

平成 26 年 5 月 27 日現在

機関番号：12601

研究種目：若手研究(A)

研究期間：2011～2013

課題番号：23681029

研究課題名(和文)量子ドットの位置・形状制御による高機能エレクトロニクス・フォトニクス素子の開拓

研究課題名(英文) Site- and shape-controlled growth of InAs quantum dots and their application to the electronics/photronics devices

研究代表者

柴田 憲治 (Shibata, Kenji)

東京大学・ナノ量子情報エレクトロニクス研究機構・特任講師

研究者番号：00436578

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 21,300,000円、(間接経費) 6,390,000円

研究成果の概要(和文)：単一の自己組織化量子ドットを用いた単一電子トランジスタ、単一光子発生器などの量子情報処理デバイスは、1つの電子や光子に情報機能を持たせるため、超低消費電力エレクトロニクスの有望な技術とされている。本研究では、(1)10 nm級InAs(インジウム砒素)量子ドットの位置・形状制御を実現することによって、単一量子ドット機能デバイス作製の歩留まりの飛躍的な改善を達成した。更に、(2)精密に制御された自己組織化InAs量子ドット構造の単一電子・スピン状態の解明を行った上で、(3)それらの物性を応用した超伝導トランジスタや、単一スピン操作素子、THz光エレクトロニクス素子などの例証実験を行った。

研究成果の概要(英文)：Electrical manipulation and read-out of quantum states in zero-dimensional nanostructures by nano-gap metal electrodes is expected to bring about innovation in quantum information processing.

In this study, the site- and shape-controlled InAs quantum dots (QDs) were successfully fabricated, which drastically improved the fabrication yield of the functional devices using single QDs. Then, a variety of remarkable properties of the InAs QD transistors were demonstrated, such as QD supercurrent transistors, electrically tunable large g-factors and spin-orbit interaction, and optical pumping of carriers in the terahertz frequency range. These works are opening a way for novel quantum information applications on self-assembled InAs QDs.

研究分野：複合新領域

科研費の分科・細目：ナノ・マイクロ科学、マイクロ・ナノデバイス

キーワード：量子ドットデバイス ナノ物性制御 テラヘルツ トランジスタ

### 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電子素子や、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。これら量子情報処理デバイスは、1つの電子や光子に情報機能を持たせるため、高機能であるだけでなく、超低消費電力エレクトロニクスという観点から、グリーンテクノロジーの有望な技術と言われ、近年盛んに研究が行われるようになった。

しかし、従来、自己組織化プロセスで成長される量子ドットは、その位置、密度、形状、量子力学的な結合などの制御が困難で、(1)量子ドットの位置がランダムなため、素子作製の歩留まりが 0.1~数%と極めて低く、再現性に乏しい、(2)活性層として用いるドット以外にも周辺に多くのドットが形成されてしまい、その充放電により素子特性が時間的に揺らぐ、などの問題があり、そのため素子の作製や応用は原理実証の域を出ていない状況にある。

研究開始当初、我々は原子間力顕微鏡 (AFM) を用いた陽極酸化と分子線エピタキシー (MBE) を組み合わせた結晶成長プロトコルを見直し、全体を通して基板表面の酸素濃度を低減することで、自己組織化 InAs 量子ドットの位置、形状、密度、ドット対の量子力学的な結合の強さなどを、従来にない高いレベルで極めて再現性よく、かつ精密に制御する方法をほぼ確立することに成功した。

### 2. 研究の目的

研究開始当初において、我々は位置・形状制御された量子ドット構造の形成と、その素子応用において、世界をリードできる状況にあった。よって本研究では、以下の3点を目指として、単一量子ドット構造を活性層とするデバイス構造の作製と、新規物性の開拓における確固たる優位性の確立を目指した研究を遂行した。

(1) 数十 nm 級の InAs 量子ドット構造の形成位置、密度、形状などの精密な制御

AFMによる陽極酸化と MBEを組み合わせることによって、位置、形状、密度、ドット対の量子力学的な結合の強さなどが精密に制御された数十 nm 級 InAs 量子ドット構造を、再現性よく形成するための基盤技術を確立し、単一量子ドット機能デバイス作製の歩留まりの飛躍的な改善を可能とする。

(2) 精密に制御された InAs 量子ドット構造の電子状態と新しい物性の解明

位置、形状、密度などが精密に制御された単一の量子ドットや量子ドット対などに対して、電気伝導特性や光学特性の評価を行い、

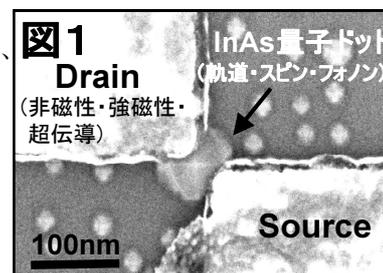
その特有のサイズ・形状を反映した電子状態と新規物性を解明する。これにより、量子ドット構造における、電子の g 因子や、軌道縮退、スピン軌道相互作用、スピン閉塞などの制御を可能とする。

(3) 単一量子ドット高機能電子デバイス・フォトニクスデバイスの実現

結合の強さを制御した量子ドット対によるスピンフィルタ素子や、フォトニック結晶と単一量子ドットの組み合わせによる高効率の単一光子発生器などの高機能な電子・フォトニクスデバイスを、高い再現性と歩留まりで実現し、量子ドット構造のデバイス応用に大きな革新をもたらす。

### 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、AFM による局所陽極酸化手法や、電子線リソグラフィーを用いて、半導体基板にナノ加工を施す。加工された半導体基板に対して、分子線エピタキシーによる InAs ナノ構造の結晶成長を行い、位置・形状が精密に制御された 10nm 級の InAs 量子ナノ構造を形成する。これに対して、電子ビームリソグラフィーを駆使して、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、自己組織化 InAs 量子ドット構造を介したトンネル伝導についての実験的な研究を行い、以下のような成果を上げた。

(1) イオン液体をゲート絶縁膜とする新しいゲート電圧の印加手法を世界に先駆けて量子ドット構造に適用することで、量子ドットトランジスタの電子状態を従来の 100 倍の効率で電界制御することに成功した (図2、K. Shibata et al., Nature Communications, vol. 4, pp. 2664 (2013)). 本研究により、10nm 級の自己組織化量子ドット構造の電子状態の制御性が飛躍的に向上し、その次世代素子応用に新たな展開が開かれると期待される。本研究成果は、プレスリリースされ、日本経済新聞や日刊工業新聞、化学工業日報などで報道された。

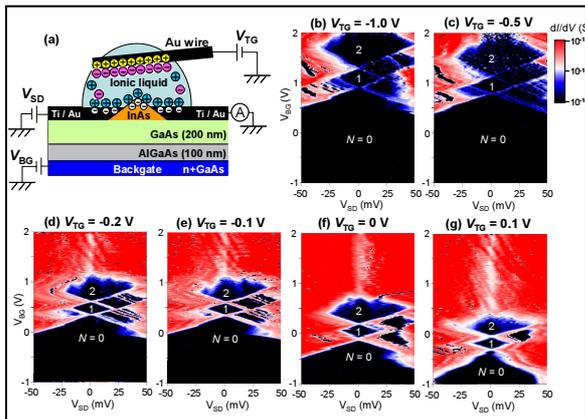


図2 (a)イオン液体を用いた電気二重層ゲートトランジスタ構造、(b)-(g)電気二重層トップゲートに様々な電圧を印加したときのバックゲートによるクーロン安定化ダイアグラム。

(2) 100 $\mu\text{m}$  程度の波長を有するテラヘルツ電磁波と、単一量子ドットとの相互作用をこれまでになく強くする技術を開発した。これにより、世界で初めて、10nm 級の量子ドット中の単一電子をテラヘルツ電磁波を用いて励起することに成功し、量子ドットトランジスタにおける電子の光アシストトンネル伝導を観測することに成功した。この成果により、テラヘルツ電磁波の量子情報への応用に道が拓かれた (図3、K. Shibata et al., Phys. Rev. Lett. Vol. 109, pp. 077401 (2012)、注目論文に選定)。

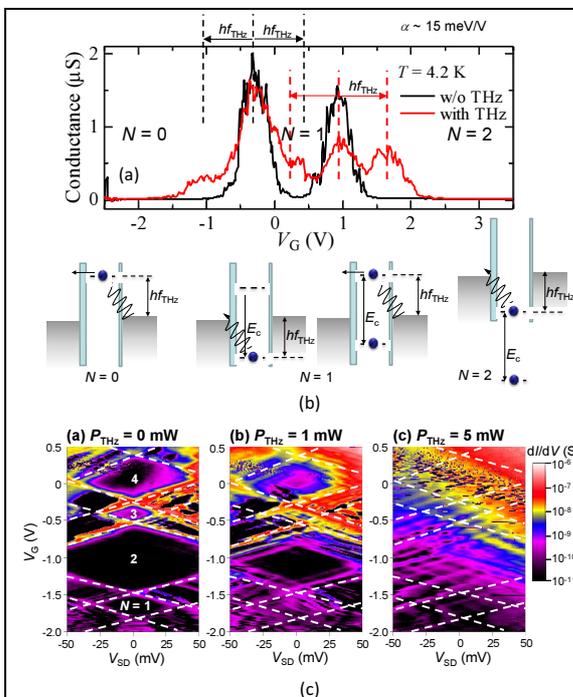


図3 (a)単一量子ドットトランジスタに2.5THzの電磁波を照射したときの線形コンダクタンススペクトル、(b)THz光支援トンネル過程、(c)THz強度を増していったときのクーロン安定化ダイアグラムの変化。

(3) 量子ドットにおける単一電子スピンのg因子が3次元の振る舞うと同時に大きく電界制御できることを示した。さらに、量子ドットにおけるスピン・軌道相互作用の大きさを電界制御する手法を世界に先駆けて示すことにも成功した。これらの成果は、ゼロ次元電子系である量子ドットにおける単一電子スピン状態の電界操作の可能性を初めて示すとともに、電子スピンを基礎とした量子情報所への応用に対して、本素子が有用であることを示すものである (図4、Y. Kanai, R.S. Deacon, A. Oiwa, K. Shibata et al., Nature Nanotechnology vol. 6, pp. 511 (2011) など)。

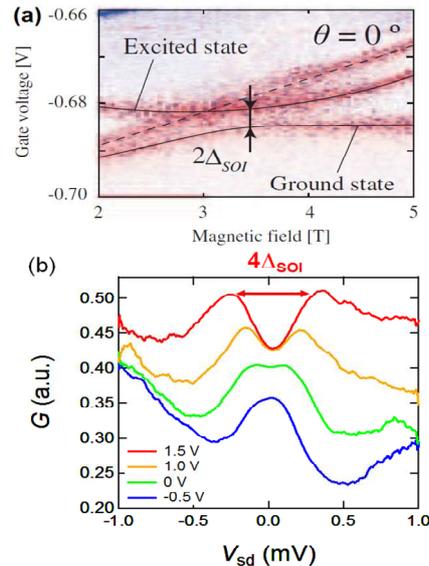


図4 (a)InAs量子ドットにおける励起状態スペクトルの磁場依存性。基底状態遷移磁場で反交差が観測される。その反交差の大きさがスピン軌道相互作用エネルギー $2\Delta_{SOI}$ である。(b)異なるサイドゲートで測定した近藤ゼロバイアス異常の分裂。分裂幅がスピン軌道相互作用エネルギーに相当し、サイドゲート電圧に依存してスピン軌道相互作用エネルギーが変化している。

(4) 位置・形状制御量子ドットを形成するためには、結晶成長前に、パターン基板への酸化物の混入量を極限まで抑えると同時に、基板表面を清浄に保つ必要がある。本研究では、基板の微細加工、洗浄過程での基板への酸化物の混入量を評価し、それを極限まで低減する手法を開発した。更に、位置制御量子ドットの成長メカニズムを解明することで、高品質の量子ドット構造を形成することを可能にした。その結果、世界で初めて、位置制御した単一自己組織化量子ドットを用いた単一電子トランジスタの作製に成功した。本成果は、10nm 級の量子ドット構造を用いた電子素子作製の歩留まりを飛躍的に向上させるものである (図5、図6、K.M. Cha, K. Shibata et al., Appl. Phys. Lett. vol. 110, pp. 223115 (2012)など)。

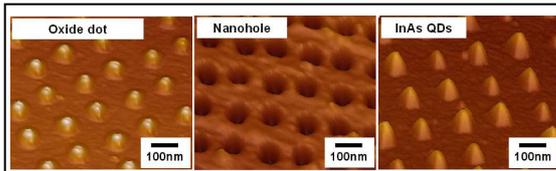


図5 (左) AFM 陽極酸化を用いて GaAs 基板表面上に形成した酸化ドット、(中央) 酸化ドットをウェットエッチングした状態、(右) 位置制御された量子ドット列

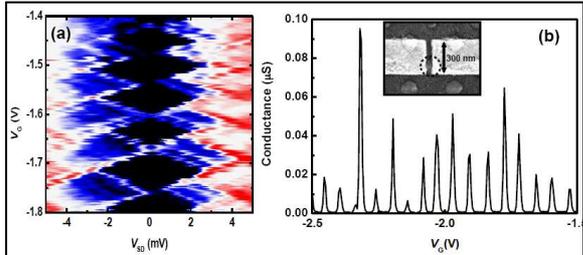


図6 位置制御された InAs 量子ドットを用いた単一量子ドットトランジスタのクーロン安定化ダイアグラム(a)とクーロン振動(b)。挿入図は試料の SEM 像。

(5) 単一の InAs 量子ドットに対して、超伝導体からなるナノギャップ微細電極で電気的にアクセスし、極低温に冷却することで、超伝導トランジスタを作製した。更に、量子ドット中の軌道準位を電界制御することで、超伝導電極と結合した量子ドットにおける超伝導電流の振る舞いの起源を明らかにするとともに、超伝導電流を制御することに成功した (図7、Y. Kanai, R.S. Deacon, A. Oiwa, K. Shibata et al., Appl. Phys. Lett. vol.100, pp.202109 (2012))。

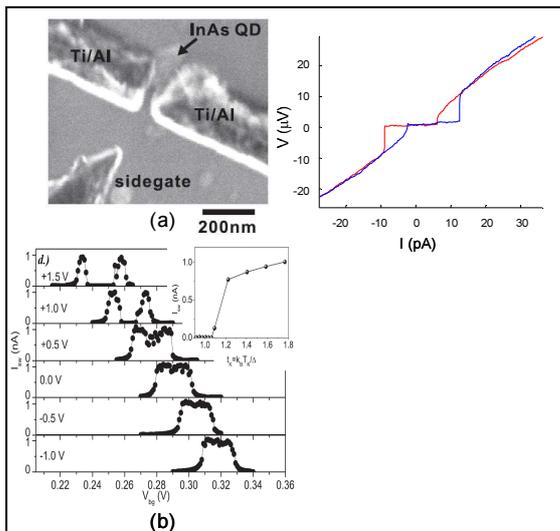


図7 (a)試料の電子顕微鏡写真(左)と極低温での超伝導電流特性。(b)奇数電子領域で電流駆動4端子法により測定した臨界電流( $I_{sw}$ )のサイドゲート電圧依存性。挿入図は相関パラメータ  $k_B T_K / \Delta$  に対する  $I_{sw}$  のプロット。

(6) GaAs(211)B 基板に InAs を堆積することで、細長く伸びた量子ドット構造である量子ダッシュと呼ばれる新しいナノ構造を形成し、これを単一電子トランジスタへと応用した。その結果、量子ドットとは異なる異方性を反映したシェル構造を観測するとともに、大きな電子の g 因子やスピン軌道相互作用を反映する g 因子の軌道依存性を観測した (K. Shibata et al., Appl. Phys. Lett. vol. 99 (2011) pp. 182104、K. Shibata et al., Appl. Phys. Express vol. 7, (2014) pp. 045001)。

## 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16件)

(1) K. Shibata, N. Pascher, P. J. J. Luukko, E. Rasanen, S. Schnez, T. Ihn, K. Ensslin, and K. Hirakawa "Electron magneto-tunneling through single self-assembled InAs quantum dashes" Appl. Phys. Express vol. 7, (2014) pp. 045001  
査読有 DOI: <http://dx.doi.org/10.7567/APEX.7.045001>

(2) K. Shibata and K. Hirakawa "Terahertz photon-assisted tunneling in InAs quantum dots" Journal of Infrared, Millimeter, and Terahertz Waves, vol. 35, (2014) pp. 101-109, (Invited paper)  
査読有 DOI: 10.1007/s10762-013-0039-7.

(3) K. Shibata, H. T. Yuan, Y. Iwasa, and K. Hirakawa "Large modulation of zero-dimensional electronic states in quantum dots by electric-double-layer gating" Nature Communications vol. 4, (2013) pp. 2664.  
査読有 DOI: 10.1038/ncomms3664.

(4) S. Takahashi, R. S. Deacon, A. Oiwa, K. Shibata, K. Hirakawa, S. Tarucha "Electrically tunable three-dimensional g-factor anisotropy in single InAs self-assembled quantum dots" Phys Rev. B vol. 87, (2013) pp. 161302.  
査読有 DOI: 10.1103/PhysRevB.87.161302.

(5) K. M. Cha, K. Shibata, and K. Hirakawa "Single electron transport through site-controlled InAs quantum dots" Appl. Phys. Lett. vol. 110, (2012) pp. 223115.  
査読有 DOI: 10.1063/1.4769039.

(6) K. Shibata, A. Umeno, K. M. Cha, and K. Hirakawa "Photon assisted tunneling through self-assembled InAs quantum dots in the terahertz frequency regime" Phys. Rev. Lett. vol. 109 (2012) pp. 077401.

(Editors' suggestions)

査読有 DOI: 10.1103/PhysRevLett.109.077401.

(7) K. M. Cha, I. Horiuchi, K. Shibata, and K. Hirakawa “Size-limiting effect of site-controlled InAs quantum dots grown at high temperatures by molecular beam epitaxy”

Appl. Phys. Express vol. 5, (2012) pp. 085501.  
査読有 DOI: 10.1143/APEX.5.085501.

(8) Y. Kanai, R. S. Deacon, A. Oiwa, K. Yoshida, K. Shibata, K. Hirakawa, and S. Tarucha

“Control of supercurrent in a self-assembled InAs quantum dot Josephson junction by electrical tuning of level overlaps”

Appl. Phys. Lett. vol. 100, (2012) pp. 202109.  
査読有 DOI: 10.1063/1.4719072.

(9) K. Shibata, K. Seki, K. M. Cha, I. Horiuchi, and K. Hirakawa “Growth of self-assembled InAs quantum dashes and their applications to single electron transistors”

AIP conference proceeding series vol. 1399, (2011) pp.273. 査読有 DOI: 10.1063/1.3666359.

(10) K. M. Cha, K. Shibata, I. Horiuchi, M. Kamiko, R. Yamamoto, and K. Hirakawa “Chemical composition and thermal stability of AFM anodic oxides as nanomasks for site-controlled InAs QDs”

AIP conference proceeding series vol. 1399, (2011) pp.239. 査読有 DOI: 10.1063/1.3666343.

(11) S. Kim, R. Ishiguro, M. Kamio, Y. Doda, E. Watanabe, D. Tsuya, K. Shibata, K. Hirakawa, and H. Takayanagi “Side-gate controlled electrical properties of superconducting quantum interference device coupled with self-assembled InAs quantum dot”

AIP conference proceeding series vol. 1399, (2011) pp.383. 査読有 DOI: 10.1063/1.3666414.

(12) Y. Kanai, R. S. Deacon, S. Takahashi, A. Oiwa, K. Yoshida, K. Shibata, Y. Tokura, K. Hirakawa, and S. Tarucha “Spin - orbit interaction detection using Kondo effect in single self - assembled InAs quantum dots”

AIP conference proceeding series vol. 1399, (2011) pp.355. 査読有 DOI: 10.1063/1.3666400.

(13) K. M. Cha, K. Shibata, M. Kamiko, R. Yamamoto, and K. Hirakawa “Chemical composition and thermal stability of atomic force microscope-assisted anodic oxides as nanomasks for molecular beam epitaxy”

Jpn. J. Appl. Phys. vol. 50, (2011) pp. 120205.  
査読有 DOI: 10.1143/JJAP.50.120205.

(14) K. Shibata, K. Seki, P. J. J. Luukko, E. Rasanen, K. M. Cha, I. Horiuchi, and K.

Hirakawa “Electronic structures in single self-assembled InAs quantum dashes detected by nanogap metal electrodes”

Appl. Phys. Lett. vol. 99, (2011) pp. 182104.

査読有 DOI: 10.1063/1.3659479.

(15) Y. Kanai, R. S. Deacon, S. Takahashi, A. Oiwa, K. Yoshida, K. Shibata, K. Hirakawa, Y. Tokura and S. Tarucha “Electrically tuned spin-orbit interaction in an InAs self-assembled quantum dot”

Nature Nanotech. vol. 6, (2011) pp. 511.

査読有 DOI: 10.1038/NNANO.2011.103.

(16) R. S. Deacon, Y. Kanai, S. Takahashi, A. Oiwa, K. Yoshida, K. Shibata, K. Hirakawa, Y. Tokura, and S. Tarucha “Electrically tuned g tensor in an InAs self-assembled quantum dot”

Phys. Rev. B vol. 84, (2011) pp. 041302R.

査読有 DOI: 10.1103/PhysRevB.84.041302.

[学会発表] (計 17 件)

(1) Y. Zhang, K. Shibata, N. Nagai, C. Ndebeka-Bandou, and K. Hirakawa “Terahertz inter-sublevel transitions in single self-assembled InAs quantum dots”

International Symposium on Advanced Nanodevices and Nanotechnology (ISANN2013), Kauai, USA, December 12, 2013

(Oral presentation)

(2) 柴田憲治, Hongtao Yuan, 岩佐義宏, 平川一彦 「電気二重層ゲートを用いた単一 InAs 量子ドットの電子状態の変調」

日本物理学会、徳島大学、2013 年 9 月 27 日 (口頭発表)

(3) 柴田憲治, Hongtao Yuan, 岩佐義宏, 平川一彦 「電気二重層ゲートによる単一量子ドットトランジスタの伝導特性の変調」

応用物理学会 同志社大学京田辺キャンパス 2013 年 9 月 17 日 (口頭発表)

(4) K. Shibata and K. Hirakawa “Photon-assisted tunneling through InAs quantum dots in the terahertz frequency range”

The 18th International Conference on Electron Dynamics in Semiconductors, Optoelectronics and Nanostructures (EDISON18), July 22, 2013, Matsue, Japan (Invited presentation)

(5) K. Shibata, H.T. Yuan, Y. Iwasa and K. Hirakawa “Very large modulation of electron tunneling through InAs quantum dots by electric-double-layer gating”

The 18th International Conference on Electron Dynamics in Semiconductors, Optoelectronics and Nanostructures (EDISON18), July 25, 2013,

Matsue, Japan (Oral presentation)

(6) K. Shibata, H.T. Yuan, Y. Iwasa and K. Hirakawa

“Large modulation of electronic states in InAs quantum dots by electric-double-layer gating”  
16th International Conference on Modulated Semiconductor Structures (MSS-16) July 1-5, 2013, Wroclaw, Poland (Poster presentation)

(7) K. Shibata and K. Hirakawa “Photon-assisted tunneling through self-assembled InAs quantum dots in the Terahertz frequency range”

The 40th International Symposium on Compound Semiconductors (ISCS2013), May 23, 2013, Kobe, Japan (Oral presentation)

(8) 柴田憲治, Hongtao Yuan, 岩佐義宏, 平川一彦 「電気二重層ゲートによる InAs 量子ドットの電子状態の変調」

応用物理学学会 神奈川工科大学 2013年3月28日 (口頭発表)

(9) K. Shibata and K. Hirakawa “Terahertz photon-assisted tunneling in single InAs quantum dot transistors”

International Symposium on Frontiers in THz Technology (FTT 2012), November 27-29, 2012, Nara, Japan (poster presentation)

(10) K. Shibata “Terahertz photon-assisted tunneling in self-assembled InAs quantum dots”

Nano Science & Technologies 2012 (Nano-S&T 2012), October 26-28, 2012, Qingdao, China (Invited presentation)

(11) 柴田憲治, 張亜, K. M. Cha, 長井奈緒美, 平川一彦 「InAs 量子ドットトランジスタにおける THz 光アシストトンネル」

応用物理学学会 愛媛大学・松山大学 2012年9月11日 (口頭発表)

(12) K. Shibata, A. Umeno, K. M. Cha, and K. Hirakawa “Terahertz photon-assisted tunneling in self-assembled InAs quantum dots”

31st international conference on the physics of semiconductors (ICPS2012), July 29 -August 2, 2012, Zurich, Switzerland (Oral presentation)

(13) K. Shibata, N. Pascher, P. J. J. Luukko, E. Rasanen, S. Schnez, T. Ihn, K. Ensslin, and K. Hirakawa “Magneto-electron tunneling through single self-assembled InAs quantum dashes coupled to ferromagnetic leads”

International conference on superlattices, nanostructures and nanodevices (ICSNN2012), July 23-26, 2012, Dresden, Germany (Invited presentation)

(14) 柴田憲治, 梅野顕憲, Kyu Man Cha, 平

川一彦 「単一自己組織化 InAs 量子ドットにおける THz 光アシストトンネル」

応用物理学学会 早稲田大学 2012年3月17日 (口頭発表)

(15) K. Shibata, N. Pascher, P. J. J. Luukko, K. Seki, E. Rasanen, S. Schnez, T. Ihn, K. Ensslin, and K. Hirakawa “Electronic structures in single self-assembled InAs quantum dashes coupled to metal nanogap electrodes”

International Symposium on Advanced Nanostructures and Nano-Devices (ISANN2011) December 4 - 9, 2011, Hawaii, USA (Poster presentation)

(16) 柴田憲治, N. Pascher, 関享太, S. Schnez, T. Ihn, K. Ensslin, 平川一彦 「単一自己組織化 InAs 量子ダッシュトランジスタの磁場中伝導特性」

応用物理学学会 山形大学 2011年9月2日 (口頭発表)

(17) K. Shibata, N. Pascher, K. Seki, S. Schnez, T. Ihn, K. Ensslin, and K. Hirakawa “Electronic structure of self-assembled InAs quantum dashes detected by nanogap electrodes”

15th International Conference on Modulated Semiconductor Structures (MSS15) July 25-29, 2011, Tallahassee, USA (Poster presentation)

[図書] (計 0 件)

[産業財産権]

○出願状況 (計 0 件)

○取得状況 (計 0 件)

[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・ナノ量子情報エレクトロニクス  
研究機構・特任講師

研究者番号：00436578