal Growth*, 査読有、**311** (2009) 1795-1798.
- (10) Y. M. Zhu, T. Unuma, K. Shibata, K. Hirakawa, Y. Ino, and Makoto Kuwata-Gonokami: “Power dissipation spectra and terahertz intervalley transfer gain in bulk GaAs under high electric fields” *Appl. Phys. Lett.*, 査読有、**93** (2008) 232102.
- (11) K. Hamaya, M. Kitabatake, K. Shibata, M. Jung, M. Kawamura, K. Hirakawa, T. Machida, T. Taniyama, S. Ishida, and Y. Arakawa: “Tunneling magnetoresistance effect in a few-electron quantum-dot spin valve” *Appl. Phys. Lett.*, 査読有、**93** (2008) 222107.
- (12) K. Shibata and K. Hirakawa: “High Kondo temperature ($T_K \sim 80$ K) in self-assembled InAs quantum dots laterally coupled to nanogap electrodes” *Appl. Phys. Lett.*, 査読有、**93** (2008) 062101.
- (13) Y. M. Zhu, T. Unuma, K. Shibata, and K. Hirakawa: “Femtosecond acceleration of electrons under very high electric fields in bulk GaAs investigated by time-domain terahertz spectroscopy” *Appl. Phys. Lett.*, 査読有、**93** (2008) 042116.
- (14) K. Shibata, M. Jung, C. Buizert, A. Oiwa, K. Hirakawa, T. Machida, and S. Tarucha: “Electron tunneling through single self-assembled InAs quantum dots coupled to nanogap electrodes” *Physica Status Solidi (c)*, 査読有、**5** (2008) 2869-2872.
- (15) K. Hamaya, M. Kitabatake, K. Shibata, M. Jung, M. Kawamura, S. Ishida, T. Taniyama, K. Hirakawa, Y. Arakawa, and T. Machida: “Oscillatory Changes in Tunneling Magnetoresistance effect in Semiconductor Quantum-Dot Spin Valves” *Phys. Rev. B*, 査読有、**77** (2008) 081302R.
- (16) K. Shibata, C. Buizert, A. Oiwa, K. Hirakawa, and S. Tarucha: “Electron transport through single self-assembled InAs quantum dots coupled to superconducting nanogap electrodes” *Physica Status Solidi (c)*, 査読有、**5** (2008) 178-181.
- (17) Y. M. Zhu, T. Unuma, K. Shibata, K.

Hirakawa, Y. Ino, and M. Kuwata-Gonokami: "Carrier Acceleration under Very High Fields in Bulk GaAs Investigated by Time-Domain Terahertz Spectroscopy" *Physica Status Solidi (c)*, 査読有、**5** (2008) 240-243.

(18) K. Hamaya, M. Kitabatake, K. Shibata, M. Jung, M. Kawamura, K. Hirakawa, T. Machida, T. Taniyama, S. Ishida, and Y. Arakawa: "Kondo effect in a semiconductor quantum dot coupled to ferromagnetic electrodes" *Appl. Phys. Lett.*, 査読有、**91** (2007) 232105.

(19) C. Buizert, A. Oiwa, K. Shibata, K. Hirakawa, and S. Tarucha: "Kondo universality for a quantum dot coupled to superconducting leads" *Phys. Rev. Lett.*, 査読有、**99** (2007) 136806.

(20) K. Shibata, C. Buizert, A. Oiwa, K. Hirakawa, and S. Tarucha: "Lateral electron tunneling through single self-assembled InAs quantum dots coupled to superconducting nanogap electrodes" *Appl. Phys. Lett.*, 査読有、**91** (2007) 112102.

(21) K. Hamaya, M. Kitabatake, K. Shibata, M. Jung, M. Kawamura, K. Hirakawa, T. Machida, T. Taniyama, S. Ishida, and Y. Arakawa: "Electric-field control of tunneling magnetoresistance effect in a Ni/InAs/Ni quantum-dot spin valve" *Appl. Phys. Lett.*, 査読有、**91** (2007) 022107 (3 pages).

(22) K. Hamaya, S. Masubuchi, M. Kawamura, T. Machida, M. Jung, K. Shibata, K. Hirakawa, T. Taniyama, S. Ishida and Y. Arakawa: "Spin transport through a single self-assembled InAs quantum dot with ferromagnetic leads" *Appl. Phys. Lett.*, 査読有、**90** (2007) 053108 (3 pages).

(23) K. Shibata, M. Jung, K. Hirakawa, T. Machida, S. Ishida, Y. Arakawa, and H. Sakaki: "Electronic properties of self-assembled InAs quantum dots on GaAs surfaces probed by lateral electron tunneling structures" *Journal of Crystal Growth*, 査読有、**301-302** (2007) 731-734.

[学会発表] (計 57 件)

口頭発表(国内 2 3 件、国際 1 6 件)

(1) 柴田憲治、堀内功、K. M. Cha、関享太、平川一彦: "ALD 法で成膜された HfO₂ をゲート絶縁膜とする単一自己組織化 InAs 量子ドットトランジスタの伝導特性"、第 5 7 回応用物理学会関係連合講演会、東海大学、神奈

川、3 月 2 0 日 ~ 2 3 日 (2010).

(2) K. Shibata, K. M. Cha, K. Seki, I. Horiuchi, and K. Hirakawa: "Control of tunnel coupling strength between self-assembled InAs quantum dots and metal electrodes by tuning In-Ga intermixing", International Symposium on Quantum Nanostructures and Spin-related Phenomena (QNSP), Komaba Campus, Univ. of Tokyo, Tokyo, Mar. 9-11 (2010).

(3) 柴田憲治、千葉茂生、平川一彦: "ナノギャップ電極と結合した単一自己組織化 InAs 量子ドットの光応答の観測"、第 7 0 回応用物理学会学術講演会、富山大学、富山、9 月 8 日 ~ 1 1 日 (2009).

(4) K. Shibata, K. M. Cha, K. Seki, and K. Hirakawa: "Control of tunneling transparency between self-assembled InAs quantum dots and metal electrodes by tuning In-Ga intermixing", International Symposium on Quantum Nanophotonics and Nanoelectronics (ISQNN2009), Komaba, Tokyo, Japan, Nov. 18-20 (2009).

(5) K. Shibata, M. Jung, K. Hirakawa, A. Oiwa, and S. Tarucha: "Control of tunneling coupling between self-assembled InAs quantum dots and metal electrodes by tuning In-Ga intermixing", the 36th International Symposium on Compound Semiconductors (ISCS2009), Santa Barbara, USA, Aug. 30-Sep. 2, (2009).

(6) K. Shibata, M. Jung, K. M. Cha, M. Sotome, and K. Hirakawa: "Spin-half Kondo effect up to 80 K in self-assembled InAs quantum dots coupled to nanogap electrodes", EDISON16, Montpellier, France, Aug. 24-28 (2009).

(7) 柴田憲治、M. Jung、K. M. Cha、関享太、平川一彦: "ナノギャップ電極と結合した単一自己組織化 InAs 量子ドットの電子状態の成長温度依存性"、第 5 6 回応用物理学関係連合講演会、筑波大学、茨城、3 月 3 0 日 (2009)

(8) K. Shibata and K. Hirakawa: "Very high Kondo temperature ($T_K \sim 80$ K) in single self-assembled InAs quantum dots coupled to metallic nanogap electrodes", APS Physics, March Meeting, Pittsburgh, PA, USA, Mar.16-20 (2009).

(9) K. Shibata and K. Hirakawa: "Very high kondo temperature ($T_K \sim 80$ K) in self-assembled InAs quantum dots laterally coupled to nanogap electrodes", IEEE Nanotechnology Materials and

Devices Conference 2008 (NMDC 2008), Kyoto University, Kyoto, Japan, Oct. 20-22 (2008).

(10) 柴田憲治, M. Jung, 平川一彦, 石田悟己, 荒川泰彦: "ナノギャップ電極と結合した自己組織化 InAs 量子ドットにおける高い近藤温度($T_K \sim 85$ K)の観測", 応用物理学会 日本大学 2008 年 3 月 30 日 (2008)

(11) 柴田憲治, C. Buizert, 大岩顕, 平川一彦, 樽茶清悟: "超伝導ナノギャップ電極と結合した単一自己組織化 InAs 量子ドットにおける電気伝導特性", 第 6 8 回応用物理学会学術講演会、北海道工業大学、北海道、9 月 5 日 (2007) .

ポスター発表(国内 1 件、国際 17 件)

(1) K. Shibata, S. Chiba and K. Hirakawa: "Charge sensitivity and stability of self-assembled InAs quantum dots coupled to nanogap metallic electrodes", International Symposium on Quantum Nanostructures and Spin-related Phenomena (QNSP), Komaba Campus, Univ. of Tokyo, Tokyo, Mar. 9-11 (2010).

(2) K. Shibata, K. Seki, K. M. Cha, I. Horiuchi, and K. Hirakawa: "Growth of self-assembled InAs quantum dots and their applications to single electron transistors", International Symposium on Quantum Nanostructures and Spin-related Phenomena (QNSP), Komaba Campus, Univ. of Tokyo, Tokyo, Mar. 9-11 (2010).

(3) K. Shibata, M. Jung, K. M. Cha, M. Sotome, and K. Hirakawa: "Control of tunnel coupling strength between InAs quantum dots and nanogap metallic electrodes through In-Ga intermixing", 14th International Conference on Modulated Semiconductor Structures (MSS-14), Kobe, Japan, Jul. 19-24 (2009).

(4) K. Hamaya, K. Shibata, K. Hirakawa, S. Ishida, Y. Arakawa, T. Machida: "Electron transport in a semiconductor-quantum-dot spin diode", the 18th International Conference on Electronic Properties of Two-Dimensional Systems (EP2DS18), Kobe, Japan, Jul. 19-24 (2009).

(5) 柴田憲治、梅野顕憲、車圭晚、吉田健治、坂田修一、関亨太、町田友樹、大岩顕、樽茶清悟、平川一彦: "ナノギャップ電極/単一ナノ量子系接合の物理と応用", ナノ量子情報エレクトロニクス公開シンポジウム、東京大学

駒場キャンパス、東京、4 月 22 日 (2009).

(6) K. Shibata, M. Jung, C. Buizert, K. Hamaya, A. Oiwa, T. Machida, S. Tarucha, and K. Hirakawa: "Physics and applications of single quantum dots coupled to metallic nanogap electrodes", University of Tokyo and UCSB Bilateral Workshop 2008 (GCOE), UCSB, Santa Barbara, USA, Sep.8-9 (2008).

(7) K. Shibata and K. Hirakawa: "The Kondo effect observed up to $T_K \sim 80$ K in self-assembled InAs quantum dots laterally coupled to nanogap electrodes", 15th International Conference on Molecular Beam Epitaxy (MBE2008), Vancouver, Canada, Aug.3-8 (2008).

(8) K. Shibata, M. Jung, C. Buizert, A. Oiwa, K. Hirakawa, T. Machida, and S. Tarucha: "Electron tunneling through single self-assembled InAs quantum dots coupled to nanogap electrodes", The 34th International Symposium on Compound Semiconductors (ISCS 2007), Kyoto, Japan, Oct. 15-18, (2007).

(9) K. Shibata, C. Buizert, A. Oiwa, K. Hirakawa, and S. Tarucha: "Electron transport through single self-assembled InAs quantum dots coupled to superconducting nanogap electrodes", 15th International Conference on Non-equilibrium Carrier Dynamics in Semiconductors (HCIS-15), Tokyo, Japan, July 23-27, (2007).

[その他]

ホームページ等

<http://thz.iis.u-tokyo.ac.jp/>

6. 研究組織

(1)研究代表者

柴田 憲治 (SHIBATA KENJI)

東京大学・生産技術研究所・助教

研究者番号：00436578

(2)研究分担者

平川 一彦 (HIRAKAWA KAZUHIKO)

東京大学・生産技術研究所・教授

研究者番号：10183097

(H20→H21：連携研究者)