

整理番号	H27-J-171	報告者氏名	大塚 朋廣
------	-----------	-------	-------

研究課題名

高速量子プローブによる半導体微細材料中局所電子状態の高速評価手法の開発

<代表研究者> 機関名：国立研究開発法人理化学研究所 職名：研究員 氏名：大塚朋廣

<共同研究者> 機関名： 職名： 氏名：  
 機関名： 職名： 氏名：  
 機関名： 職名： 氏名：  
 機関名： 職名： 氏名：

<研究内容・成果等の要約>

電子デバイスの超低消費電力化や多機能化の実現に向け、特異な電子物性を示す半導体微細材料の重要性が高まっている。半導体微細材料を用いて有用な電子デバイスを創製するためには、その微細材料内部の局所的な電子状態およびそのダイナミクスを調べ、マイクロで動的な観点から微細材料内部での物理現象を理解することが重要である。そこで私は半導体量子ドットを用いた局所プローブと、高周波を用いた電気的高速測定技術を組み合わせ、高速量子プローブを作製した。そして、この新しいプローブを用いて、特に半導体量子ドットと電極が結合したハイブリッド系における電子スピンのダイナミクスについて、半導体量子ドット系のスピン操作手法と、半導体量子ドットを用いた局所電子状態プローブを用いて測定を行った。この結果、量子ドット内のスピン状態と電荷状態の変化を実時間で捉えることができ、その時間変化の解析より電極との相互作用によるスピン、電荷状態変化のメカニズムを解明した。

また、高速量子プローブで確立した測定手法は様々な物性測定に応用が可能であり、半導体量子ドット中の電子スピンを用いた量子ビット系の測定へ応用した。半導体量子ドット中の電子スピンは長いコヒーレンス時間を持ち、量子情報処理のための量子ビットとしての研究が活発に進められている。これまでに単一電子スピンの回転操作、2つの電子スピンのエンタングル操作など、量子情報処理に必要な基本的な量子ゲート操作が実現されている。私は高速測定を利用してこの手法をさらに進め、高精度な測定を実現する量子状態の高速測定、大規模な量子ゲート操作に向けた多重量子ドット系の実現等について、主に測定の面で手法を適用した。大規模な量子ゲート操作に向けた多重量子ドット系については、半導体量子ドットを多数結合させることによって、多量子ビットを実現するためのデバイスを作製した。そしてその多重量子ドット試料を使って電子スピン状態制御についての実験を実施した。

## &lt;研究発表（口頭、ポスター、誌上別）&gt;

## 論文

1. “Tunneling induced spin dynamics in a quantum dot-lead hybrid system” ,  
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,  
arXiv:1608.07646.
2. “Phase control of local and non-local entanglement in a triple spin qubit” ,  
T. Nakajima, M. R. Delbecq, T. Otsuka, S. Amaha, J. Yoneda, A. Noiri, K. Takeda, G. Allison, A. Ludwig, A. D. Wieck, and S. Tarucha,  
arXiv:1604.02232.
3. “Detection and control of charge states in a quintuple quantum dot” ,  
T. Ito\*, T. Otsuka\*, S. Amaha, M. R. Delbecq, T. Nakajima, J. Yoneda, K. Takeda, G. Allison, A. Noiri, K. Kawasaki, and S. Tarucha,  
Scientific Reports 6, 39113(2016), (\*equal contribution).
4. “Single-electron Spin Resonance in a Quadruple Quantum Dot” ,  
T. Otsuka, T. Nakajima, M. R. Delbecq, S. Amaha, J. Yoneda, K. Takeda, G. Allison, T. Ito, R. Sugawara, A. Noiri, A. Ludwig, A. D. Wieck, and S. Tarucha,  
Scientific Reports 6, 31820 (2016).
5. “A fault-tolerant addressable spin qubit in a natural silicon quantum dot” ,  
K. Takeda, J. Kamioka, T. Otsuka, J. Yoneda, T. Nakajima, M. R. Delbecq, S. Amaha, G. Allison, T. Kodera, S. Oda, and S. Tarucha,  
Science Advances 2, e1600694 (2016).
6. “Coherent electron-spin-resonance manipulation of three individual spins in a triple quantum dot” ,  
A. Noiri, J. Yoneda, T. Nakajima, T. Otsuka, M. R. Delbecq, K. Takeda, S. Amaha, G. Allison, A. Ludwig, A. D. Wieck, and S. Tarucha,  
Applied Physics Letters 108, 153101 (2016).
7. “Quantum dephasing in a gated GaAs triple quantum dot due to non-ergodic noise” ,  
M. R. Delbecq, T. Nakajima, P. Stano, T. Otsuka, S. Amaha, J. Yoneda, K. Takeda, G. Allison, A. Ludwig, A. D. Wieck, and S. Tarucha,  
Physical Review Letters 116, 046802 (2016) (editors’ suggestions).

## 口頭

- ・（招待講演）「半導体量子ドットを用いたスピンキュービット実験」、  
大塚朋廣、中島峻、Matthieu Delbecq、天羽真一、米田淳、武田健太、野入亮人、菅原烈、伊藤匠、川崎賢人、Hong Lu、Borzoyeh Shojaei、Christopher Palmstrøm、Arthur Gossard、John Watson、Michael Manfra、Arne Ludwig、Andreas Wieck、樽茶清悟、  
第4回関西若手物性研究会、豊中、2015年10月17日

等

## ポスター

- ・ “Tunneling induced spin relaxation in a quantum dot-lead coupled system”  
T. Otsuka, T. Nakajima, M. R. Delbecq, S. Amaha, J. Yoneda, K. Takeda, G. Allison, A. Noiri, T. Ito, A. Ludwig, A. D. Wieck, and S. Tarucha,  
International Conference on The Physics of Semiconductors, Beijing, China, Aug. 4, 2016

等

<研究の目的、経過、結果、考察（5000字程度、中間報告は2000字程度）>

### 【研究の目的】

近年、情報処理デバイスの超低消費電力化や多機能化の実現に向け、スピントロニクスデバイスや量子情報処理デバイス等、従来のCMOSデバイスとは異なる動作原理に基づく革新デバイスが提案されている。これらの新デバイスにおいては、従来のデバイスにも増して、半導体微細材料中の局所電子状態が本質的に重要な役割を果たす。さらにデバイスの高速化、高効率化のためには、局所電子状態の静的な特性の理解だけでなく、そのダイナミクスまで含めた理解が重要となる。

そこで本研究では、半導体微細材料中の局所電子状態に直接的にアクセスするための半導体量子ドットを用いた局所プローブ、ダイナミクスを明らかにするための量子ドット状態の高速読み出し手法を組み合わせた新しい高速量子プローブを用いた測定を行う。従来の電気伝導測定ではマクロな電極を測定対象に接続し、測定対象を通しての電気伝導を測定してきた。本研究ではこれに加えて半導体量子ドットを活用したマイクロなプローブを使うことにより、微細材料内部の物理現象をより直接的に調べる。これにより革新デバイスに向けた新規材料、構造中の局所電子状態を動的な観点から測定する技術を確立、発展させる。そしてこの新しいプローブを用いて半導体微細材料内部での物理現象をマイクロな視点から明らかにし、局所スピン状態、量子状態の時間発展等の新デバイス設計、改良に役立つ物理現象の解明を目指す。

### 【研究の経過、結果、考察】

#### ● 高速量子プローブの性能評価

半導体微細材料を用いて有用な電子デバイスを創り出すためには、その微細材料内部の局所的な電子状態およびそのダイナミクスを調べ、マイクロで動的な観点から微細材料内部での物理現象を理解することが重要である。このための手法として電子物性に直接アクセスできる電気伝導測定は、有用な測定手法の一つである。従来の電気伝導測定ではマクロな電極を測定対象に接続し、測定対象を通しての電気伝導を測定してきた。近年ではこれに加えてナノ構造を活用したマイクロなプローブを使うことにより、微細材料内部の物理現象をより直接的に調べることが可能となってきた。半導体量子ドットを用いた局所プローブはその一例である。半導体量子ドットは電子を微小領域に閉じ込めた構造であり、単電子効果、量子効果によりその内部に離散的なエネルギー準位が形成され、そのエネルギー等を電圧で操作できるため、操作可能なプローブとして利用することができる。私はこの半導体量子ドットを用いた局所プローブと、高周波を用いた電気的高速測定技術を組み合わせ、高速量子プローブを作製し、その性能評価を行った。

まず、半導体微細加工により、ガリウムヒ素ヘテロ二次元電子基板を加工してメサ構造を作製し、さらにメサ上に微小金属ゲート電極を作製することにより、プローブとなる半導体量子ドットとプローブ動作を検証する際の測定対象となる別の量子ドットが結合した試料を作製した。そしてこの測定試料を希釈冷凍機を用いて冷却し、明瞭な量子ドット準位が観測される低温で測定を行った。

半導体量子ドットを用いた局所電子状態プローブでは、測定対象からプローブ量子ドットへの電子のトンネルを測定することにより、測定対象内の局所電子状態についての情報を得ることができる。プローブ量子ドットの準位のエネルギーを走査しながらトンネルを調べることで、各エネルギーでの電子の占有率、状態密度等を調べることができる。この電子のトンネルについて、高周波反射測定による高速測定を実施した。プローブ量子ドットを回路内に取り込んだ高周波共振器を作製し、高周波

信号を印加した。高周波の反射信号を測定したところ、量子ドット内の電子数の変化に応じて高周波反射信号が変化することが観測された。高周波信号の測定積分時間を変化させながら測定を行うと、測定積分時間が長くなるにつれて量子ドット内電子数が異なる信号を分離できる様子が観測され、マイクロ秒程度の積分時間で単一電子の信号を検出できることが確認された。この測定スピードは従来の測定手法を用いた局所プローブ測定に比べて1000倍程度と高速になっており、局所電子状態プローブの動作スピードを大幅に改善することができた。

この量子ドットを用いた新しい局所電子状態プローブで実証された高速性は、半導体微細材料中のマイクロな電子物性のダイナミクスまで含めた解明に有用であり、今後の半導体微細材料デバイスの発展に貢献できる。

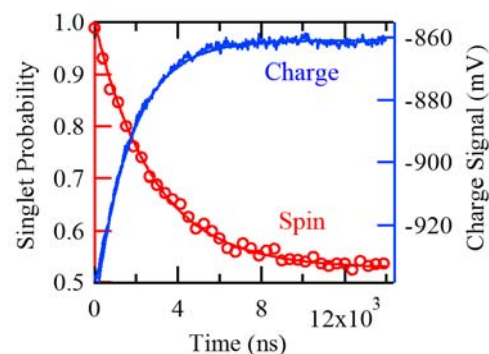
### ● 半導体微細材料中のスピンドイナミクス測定

半導体微細材料中のスピン現象は、基礎科学やスピントロニクス等の応用の両面から注目を集めており、局所的なスピン現象や、その静的な特性だけではなくダイナミクスまで含めた解明が重要となっている。また外界との相互作用の弱い孤立スピン系だけでなく、外界等と強く結合したスピン系のダイナミクスは、開放系の量子ダイナミクス等の観点からも興味を持たれている。半導体量子ドット中の電子スピンは操作可能なスピン系であり、これらの実験を行う上で有用な系である。また固体中での比較的長いコヒーレンス時間を活かして、これまで半導体量子ドット中の電子スピンは量子情報処理に向けた量子ビットの候補としても研究が進められており、スピン状態の初期化やスピンの回転操作等、各種操作手法が発達してきた。そこで私は量子ドットと電極が結合したハイブリッド系における電子スピンのダイナミクスについて、量子ドット系のスピン操作手法と、半導体量子ドットを用いた局所電子状態プローブを用いて測定を行った。

まず、半導体微細加工により、ガリウムヒ素ヘテロ二次元電子基板を加工しメサ構造を作製し、さらにメサ上に微小金属ゲート電極を作製することにより、プローブとなる量子ドット、測定対象となる量子ドットと電極が結合した構造を作製した。そしてこの試料を希釈冷凍機を用いて冷却し、明瞭な量子ドット準位が観測される低温で測定を行った。

電極との結合によるスピン状態の変化を調べるために、測定対象としては2つの量子ドットが結合した二重量子ドットを用意した。まず電極電圧のパルス操作を通して、一方の量子ドットにおける2電子シングレット状態を準備し、そして1つの電子を他方の量子ドットに移動させ、スピン状態を初期化した。その後量子ドットで有限の時間だけ電極に結合させた。そしてその結果生じたスピン状態の変化について、スピン状態に応じて電荷遷移が制限される現象であるスピン閉塞と局所電子状態プローブを使って検出した。またこの際の量子ドットにおける電荷状態の変化についても、局所電子状態プローブの高速性を活用して検出した。

まず量子ドットにおける電荷遷移条件に近い（量子ドット内準位のエネルギーと電極のフェルミ面が近い）条件で、スピンおよび電荷状態の相互作用時間依存性を測定した。この結果、スピン状態が相互作用時間の増大と共に減衰し、スピンの情報が時間とともに失われる様子が観測された。この減衰の典型的な時間スケールは、実験したトンネルバリアの条件では3マイクロ秒であることが分かった。電荷状態についても変化を調べたところ、電荷状態が時間とともに変化する様子が観測され、この時間スケールは2マイクロ秒程度であ



電荷遷移条件近くで観測されたスピンと電荷状態の時間変化

ることが分かった。観測されたスピンと電荷の時間変化のスケールが同程度であることより、この状態変化について、量子ドットから電子が出入りする、電子の1次のトンネル過程によるものであることが分かった。

次に、量子ドットにおける深いクーロンブロッケード（量子ドット内準位のエネルギーと電極のフェルミ面が離れている）条件で、スピンおよび電荷状態の時間変化を測定した。電荷遷移条件近くと同じトンネルバリアではスピンの減衰を観測できなかったが、トンネルバリアを低くして電極との結合を強くしていったところ、スピン状態の減衰が観測された。スピンの減衰時間は5マイクロ秒であった。この際の電荷状態の変化を調べたところ、電荷状態の変化は観測されず、スピン状態のみが変化していることが分かった。電荷状態に変化が観測されなかったため、この状態変化について量子ドットから電子が流出する過程と流入する過程が同時に起こる2次のトンネル過程であることが示唆された。これを確かめるために電極のフェルミ面に対する量子ドット内準位のエネルギーを変化させてスピン状態の減衰を調べたところ、スピン状態変化の時間スケールが変化し、フェルミ面に近づくにつれて減衰が早くなる様子が観測された。その変化の様子は2次のトンネル過程を考慮した理論とよく一致することが分かった。またこの減衰の時間スケールについて、電極電圧により量子ドットと電極との結合を操作することによっても変化させられることを示した。

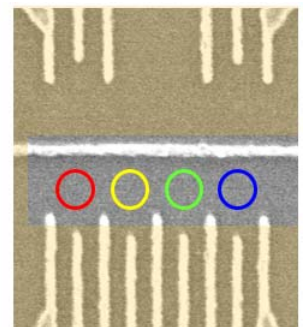
これらの結果は量子ドットと電極とのハイブリッド系におけるスピンドYNAMICSを観測したものであり、電極等の外界との相互作用を通じたスピン状態変化を示したものである。これらの知見は、電極等を通じた新しいスピン状態の操作や、開放系における状態のシミュレーション等を通して、固体微細スピンドバイス等の発展に貢献できる。

### ● 半導体微細材料中の量子状態測定への応用

高速局所電子状態プローブで確立した測定手法は様々な物性測定に応用が可能である。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。半導体量子ドット中の電子スピンは長いコヒーレンス時間を持ち、量子情報処理のための量子ビットとしての研究が活発に進められている。これまでに単一電子スピンの回転操作、2つの電子スピンのエンタングル操作など、量子情報処理に必要な基本的な量子ゲート操作が実現されている。そこで私は高速測定を利用してこの手法をさらに進め、高精度な測定を実現する量子状態の高速測定、大規模な量子ゲート操作に向けた多重量子ドット系の実現等について、主に測定の面で手法を適用した。量子情報処理に向けて大規模な量子ゲート操作を実現するためには、多数の量子ビットを実装した多重量子ドット試料が必要となる。従来は1重や2重量子ドットを用いたスピン量子ビット実験が主であったが、私たちは3重や4重量子ドットといった、スケールアップした量子ドット系を実現し、スピン操作を行った。

半導体微細加工により、ガリウムヒ素二次元電子基板を加工しメサ構造を作製し、さらにメサ上に微小金属ゲート電極を作製することにより、量子ドット試料を作製した。そしてこの試料を希釈冷凍機を用いて冷却し、明瞭な量子ドット準位が観測される低温で測定を行った。

特に量子ドットが4つ結合した4重量子ドットにおいては、まず各量子ドットに電子が1個ずつ蓄えられ、量子ビットとして使用できる少数電子状態を実現した。この測定においては高周波を用いた高速測定が活かされており、電荷状態を高速に検出することができた。次にスピン状態の読み出しに必要なスピン閉塞状態の形成を行った。4つの量子ドットを左右2



500 nm

4重量子ドット試料の電子顕微鏡写真

つの2重量子ドットに分けて、それぞれの2重量子ドットでスピン閉塞状態の探索を行った。トンネル結合を調整し、パルス電圧をかけることでシングレットトリプレット混合を利用したトリプレット状態形成を引き起こすことで、量子ドット間電子のトンネルが抑制されるスピン閉塞を観測した。さらにマイクロ波電圧を量子ドットを形成する金属電極に印加することにより、電子スピン共鳴を実施した。マイクロ波電圧により、量子ドットの位置を周期的に変調することができる。また4重量子ドット試料の直上に微小磁石を形成することにより、量子ドットの位置に磁場勾配を生じさせ、この磁場勾配の中で電子が周期運動することにより、振動有効磁場が生じ、電子スピン共鳴が起こる。実際に測定を行ったところ、4つの量子ドットに対応した電子スピン共鳴信号を観測することができた。

これらの結果は固体中量子状態の精密制御、観測という基礎科学の面で重要であるだけでなく、今後大規模な量子アルゴリズムを実行し、量子コンピューティングを実現するという応用に向けても重要なステップとなる。