

科学研究費助成事業 研究成果報告書

平成 28 年 6 月 7 日現在

機関番号：12601

研究種目：基盤研究(A) (一般)

研究期間：2013～2015

課題番号：25246004

研究課題名(和文)位置制御シングルモード量子ドット・量子リングの伝導制御とその応用

研究課題名(英文) Electron transport through site-controlled single quantum dots/rings and its applications

研究代表者

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

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 35,300,000円

研究成果の概要(和文)：自己組織化InAs量子ドット中では、軌道間の量子化エネルギー差や帯電エネルギーが、テラヘルツの光子エネルギーに相当する。しかし、一般にテラヘルツ電磁波の波長に比べ、量子ドットのサイズが非常に小さいため、通常のテラヘルツ透過測定では単一量子ドットの信号を得ることは不可能である。本研究では、ソース・ドレイン電極をアンテナとして用いて、テラヘルツ電磁波を単一量子ドットに集光し、さらに同じ電極を用いて量子ドットを流れるテラヘルツ誘起光電流を計測することにより、量子ドットのサブレベル間エネルギーや帯電エネルギーなど、重要な電子状態のパラメータを決定することができた。

研究成果の概要(英文)：The orbital quantization energies and electron energies in self-assembled InAs quantum dots lie in the energy range of terahertz photons. However, since the quantum dots are by far smaller than the terahertz wavelength, the conventional terahertz transmission spectroscopy cannot obtain signals from the quantum dots. In this work, we have developed a novel spectroscopy technique for single quantum dots; we have tightly focused terahertz radiation on a single quantum dot by using the source/drain electrodes of the single quantum dot transistor structure as a terahertz antenna and measured terahertz-induced photocurrent through the quantum dot. From such measurements, we have determined important parameters on the electronic structures of the quantum dots, such as orbital quantization energies and electron charging energies.

研究分野：量子半導体エレクトロニクス

キーワード：量子ドット テラヘルツ 単一電子トランジスタ ナノ構造

1. 研究開始当初の背景

1990年代から現在に至るまで、top-down的な超微細加工により作製した100 nmオーダーのメゾスコピック構造は、電子波干渉や単一電子トンネル現象など、非常に豊かな物理を明らかにしてきた。しかし、これらのメゾスコピック構造は少数の例を除いて、その中に電子準位が多数含まれる多モード構造である。従って、観測される電子波干渉効果が抵抗に与える変化もせいぜい数%オーダーの極めて小さなものであり、1 K以下の極低温でしか観測できなかった。

一方、近年、bottom-up的なナノ構造の作製と物性の理解にはめざましいものがある。例えば、自己組織化量子ドットは、数十 meV オーダーの大きな軌道量子化エネルギーの分裂を有し、良好なゼロ次元電子系として振る舞うことが確認され、単一光子発生源などにも応用されている。

自己組織化 InAs 量子ドットや量子リングのように電子準位が1モード(またはごく少数のモード)しか含まないような極限ナノ領域では、その物理が量子力学に支配され、非常に理想的で制御性のよいものになるであろう。従って、bottom-up的な極限ナノ構造を作製し、電極から電子を注入し伝導を制御できれば、次世代のエレクトロニクスに新しい局面を拓くことができる。

2. 研究の目的

電子準位が1モード(またはごく少数のモード)しか含まれないような極限ナノ領域では、その物理が量子力学に支配され、非常に理想的で制御性のよいものになることが期待される。従って、極限ナノ構造を作製し、ゲート電界、磁場、THz電磁波、電子注入などの入力により、その伝導を制御できれば、次世代のエレクトロニクスに新しい局面を拓くことができる。本研究では、位置と形状を制御した極微小自己組織化単一 InAs 量子ドット・結合量子ドット、および量子リング構造にナノギャップ電極により電氣的にアクセスし、そ

の量子伝導特性を明らかにするとともに、スピントロニクス、量子情報処理技術への応用に展開する。

3. 研究の方法

当初の計画では、AFM陽極酸化や電子ビーム露光法などを用いた位置制御量子ドットや量子リングの作製を研究項目に挙げ、その電子状態の解明や応用について研究する予定であった。

しかし、プロセスで不可避的に導入される結晶欠陥のために、電荷のトラッピング・デトラッピングによる信号揺らぎが大きく、有意義な成果が得られないと判断し、位置制御ドットの作製は中止した。

そこで、単一量子ドットトランジスタ構造を用いて個々の量子ドットの電子状態を制御するとともに、テラヘルツ電磁波を用いて電子状態や伝導ダイナミクスを解明する方向に目的をシフトさせた。

4. 研究成果

(1)イオン液体を用いた量子ドット中の電子状態の制御

我々は、単一の量子ドットに金属電極を形成し、単一量子ドットトランジスタ構造とすることにより、量子ドットの電子状態の解明やデバイス応用の研究を行っている。通常量子ドットトランジスタ構造では、基板をゲートに用いて量子ドット内の電子数を制御してきたが、少数電子領域から多電子領域まで電子数を広く制御することはできなかった。

近年、イオン液体ゲートを用いて、固体表面に電気二重層を誘起し、電子数を非常に広い範囲で制御する研究が行われている。本研究では、イオン液体(DEME-TFSI)を量子ドット表面に塗布し、巨大な電界を印加することにより、単一量子ドットトランジスタ構造中の制御を試みた。その結果、電気二重層ゲートを0.5 V程度変化させるだけで

も、トランジスタの伝導特性大きく変化することがわかった。この振る舞いを詳しく調べた結果、電子の閉じ込めサイズ(電子の軌道量子化エネルギー、帯電エネルギー)が、電圧によって劇的に変化していることが明らかになった。電圧によって自己形成量子ドット中の電子の閉じ込めを大幅に変化させたのは、これが初めてである。

さらに、従来用いられてきたゲート電圧印加手法(サイドゲート、トップゲート、バックゲート)に比べて、イオン液体を用いた電気二重層ゲートでは、単一量子ドットトランジスタで最も一般的なサイドゲート型と比較して 100 倍も大きな電子エネルギー変化を引き起こすことがわかった。

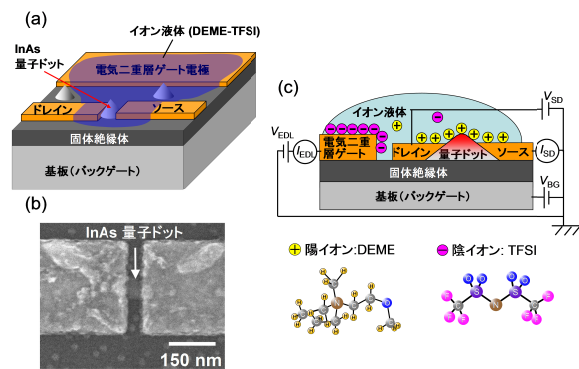


図1 (a)単一 InAs 量子ドットを用いた電気二重層トランジスタの模式図、(b) ナノギャップ金属電極と電氣的に接触した単一 InAs 量子ドットの電子顕微鏡写真、(c) 電気二重層ゲートによる、量子ドットの電子状態の制御を示す模式図。

(2)単一自己組織化 InAs 量子ドットのサブレベル間遷移の観測

自己組織化 InAs 量子ドットにおいては、強い電子閉じ込めと小さな有効質量を反映して、軌道間の量子化エネルギー差 ΔE と帯電エネルギー E_C が約 10-30 meV と大きく、テラヘルツ (THz) 領域の光子エネルギーに相当する。しかし、一般に、量子ドットのサイズと THz 電磁波の波長が大きく異なるため、相互作用は非常に小さく、通常の透過測定では量子ドットのサブレベル間遷移の

信号を得ることは不可能である。

本研究では、単一量子ドットトランジスタのナノギャップ電極をアンテナとして用いて、THz 電磁波を単一量子ドットに集光するとともに、試料自体を THz 検出器として用いることにより、量子ドット内の電子状態を明らかにすることを目的として研究を行った。

ゲート電圧とソース・ドレイン電圧の関数として THz 電磁波で誘起される光電流を測定した結果、図2に示すような2種類の光電流生成機構があることが明らかになった。図からわかるように、励起準位が電極のフェルミ準位以下に位置するときでも、 $N \leftrightarrow N+1$ 励起過程と呼ぶプロセスで光電流が発生することは注目される。

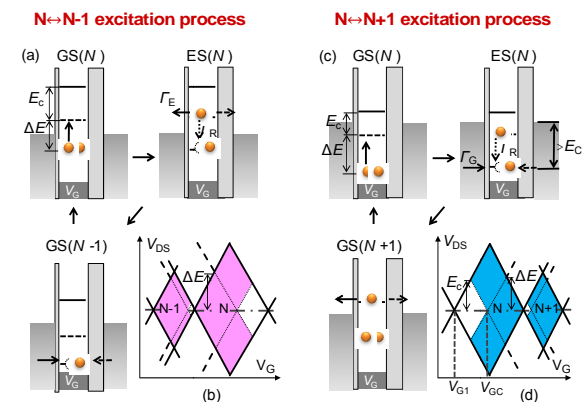


図2 量子ドット内のサブレベル間遷移で誘起される光電流生成過程

図3に、 $N = 6$ の領域のTHz誘起光電流に対してフーリエ分光測定により求めたTHz光電流のスペクトルを示す。THz電磁波がナノギャップ電極の方向に偏光していることを考えると、p軌道からd軌道への励起は3種類の遷移が可能となる。図4に観測された光電流スペクトルとフィッティングにより求めたスペクトルの解析結果を示す。図からわかるとおり、およそトンネル結合で決まる線幅を持った3つの狭線幅のスペクトルで光電流が理解できることがわかる。一方、電子数 $N = 4$ の場合にはp準位が半分しか埋まっ

ておらず、電子の配位に自由度が残る。このため $N = 4$ の場合には、ゲート電圧に対して複雑に変化する振る舞いが観測された。

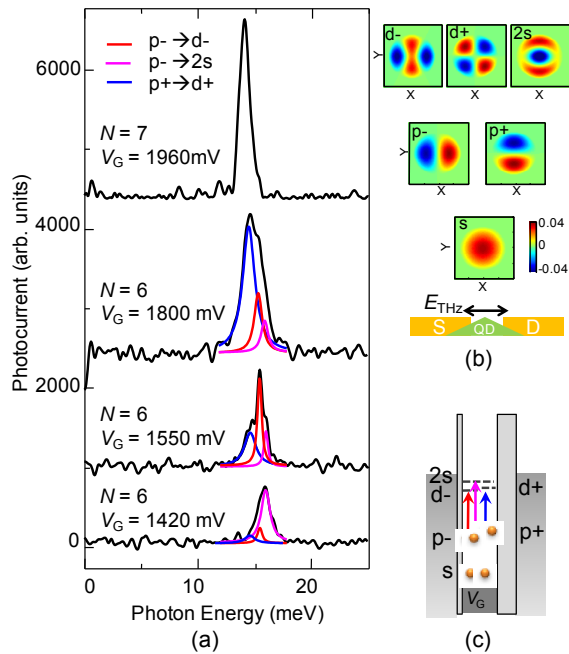


図3 (a) $N = 6$ における量子ドット内のサブレベル間遷移による光電流スペクトル、(b) 異方性のある量子ドット内の波動関数、(c) 光励起選択則で許される遷移

さらに、量子ドット内に形成される量子準位(サブレベル)を、単一電子トンネル分光と THz 分光により系統的に比較を行い、その関連を調べた(図4)。電子数が6以下の少数電子領域では単一電子トンネル分光で測定した励起準位の方が、THz 分光で得られた励起準位よりもエネルギー的に低いことがわかった。その差の理由として、励起子効果や反電場効果など電子間相互作用を検討したが、電子間相互作用は2種類の測定とも同じ影響を与え、2つの測定法は基本的には同じ励起エネルギーを測定することがわかった。さらに、得られた励起エネルギーの差は、各々の測定法の選択則により信号の見え方が異なるために起こるものであることがわかった。

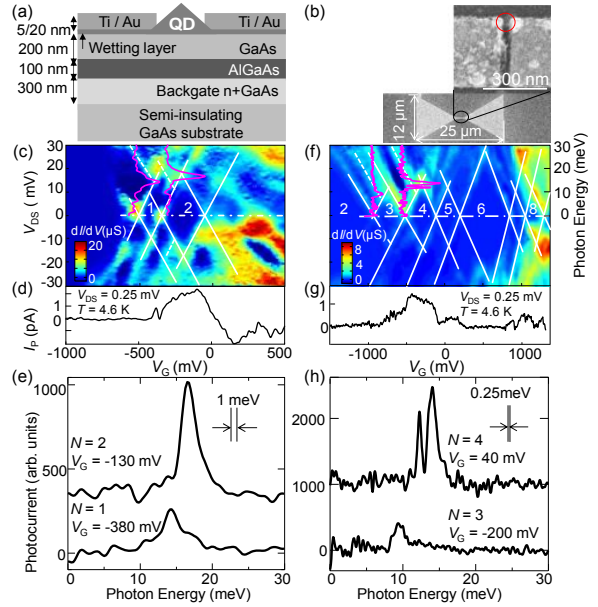


図4 (a), (b)測定に用いた単一量子ドットトランジスタ試料構造、(c)-(e), (f)-(h)はそれぞれ、試料のクーロン安定化ダイアグラム、 $V_{DS} = 0$ でのTHz誘起光電流、THz光電流スペクトルを表す。(c), (f)中のピンク色のデータはTHz分光のデータを重ねて書いたもの。

(3) 量子ドットサブレベル間遷移に基づくテラヘルツ光起電力効果

THz 励起下で量子ドットを経由して流れる光電流の電流-電圧測定を行ったところ、図5に示すように、ソース・ドレイン電圧がゼロでも有限の電流が生成されることがわかった。この THz 誘起光起電力効果は、量子ドット内に形成される各シェルの波動関数の広がりとの差と、ソースとドレインのトンネル結合の非対称性に起因するものである。また、得られた光電流の I - V 特性には階段状の特性が観測された。この階段状の電流変化は、量子ドット内のサブレベルがソース・ドレイン電極のバイアス窓に入るときに起こることもわかった。さらに、光起電力特性がゲート電圧で制御できることも特徴的である。

観測された THz 光起電力効果は、黒体輻射のような雑音電磁波からでも、単一量子ドットトランジスタによりエネルギーを取り出すことができ

ることを示しており、エネルギーハーベスティングの新しい可能性を提供するものである。

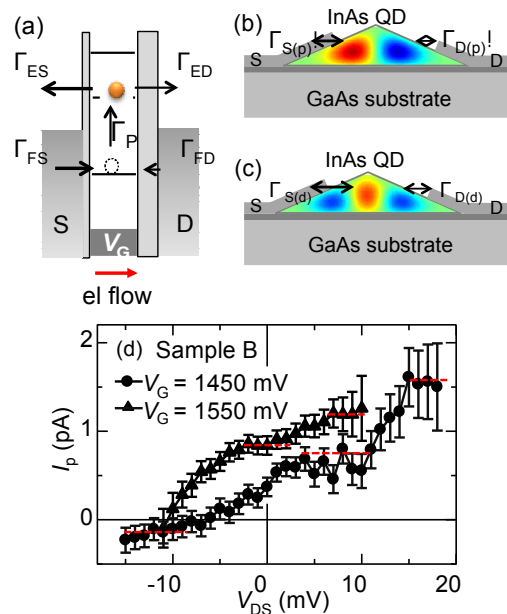


図5 (a)-(c)単一量子ドットトランジスタにおけるソース・ドレイン電極と量子ドットのトンネル結合の非対称性とそのシェル依存性の概念図 ((b)p シェル, (c)d シェル) (d)測定された THz 光電流の I-V 特性

5. 主な発表論文等

[雑誌論文](計 11 件)

- (1) Y. Zhang, K. Shibata, N. Nagai, C. Ndebeka-Bandou, G. Bastard, and K. Hirakawa: "Excited-state charging energies in quantum dots investigated by terahertz photocurrent spectroscopy", *Physical Review B (Rapid Communication)*, 掲載可
- (2) S. Baba, J. Sailer, R. S. Deacon, A. Oiwa, K. Shibata, K. Hirakawa, and S. Tarucha: "Superconducting transport in single and parallel double InAs quantum dot Josephson junctions with Nb-based superconducting electrodes", *Applied Physics Letters*, vol. 107, pp.222602-1~5, (2015), DOI: 10.1063/1.4936888.
- (3) Y. Zhang, K. Shibata, N. Nagai, C. Ndebeka-Bandou, G. Bastard, and K. Hirakawa: "Gate-controlled terahertz single electron photovoltaic effect in self-assembled InAs quantum dots", *Applied Physics Letters*, vol. 107, pp. 103103-1~4, (2015), DOI: 10.1063/1.4930023.
- (4) R.S. Deacon, A. Oiwa, J. Sailer, S. Baba, Y. Kanai, K. Shibata, K. Hirakawa, S. Tarucha: "Cooper pair splitting in parallel quantum dot Josephson junctions", *Nature Communications*, vol. 6, article no. 7446, pp. 1-6 (2015), DOI: 10.1038/ncomms8446.
- (5) Y. Zhang, K. Shibata, N. Nagai, C. Ndebeka-Bandou, G. Bastard, and K. Hirakawa: "Probing many-body quantum states in single InAs quantum dots: Terahertz and tunneling spectroscopy", *Physical Review B*, vol. 91, pp. 241301(R)-1~5 (2015), DOI: 10.1103/PhysRevB.91.241301.
- (6) Y. Zhang, K. Shibata, N. Nagai, C. Ndebeka-Bandou, G. Bastard, and K. Hirakawa: "Terahertz intersublevel transitions in single self-assembled InAs quantum dots with variable electron numbers", *Nano Letters*, vol. 15, pp. 1166-1170 (2015), DOI: 10.1021/nl5042319.
- (7) 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", *Applied Physics Express*, vol. 7, pp. 045001-1~4, (2014), DOI: 10.7567/APEX.7.045001.
- (8) K. Shibata and K. Hirakawa: "Terahertz photon-assisted tunneling in InAs quantum dots", *Journal of Infrared, Millimeter, and Terahertz Waves*, vol. 35, issue 1, pp. 101-109, (2014), DOI: 10.1007/s10762-013-0039-7 (invited)
- (9) 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", *Physical Review B*, vol. 87, issue 16, pp. 161302-1~5, (2013), DOI: 10.1103/PhysRevB.87.161302.
- (10) K. Shibata, H. Yuan, Y. Iwasa, and K. Hirakawa: "Large modulation of

zero-dimensional electronic states in quantum dots by electric-double-layer gating”, Nature Communications 4, Article number: 2664, pp.1-7, (2013), DOI:10.1038/ncomms3664.

[学会発表](計 4 9 件)

- (1) Y. Zhang, K. Shibata, N. Nagai, C. Ndebeka-Bandou, G. Bastard, and K. Hirakawa: “Terahertz photovoltaic effect and application in excited state charging energy sensing in single self-assembled InAs QDs”, 17th International Conference on Modulated Semiconductor Structures (MSS-17), Sendai, Japan, Jul. 26-31 (2015).
- (2) Y. Zhang, K. Shibata, N. Nagai, C. Ndebeka-Bandou, G. Bastard, and K. Hirakawa: “Probing manybody quantum states of single InAs quantum dots by terahertz spectroscopy”, The 19th International Conference on Electron Dynamics in Semiconductors, Optoelectronics and Nanostructures (EDISON'19), Salamanca, Spain, Jun. 29 - Jul. 2 (2015).
- (3) Y. Zhang, K. Shibata, C. Ndebeka-Bandou, N. Nagai, and K. Hirakawa: “Intersublevel transitions in single self-assembled InAs quantum dots”, 41st International Symposium on Compound Semiconductors (ISCS 2014), Montpellier, France, May 11-15 (2014).
- (4) K. Shibata and K. Hirakawa: “Photon-assisted tunneling through InAs quantum dots in the terahertz frequency range”, 18th International Conference on Electron Dynamics in Semiconductors, Optoelectronics and Nanostructures (EDISON18), Matsue, Japan, Jul. 22-26 (2013). (invited)
- (5) K. M. Cha, M. Taira, K. Shibata, and K. Hirakawa: “Site-controlled growth and transport properties of InAs quantum dots using step-oxidation cleaning of patterned substrates”, 18th International Conference on Electron Dynamics in Semiconductors, Optoelectronics and Nanostructures (EDISON18), Matsue, Japan, Jul. 22-26 (2013).

[図書] なし

[産業財産権] なし

[その他]

ホームページ

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

6 . 研究組織

(1)研究代表者

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

(2)連携研究者

柴田 憲治 (SHIBATA, Kenji)

東北工業大学・工学部・准教授

研究者番号：00436578

大岩 顕 (OIWA, Akira)

大阪大学・産業科学研究所・教授

研究者番号：10321902

陽 完治 (YOH, Kanji) (故人)

北海道大学・量子集積エレクトロニクス研究センター・教授

研究者番号：60220539