

高速マイクロプローブを用いた

情報通信に向けた固体ナノエレクトロニクス材料の研究

代表研究者 大塚 朋 廣 理化学研究所 創発物性科学研究センター 研究員
客員研究員

1 はじめに

ナノメートルスケールの固体ナノ材料中の局所電子状態、およびそのダイナミクスの理解は物性物理、ナノサイエンス等の基礎科学から、各種センサー、電子情報処理・通信デバイス等への応用の両面で重要性が増している。例えば、近年、従来のCMOSデバイスに基づくエレクトロニクスデバイスの発展が、微細化の限界や発熱等の物理的な制限により限界を迎えようとしており、これらの限界を従来のエレクトロニクスとは異なる動作原理を取り入れた、新しいエレクトロニクスにより超えていこうとする研究が進められている。この新しいエレクトロニクスとして、電子の電荷の自由度だけでなく、スピンの自由度も利用するスピントロニクス[1]や、電子の古典的な状態だけでなく量子的な状態も利用して有用な機能を創出しようとする量子情報処理、量子エレクトロニクス[2]などが活発に研究されている。これらの新しいエレクトロニクスにおいては、固体ナノ材料中の局所的な電子状態、スピン状態や量子状態が重要な役割を果たすため、その局所電子状態をミクロな観点から解明することの重要性が高まっている。

材料中の電子状態を調べるためには、電圧、電流や電気抵抗測定といった電気測定が、エレクトロニクスデバイス応用等で重要となる電子輸送現象に直接アクセスできる有効な手法の一つである。従来の電気測定、電子輸送測定においては、測定対象となる材料に、比較的大きな測定用の電極を取り付けて、測定試料を通して流れる電流等を測定して、材料内部の現象を観測、解明してきた。しかしながらマクロな測定電極を使用するこの従来の方法は、固体ナノ材料の測定においては十分でない場合も多い。それは測定電流が測定試料全体を流れてしまうために、固体ナノ材料の特性を決めている局所電子状態を直接的に測定することができず、試料全体の平均的な電気特性を測定することになってしまうことがあるからである。そこで、固体ナノ材料の測定においては、ナノ材料中の局所的な電子状態に直接的にアクセスすることのできる、ミクロなプローブが求められている。

これまで私たちは、半導体量子ドット等を用いてこのミクロなプローブを開発してきた。半導体量子ドットは電子をナノメートルスケールの微小領域に閉じ込めた構造である。この微小な構造では、帯電エネルギー、サイズ閉じ込めの効果によって、その構造内部に離散的なエネルギー準位が形成される。人工的に微細加工により形成した半導体量子ドットにおいては、このエネルギー準位は、半導体量子ドットを構成する電極に印加した電圧により、比較的自由に操作でき、人為的に操作可能な人工量子準位として利用することができる[3]。この半導体量子ドット内の人工量子準位を、測定対象となる固体ナノ材料に結合させ、人工量子準位への測定対象からの電子のトンネルを調べることにより、測定対象内の局所的な電子状態の情報を得ることができる。私たちはこの人工量子準位のエネルギーを操作しながら、電子のトンネルを高速に測定することにより、固体ナノ材料中での電子のエネルギー分布、さらにはスピンの情報まで局所的($\sim 10\text{nm}$)に高精度($\sim 10\ \mu\text{eV}$)で低擾乱($\sim 100\text{aA}$)かつ高速($\sim \mu\text{s}, \text{ns}$)に調べられることを示し、その有用性を実証してきた[4-7]。

そこで本研究ではまず、この半導体量子ドット等を用いた高速マイクロプローブの手法について、プローブ動作の確認、改良等を実施した。そしてこの高速マイクロプローブを用いて、固体ナノ材料における局所電子状態を測定し、固体ナノエレクトロニクス材料内部における電子状態、スピン状態等をミクロな観点から解明する研究を推進した。

2 高速マイクロプローブを用いた固体ナノエレクトロニクス材料の研究

2-1 高速マイクロプローブ

半導体微細加工技術の進歩により、近年ではナノメートルスケールの微小な固体ナノ構造を人工的に作製することが可能となっている。固体ナノ構造中の微小空間は単なる小さな空間であるだけでなく、小さいことに起因する単電子効果や、量子力学的サイズになると量子効果等の新しい現象を生み出し、そのサイズ、形状等が電子物性として発現する。例えば、電子を量子力学的な波の大きさと同程度の微小領域に閉じ込めることにより、量子力学的な閉じ込めの効果、つまり量子力学的な波と閉じ込めポテンシャルの整合性を通して、その微小空間中では離散的なエネルギー準位が形成される。自然界の原子もまさにこれと同じものであり、陽子によるクーロン力によって閉じ込めポテンシャルが形成され、その結果電子軌道が形成されて、多彩な物性が創生される。半導体を用いて作製されるこの電子を閉じ込めるための微小な構造は、半導体量子ドットと呼ばれ、その内部に形成される離散準位は半導体量子ドットの近傍に設置した電極に印加する電圧により比較的自由に制御することができ、人為的に操作可能な人工量子準位として利用することができる[3]。

この人工量子準位の活用方法はさまざまなものが提案され、研究が進められているが、その一例が人工量子準位を使って、他の測定対象を調べるためのプローブとしての活用である。半導体量子ドット等による人工量子準位を、固体中の電子状態のマイクロなプローブとして利用すれば、従来の測定電極等の古典的なマクロなプローブでは不可能であった局所電子状態の測定が可能となる。これまでの従来型の電気伝導測定では、固体ナノ材料であっても比較的大きな測定電極を取り付けて測定を行ってきた。この結果、測定される電流には固体ナノ材料中の局所的な電子状態を反映した電流だけではなく、その他の領域の電子状態を反映した電流も含まれてしまうため、測定全体としては試料全体の平均的な性質をみてしまう状況になる可能性があるという弱点があった。一方、人工固体ナノ構造を用いたマイクロなプローブを使って、固体ナノ材料中の局所的な電子状態に直接的にアクセスすることで、微小空間での局所的な電子状態を鮮明に特定し、試料中での物理現象をマイクロな観点から解明することができる。

本研究ではまず、この半導体量子ドット等において形成される人工量子準位を用いたマイクロなプローブの開発、改良を行った。試料はガリウム砒素、アルミニウムガリウム砒素の半導体ヘテロ構造からなる半導体2次元電子基板を加工して作製した。分子線エピタキシーの手法により形成された半導体2次元電子基板では、異種半導体のヘテロ界面に三角ポテンシャルが形成され、このポテンシャルにより電子が試料面に垂直方向に閉じ込められている。これに加えて半導体基板表面に微細加工を施すことにより、試料面に水平方向の閉じ込めポテンシャルも実現する。まずガリウム砒素、アルミニウムガリウム砒素基板にウェットエッチングを施すことにより、不要な部分の2次元電子を削除して、半導体量子ドットを形成するためのメサ構造を作製した。そしてこのメサ構造のままでは試料に平行方向の閉じ込めポテンシャルは、量子力学的効果を生み出すほど小さくすることは難しいので、メサの上部に金属電極を作製して、これに電圧を印加することにより、電氣的に閉じ込めポテンシャルを形成した。この金属ゲート電極の形状や間隔等が、電子を閉じ込めるためのポテンシャルを決定するため、半導体中での電子の波と同程度であるような微小な構造を作製する必要がある。このために電子線を活用した電子線リソグラフィを用いることにより、試料上に塗布したレジスト膜に対して数十ナノメートルスケールでのパターンニングを行い、さらに金属蒸着を施すことにより微小金属電極を形成し、試料を作製した。

このように作製した半導体量子ドット等をマイクロなプローブとして利用するためには、半導体量子ドット内部に存在する電荷の検出を行う必要がある。従来の半導体量子ドットの電気伝導測定においては、この電荷の検出を、直流や低周波の交流といった比較的低速の電気信号を用いた電気伝導測定によって行ってきた。しかし低速の低周波信号を用いるこの手法では、電荷状態検出について、単一電荷を検出できるような低ノイズで良好な測定結果を得るためには、測定にミリ秒から秒程度の時間が必要となっていた。このため、局所的な電子状態の時間変化等のダイナミクスを高速に観測するには、あまり有効ではないという問題があった。そこで近年開発されてきた、高周波を用いた高速電気測定手法である高周波反射測定を活用した[8]。この測定手法は、半導体量子ドット等の測定試料を、コイルとコンデンサで構成した高周波共振器回路の中に組み込み、共振器に高周波信号を入射して、反射してくる高周波を測定するというものである。この測定手法では従来の低周波を用いた測定で、一番の問題となっていた回路の時定数等の問題をクリアすることがで

き、電氣的に高速な測定を実現できる。この手法はアメリカのグループにより近年開発され、半導体量子ドットを用いた量子ビット等の研究に活用されるようになってきている。そしてまた私達も半導体量子ドット等を用いた固体ナノ材料中の局所電子状態のマイクロプローブと組み合わせて、高速なマイクロプローブの動作を実現し、その改良を行った。

半導体量子ドットを用いたマイクロプローブについての高周波反射測定を行うためには、半導体量子ドット等のマイクロプローブ試料を高周波共振器に組み込む必要がある。まずコイルとキャパシタを用いて高周波の共振回路を形成した。ここで半導体量子ドット試料において明瞭な単電子効果、量子効果等を観測し、低ノイズの環境下で測定するためには、半導体量子ドット試料を冷却する必要がある。この低温下においても適切に動作するコイル等を選定して、さらに繰り返し冷却、昇温の熱サイクルにも耐えられるように共振器回路を構成した。そしてこの高周波共振回路に対して、半導体微細加工により作製した半導体量子ドット試料を接続した。高周波共振回路との接続においては、良好な高周波特性が得られるように注意しながら、メタルワイヤボンディングによる電氣的な接続を行った。

この高周波共振器回路と半導体量子ドット試料を、明瞭な単電子効果、量子効果が観測できる低ノイズ環境下で測定するために、冷凍機に搭載して電氣測定を行った。高周波反射測定に用いる高周波信号（周波数数百メガヘルツ）は、室温部から同軸ケーブルで冷凍器中に導入した。また半導体量子ドット試料を含む共振回路からの反射高周波信号は、方向性結合器を利用することにより反射信号のみを取り出し、この反射信号を、同軸ケーブルを用いて室温部に伝達した。そして伝達された高周波反射信号を高周波復号回路に導入して周波数変換を行い、その出力を高速デジタイザを使って、測定、解析用のパソコンに取り込んで解析を行った。

この測定セットアップを用いた半導体量子ドット内部の電荷の変化の検出は、以下のようにしてなされる。まず半導体量子ドットに電子が入り出して、量子ドット内部の電荷が変化することにより、半導体量子ドット試料のインピーダンスが変化する。そしてこの試料インピーダンスの変化は、試料を内包した高周波共振回路の共振条件を変化させる。この結果、共振器の共振条件付近に入射していた高周波が、共振器から反射されるようになり、高周波反射信号の強度や位相等に変化が現れる。この変化を高周波復号回路および高速デジタイザを用いて電氣的に高速に検出することにより、半導体量子ドット内の電荷状態の変化を高速に検出した。

半導体量子ドットを用いた高速マイクロプローブについて、電荷状態の検出スピードを評価したところ、数マイクロ秒程度の積分時間で単一電子による電荷状態変化を検出できることを確認した。この測定積分時間は半導体量子ドット内の単一電荷レベルの電荷状態の変化による共振回路の共振条件の変化、およびこれに伴う反射高周波信号の変化の大きさと、反射高周波を検出する高周波測定系に存在するノイズの比で決まっている。半導体量子ドット試料と高周波回路に調整をほどこすことにより電荷状態信号強度を最大化し、また低ノイズ高周波部品、機器を用いる等によって高周波測定系のノイズを低減することにより、短い測定積分時間で単一電子による電荷状態変化検出を実現することができた。またこの高速マイクロプローブ動作の安定性についても評価を行った。この結果、半導体微細試料において従来生じていた、半導体材料中の電荷ノイズが低減され、高速マイクロプローブ試料が固体ナノ材料内の局所電子状態を測定するのに十分な安定度を持つことを確認した。

2-1 固体ナノ材料中の局所電子状態測定

固体ナノ材料中の局所電子状態およびそのダイナミクスは、物性物理、ナノサイエンス等の基礎科学、およびエレクトロニクスデバイス応用の面からも注目を集めている。この固体ナノ材料中の局所的な電子状態、

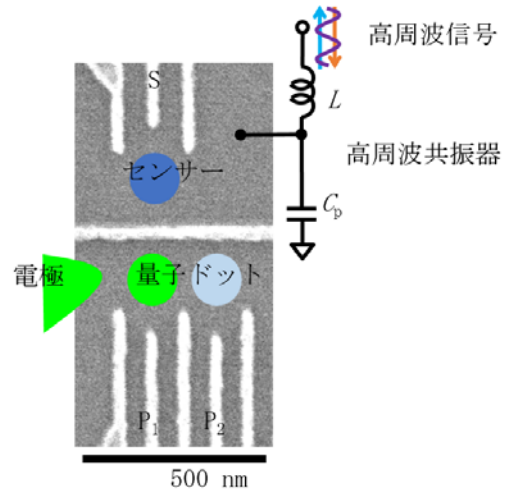


図 1. 高速マイクロプローブ試料の電子顕微鏡写真と測定セットアップの模式図。半導体量子ドット試料が高周波共振器に接続されている。共振器の反射高周波信号を測定し、量子ドット内の電荷状態の情報を得る。

およびその時間変化ダイナミクスを、半導体量子ドット等を用いた高速マイクロプローブを用いることによって測定した。

測定対象の固体ナノ材料としては、半導体量子ドットが外部の電極に結合した量子ドット複合系を用いた。この複合系は、半導体量子ドット内の量子準位が、伝導電子のアンサンブルという外部の大きな自由度をもつ電極に結合することにより形成される、最も基本的な量子開放系の一つである。開放量子系は開放系、非平衡系の基礎物理や、環境中に設置された量子ビット等の、現実的な条件下での量子デバイスの解析等において重要性が増している。この半導体量子ドット-電極複合系における、半導体量子ドット内の局所電子状態およびその時間変化を、高速マイクロプローブを用いて測定した。

この結果、半導体量子ドット中の電荷状態がマイクロ秒程度の時間スケールで変化する様子を観測した。この変化については、半導体量子ドット中の電子が電極に出ていくことによって生じる、電子のトンネルがメカニズムであることが、電荷状態変化の時間変化の詳細を調べることにより明らかとなった。この電子のトンネルは半導体量子ドットと電極が有限のトンネル結合を持っていることに起因しており、この結合の強さはトンネルバリアを制御する電極の電圧により制御することができる。電圧を負に大きくしていくと、電子にとってはバリアが高くなるのでトンネルが抑制され、また逆に正に大きくしていくとバリアが低くなるのでトンネルが促進される。観測されたマイクロ秒という時間スケールは、このトンネルバリアにより決まっている。

またこの変化の際のスピン状態についても、半導体量子ドット中のスピン依存の2電子状態である、一重項、三重項状態を用いたスピン閉塞現象を活用して測定を行った。測定対象となる半導体量子ドットの近傍に、別の半導体量子ドットを用意して、測定対象量子ドットからの電子の移動を調べる。2つの量子ドット内のスピン状態に依存して、量子ドット間のトンネルが影響を受けるため、この量子ドット間の電子の移動を検出することにより、測定対象量子ドット内の電子のスピン状態の情報を得ることができる。この結果、半導体量子ドット中の局所的な電子のスピン状態についても、マイクロ秒程度での時間変化を観測した。こちらについても電子のトンネルにより、半導体量子ドット内のスピン状態が変化していることがメカニズムであることが解析より明らかとなった。

さらに半導体量子ドット内の準位のエネルギーの条件を変化させて、局所的な電荷状態、およびスピン状態のダイナミクスに変化が現れるかどうかを測定した。この結果、半導体量子ドット内準位のエネルギーを電極のフェルミエネルギーに比べて低く設定した際に、局所電子状態ダイナミクスに変化が現れた。この場合には半導体量子ドット内の局所スピン状態は時間と共に減衰していく様子が観測されたのに対して、局所的な電荷状態のシグナルには変化が現れなかった。この現象を詳しく解析していくと、半導体量子ドットから電子が出ていく過程と、電子が量子ドットに入ってくる過程が同時に起こる、高次のトンネルがそのメカニズムであることが分かった。そこでこのトンネルを考慮したマイクロな理論を構築し、実験との比較を行ったところ、量子ドット内準位のエネルギーを変化させた際のダイナミクスの変化等を、理論式により再現することに成功した[9]。

これらの結果は、高速マイクロプローブを用いて固体ナノ材料中における局所的な電荷状態やスピン状態、およびそのダイナミクスを直接的にかつマイクロな観点から測定した結果であり、固体ナノ材料における電子物性、物理現象解明に有用となる。また外部電極の自由度を利用した、電荷状態やスピン状態の初期化、操作等を通して、固体ナノ材料を用いた新しいエレクトロニクスデバイスの創製においても重要となる結果である。

また高速マイクロプローブで開発してきた測定手法は、他の系においても応用可能である。その一例が、半導体量子ドット中の電子スピンを用いた量子ビットの測定である。半導体量子ドットでは、帯電エネルギー、

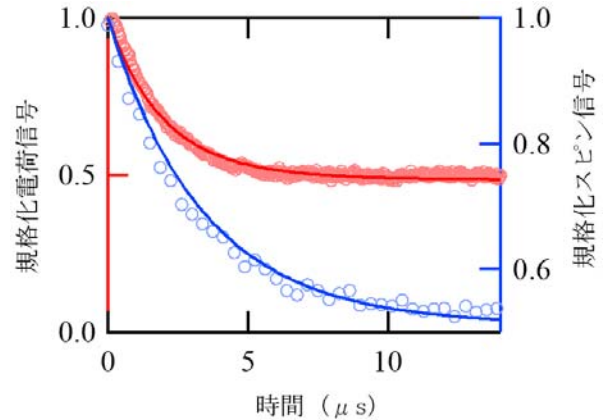


図2. 観測された局所電子状態（電荷状態、スピン状態）の時間変化の一例。高速マイクロプローブによって固体ナノ材料中での局所電子状態変化を単一電子レベルで高速に検出することができる。

軌道エネルギー等を利用して、電子を一個ずつトラップすることができる。この半導体量子ドット中の電子スピンは、固体中での比較的長い量子状態のコヒーレンス時間を持っているため、量子状態を活用した量子情報処理、量子エレクトロニクスの実現に向けた、量子状態を保持するビット：量子ビットの候補としての研究が活発になされている[10]。この半導体量子ドット中の電子スピンをを用いた量子ビットの量子状態読み出しについて、高速マイクロプローブで改良してきた測定技術を応用して、高速かつ高精度な読み出しを行った。

半導体量子ドット中の電子スピンをを用いた量子ビットの操作精度は、量子ビットとなる電子スピンの操作のスピードと、電子スピンの量子状態が保持されるコヒーレンス時間の比で決まっている。そこでこの操作精度を改善するために、電子スピンの操作スピードを、微小磁石を用いた電子スピン共鳴により高速化した。さらにシリコン等の新しい材料を用いることにより、電子スピンのコヒーレンスを悪化させる材料中の核スピンの数を減少させ、電子スピンのコヒーレンス時間を伸ばした。この結果、半導体量子ドット中の電子スピンをを用いた量子ビットの操作スピード、操作精度を大幅に改良することができ、この実験に測定の面から貢献した[11]。

また有用な量子情報処理、量子エレクトロニクスの実現に向けては、量子ビット操作の高精度化だけではなく、量子ビットの数を増やしていく量子システムの大規模化も重要となる。半導体量子ドットを用いた量子ビットの場合は、この量子システムの大規模化は、半導体量子ドットデバイスを集積して、量子ドットの数を増やすことに対応する。そこで半導体量子ドットが複数結合した多重量子ドットを用いることにより、将来の多ビットデバイスにつながる多重量子ドットデバイスを作製した。そして多重量子ドットデバイスにおける、単一電子のレベルでの電荷状態制御、多スピン状態操作等を実現し、この実験に測定の面から貢献した。

これらの結果は、量子情報処理、量子エレクトロニクスに必須の基礎技術の開発、改良に貢献するものであり、今後の新しいエレクトロニクスの発展において重要なステップとなる。

3 まとめ

本研究により、固体ナノエレクトロニクス材料中の局所電子状態を観測するための、半導体量子ドット等を用いた高速マイクロプローブの開発と改良を行うことができた。またこの高速マイクロプローブを用いて固体ナノ材料中の局所電子状態の電荷状態やスピン状態のダイナミクスを高速、高精度に測定し、ミクロな観点からその現象を解明することができた。

今後はこれらの成果をさらに発展させ、固体ナノ材料を用いた新しいエレクトロニクスの研究を推進したい。内容としてはまず、半導体量子ドット等を用いた高速マイクロプローブを活用した測定を様々な系に応用していく。本研究で実現した、固体ナノ材料における局所電子状態、スピン状態ダイナミクスの測定をさらに進め、局所電子状態分布、局所状態のコヒーレンス等、従来のマクロなプローブを使った測定では得られなかった知見の獲得を進める。また、測定対象の材料についても、これまでの材料だけでなく、新しい素材にも適用できる方法を検討していく。

また固体ナノデバイスの測定については、本研究で行った量子ビットデバイスの測定等の改良を引き続き進め、測定の高精度化等を進めることにより、量子情報処理や量子エレクトロニクスへの貢献を目指す。またその他の固体ナノ材料デバイスについても、高速マイクロプローブを用いることにより、その内部の素過程の解明等を行っていきたい。

【参考文献】

1. I. Žutić, J. Fabian, and S. Das Sarma, *Rev. Mod. Phys.* 76, 323–410 (2004).
2. T. D. Ladd, F. Jelezko, R. Laflamme, Y. Nakamura, C. Monroe, and J. L. O'Brien, *Nature* 464, 45 (2010).
3. S. Tarucha, D. G. Austing, T. Honda, R. J. van der Hage, and L. P. Kouwenhoven, *Phys. Rev. Lett.* 77, 3613 (1996).
4. T. Otsuka, E. Abe, Y. Iye, and S. Katsumoto, *Phys. Rev. B* 79, 195313 (2009).
5. T. Otsuka, E. Abe, Y. Iye, and S. Katsumoto, *Phys. Rev. B* 81, 245302 (2010).

6. T. Otsuka, Y. Sugihara, J. Yoneda, S. Katsumoto, and S. Tarucha, *Phys. Rev. B* 86, 081308 (2012).
7. T. Otsuka, S. Amaha, T. Nakajima, M. R. Delbecq, J. Yoneda, K. Takeda, R. Sugawara, G. Allison, A. Ludwig, A. D. Wieck, and S. Tarucha, *Scientific Reports* 5, 14616 (2015).
8. D. J. Reilly, C. M. Marcus, M. P. Hanson, and A. C. Gossard, *Appl. Phys. Lett.* 91, 162101 (2007).
9. T. Otsuka, T. Nakajima, M. R. Delbecq, S. Amaha, J. Yoneda, K. Takeda, G. Allison, P. Stano, A. Noiri, T. Ito, D. Loss, A. Ludwig, A. D. Wieck, and S. Tarucha, *Scientific Reports* 7, 12201 (2017).
10. D. Loss, and D. P. DiVincenzo, *Phys. Rev. A* 57, 120 (1998).
11. J. Yoneda, K. Takeda, T. Otsuka, T. Nakajima, M. R. Delbecq, G. Allison, T. Honda, T. Kodera, S. Oda, Y. Hoshi, N. Usami, K. M. Itoh, and S. Tarucha, *Nature Nanotechnology* 13, 102 (2018).

〈 発 表 資 料 〉

題 名	掲載誌・学会名等	発表年月
“Coherent transfer of electron spin correlations assisted by dephasing noise”	Nature Communications 9, 2133 (2018)	2018年5月
“A quantum-dot spin qubit with coherence limited by charge noise and fidelity higher than 99.9%”	Nature Nanotechnology 13, 102 (2017)	2017年12月
“Cotunneling spin blockade observed in a three-terminal triple quantum dot”	Physical Review B 96, 155414 (2017)	2017年10月
“Higher-order spin and charge dynamics in a quantum dot-lead hybrid system”	Scientific Reports 7, 12201 (2017)	2017年9月
“A fast quantum interface between spin qubits of different codes”	arXiv:1804.04764	2018年4月
“Four single-spin Rabi oscillations in a quadruple quantum dot”	arXiv:1805.06111	2018年5月
“Difference in Charge and Spin Dynamics in a Quantum Dot-Lead Hybrid System” 等	International Conference on Electronic Properties of Two Dimensional Systems, State College, U.S.A., Aug. 1, 2017	2017年8月