

## 研究課題別評価書

### 1. 研究課題名

異種原子組み替えによる固体表面量子ビットの実現

### 2. 氏名

阿部 真之

### 3. 研究のねらい

(Scanning Tunneling Microscopy: STM)を用いた原子操作は、金属表面に希ガス元素や分子を吸着させて行われてきた。つまり、STMの探針で原子や分子を動かし易くするために、動かされる原子・分子と表面は、弱い吸着力で結びつく材料の組み合わせが必要であり、それらが熱拡散しないように極低温環境下で行われてきた。このような原子操作実験の現状から、Kane型量子コンピュータで提案されているようなP/Si系での原子操作は原子同士が強い共有結合をするため、P原子を動かすことは非常に困難である(B. E. Kane, Nature (London) **393**, 133 (1998).)。したがって、Kane型の量子コンピュータの実現は困難であると考えられてきた。

我々のグループでは、試料表面に埋め込まれている原子を動かすための手法(原子組み替え、図1(a))を発見し、文字を書くことに成功していた(図1(b)、Nature Materials **4**, 156 (2005).)。この方法は、周波数変調方式の原子間力顕微鏡(Frequency Modulation Atomic Force Microscopy: FM-AFM)を用いて、隣接する二つの原子位置を入れ替える。動かされる原子は埋め込まれているので、実験は室温でも可能であることがこの手法の利点である。一方、この手法で原子を並べるには、いくつかの条件を満たさなければ不可能であり、数多くのP原子をSi基板表面で緻密に配列するためには解決すべき課題があった。主な課題を以下に示す。

(課題1) 原子組み替えは熱エネルギー $kT$ を利用しており、実験は室温環境下で行う必要がある。しかし、室温環境下では熱ドリフトによって探針-試料間の相対位置のずれが生じるため、熱ドリフトが小さい非常にまれな時にしか実験ができない。さらに、熱ドリフトが小さいとしても、それがなくなることはなく、原子組み替え実験の精度を向上させることができない。

(課題2) 配列させるP原子は、Si(100)面第一層目に存在することを想定しているが、Si(100)表面には様々な欠陥、吸着原子(主に水素と考えられる)が存在し、P原子とこれらの不純物を識別する必要がある。元素の識別の単純な方法は凹凸を比較することで行われているが、複数の原子・欠陥が存在する表面で、凹凸の違いによる比較は難しいと考えられる。したがって、試料の凹凸以外で原子種を識別する方法が必要となってくる。

(課題3) 表面科学の分野では、P/Si(100)に関する研究は、この表面を作成することが難しいため、これまであまり行われてこなかった。

以上をふまえて本研究では、探針-試料間の位置制御技術、表面原子識別技術、原子組み替えに必要な力の定量化や原子組み替え手法の検討、P/Si(100)表面における原子間力顕微鏡の観察条件、に関して主に研究を行ってきた。

### 4. 研究成果

**【研究方法】** 本研究では、上述したFM-AFMを用い、原子組み替えを行うための課題解決を行うことを目的としている。具体的には、FM-AFMで試料表面原子を観察し、原子種を識別し、原子の組み替えを行う。FM-AFMの動作原理を図2に示す。FM-AFMでは、カンチレバーのばね定数と

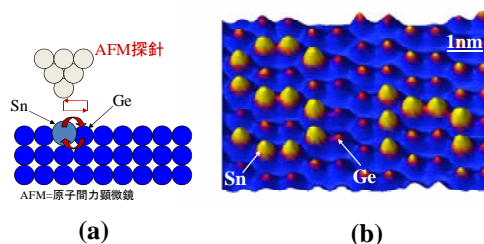


図1 (a) 原子組み替えの模式図と(b) 原子組み替えで作成した原子文字。

AFM探針の質量で決まる機械的共振周波数  $f_r$  で一定の振幅で振動させる(図2(a))。AFM探針を試料表面に近づけると、試料表面との相互作用力によって、共振周波数の変化(周波数シフト $\Delta f$ )が生じる(図2(b))。FM-AFMでは $\Delta f$ を測定し、試料表面の画像を得る。通常の測定は $\Delta f$ が負となる領域(引力領域)で行う。凹凸画像を測定するためには、 $\Delta f$ が一定になるように探針－試料間距離のフィードバック制御を行う。STMと異なる点は、STMがトンネル電流を測定するため導電性試料でしか測定できないが、FM-AFMは探針先端の原子と試料表面原子の相互作用力を検出するため、原理的にはどのような試料も測定が可能となるにある。

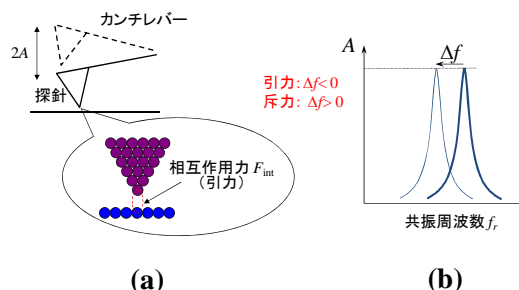


図2 FM-AFMの動作原理。相互作用力によって生じた、カンチレバーの共振周波数の変化(周波数シフト)をとらえる。

**【研究成果】** プロジェクトの成果のいくつかを以下にあげる。

成果1：ピコメートルオーダーでの探針位置決め技術の開発

上述の(課題1)に示した熱ドリフトの影響を抑える技術の開発に成功した。具体的には、探針先端原子を試料表面の任意の原子位置に固定できるもので、熱ドリフトによる位置のずれを一種のフィードバックによって補正している(アトムトラッキング、Appl. Phys. Lett. **87**, 173503 (2005)、Nanotechnology **16**, 3029 (2005))。さらに、あらかじめ熱ドリフト挙動を予測し位置の補正を行う(フィードフォワード)(Appl. Phys. Lett. **90**, 203103 (2007))ことを可能にした。アトムトラッキングとフィードフォワード技術を、試料表面の測定に適用した。図3は Si(111)-(7x7)表面の FM-AFM 測定を室温環境下で行った結果である。図3(a)-(c)は熱ドリフト補正を行いながら連続して、画像測定を行った結果であり、図3(d)-(f)は補正を行っていない場合である。測定範囲を固定しているにもかかわらず、補正を行っていない場合((d)-(f))は画像化されている位置がずれていっているが(図中の星印参照)、補正を入れている場合((a)-(c))は原子位置が同じであることがわかる。このようにアトムトラッキングとフィードフォワードを組み込むことで室温環境下でも、擬似的に極低温環境を作り出すことを可能にした。この結果、室温環境下であっても、探針の動きを精度良く制御できることが可能となり、FM-AFM を用いた原子識別や原子操作の実験のレベルや再現性が飛躍的に向上した。

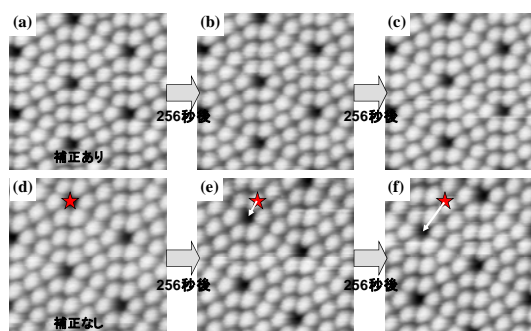


図3 Si(111)-(7x7)表面におけるFM-AFMの連続測定の画像。測定は室温で行った。(a)-(c)熱ドリフト補正を入れた場合の画像、(d)-(f)熱ドリフト補正なしの場合の画像。

成果2: 原子識別手法の確立

(課題2)に対する試料表面原子種を識別するための手法として、フォーススペクトロスコピーを利用することを考案した。フォーススペクトロスコピーは、探針原子と試料原子の間に働く力の距離依存性を求める方法である(図4)。フォーススペクトロスコピーを高精度に行うことで、原子種の識別だけでなく、表面活性度、結合半径、結合力、結合ポテンシャル、電荷移動、原子間の絶対距離といった、力学測定固有の局所的な情報を抽出することが可能になる。この測定手法は、

「原子レベル」という観点から走査型トンネル分光(STS) (R. J. Hamers, R. M. Tromp, and J. E. Demuth: Phys. Rev. Lett. **56**, 1972 (1986))や非弾性トンネル振動分光(IETS、例えば B. C. Stipe, M. A. Rezaei, and W. Ho, Science : **279**, 1907 (1998))に匹敵する価値があり、さらには絶縁体へも利用できることから、新しい物性計測手法として期待される。しかしながら、以下に示すような課題があり信頼性のある測定が困難であった。第一に、原子レベルの局所的フォーススペクトル測定を行うには、探針をねらった原子の真上に固定する高精度の位置決めが必要である。特に、室温や液中ではいわゆる「熱ドリフト」のため探針と試料の相対位置が3次的に変化し、高精度な測定は困難であった。第二に、FM-AFM の測定量はカンチレバーの共振周波数変化(周波数シフト)であり、力やポテンシャルを求めるには数値変換を行う必要がある。変換アルゴリズムはノイズに敏感であるため、測定量である周波数シフトのノイズを極力下げる必要があるが、カンチレバーの熱ゆらぎや回路帯域によって、力へ変換できるくらいにノイズを下げることは困難であった。また、一般的なローパスフィルタや移動平均でフィルタ処理をした場合、その影響が  $F$ - $Z$  曲線や  $U$ - $Z$  曲線の形状に現れてしまうためフ

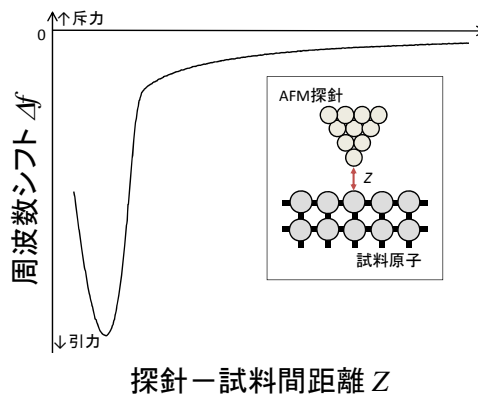


図4 探針－試料間距離  $Z$  を変えたときの周波数シフト  $\Delta f$  の変化 ( $\Delta f$ - $Z$  曲線)。フォーススペクトロスコピーはこの  $\Delta f$ - $Z$  曲線を測定する手法である。

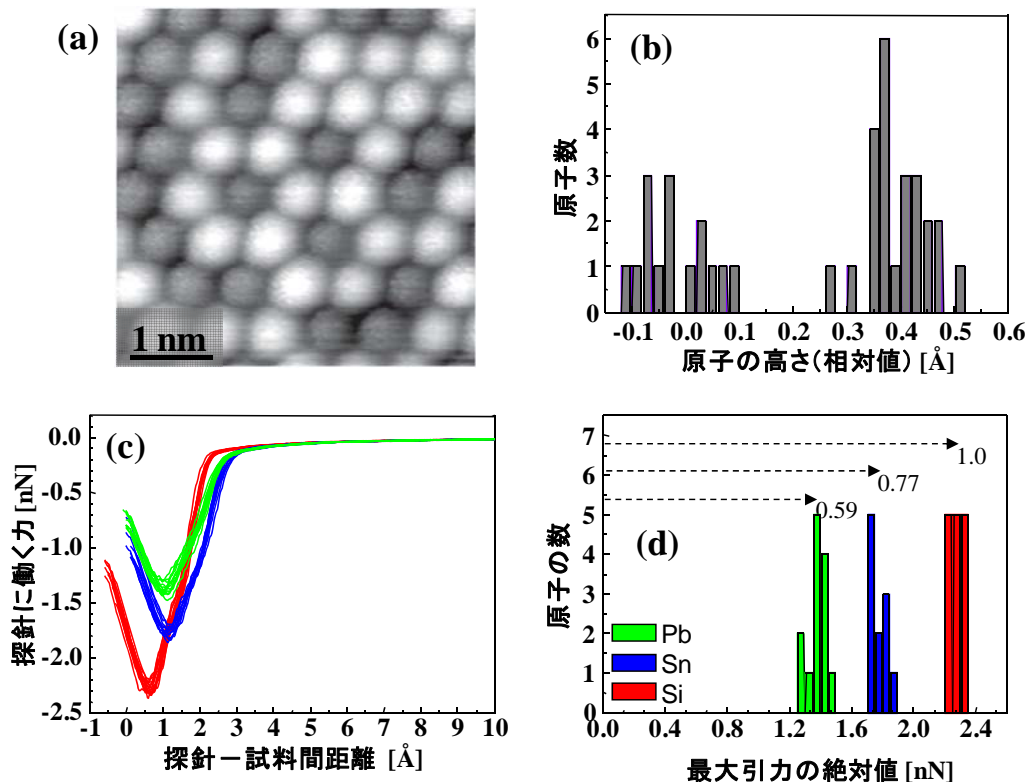


図5 (a) Si および Pb、Sn が混在する表面の FM-AFM 凹凸像。(b)図(a)のそれぞれの原子の高さのヒストグラム。(c)図(a)のそれぞれの原子におけるカー距離曲線測定の結果。(d) カー距離曲線測定の結果から得られた最大引力値のヒストグラム。

フィルタの使用は注意して行わなければならない。実際、フォーススペクトロスコピーの測定は、熱ドリフトが無視できる低温環境下のみで行われていなかった。しかも、極低温環境下であっても得られた力と距離の曲線の形状も物理や化学の教科書で示されているような理論計算による結果とは少し異なるものが得られていた。

そこで、成果1の技術を利用して熱ドリフトの影響を排除し、探針と試料原子の位置をピコメートルオーダーで制御できる手法を考案した。室温環境においてもフォーススペクトロスコピーを行うことが可能となり、測定データの再現性も大幅に改善された。その結果、フォーススペクトロスコピーのノイズレベルを5～10倍向上することが可能になり、原子識別への利用が可能となった。

フォーススペクトロスコピーによる原子種識別の例を行った結果を図5に示す(Nature 446, 64 (2007))。Si(111)-(7x7)清浄表面上に、SnとPb原子を蒸着しアニールすることで、SiおよびSn、Pbの3つのアドアトムが表面に混在する表面を作成し、FM-AFM測定を行うと、図5(a)のような画像が得られた。明るい(原子位置が高い)原子と暗い(原子位置が低い)原子の2種類があるように見える。そこで、図5(a)中にあるそれぞれの原子の位置(相対的な高さ)のヒストグラムを作成し、3原子種の高さの違いが得られるかどうかを確認したが、図5(b)に示すように、高さの分布から3種類の原子の種類を識別することはできなかった。そこで、図(a)中の39個の原子上でフォーススペクトロスコピーを行い、測定量である $\Delta f$ -Z曲線からF-Z曲線を求めた(図5(c))。F-Z曲線は3つのパターンがあることがわかり、それぞれの曲線の最大引力のヒストグラムを求めた(図5(d))。その結果、ヒストグラムの分布が三つに分かれ、最大引力の値が一番大きいグループの平均値を1.0とすると残り二つのグループの平均値はそれぞれ0.77および0.59であった。これは、Sn/Si(111)-( $\sqrt{3}\times\sqrt{3}$ )およびPb/Si(111)-( $\sqrt{3}\times\sqrt{3}$ )表面におけるSn/SiおよびPb/Siの最大引力値の比と同じであることから、それぞれがSnおよびPb原子であることがわかり、凹凸からは識別できなかった原子がフォーススペクトロスコピーで識別できることがわかった。

実験を進めて行くにつれて、フォーススペクトロスコピーだけで原子種の識別を行うには、原子組み替え実験の効率が悪くなると判断し、新しい原子識別方法を考案した。具体的には、フォーススペクトロスコピーの測定概念を拡張した、探針と試料の相互作用力場を2次元的に視覚化するフォースマッピングによる原子種の識別(図6、Appl. Phys. Lett. 94, 023108 (2009))や、画像として原子を識別する手法を開発した(図7、Appl. Phys. Lett. 94, 023108 (2009))。

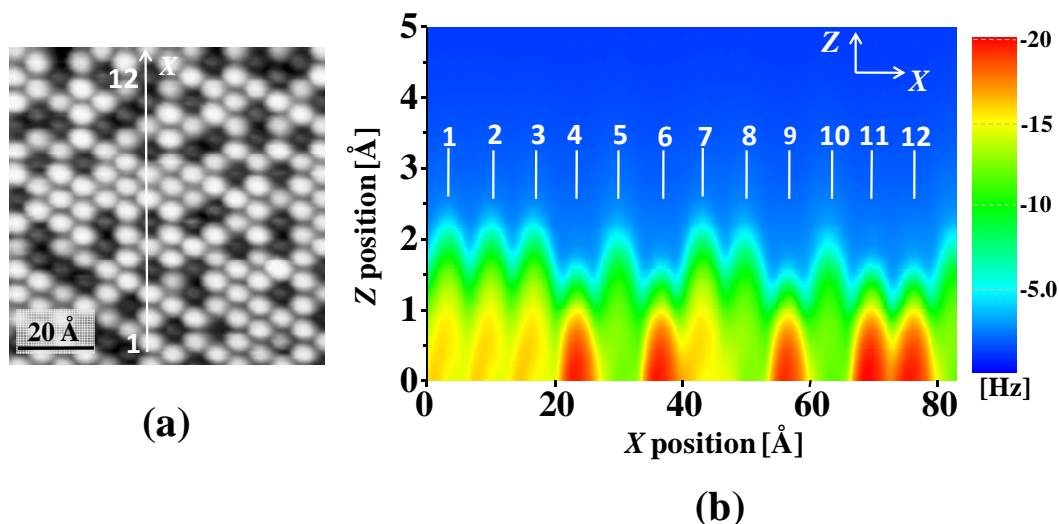


図6 (a)Si および Pb、Sn が混在する表面の FM-AFM 凹凸像。(b)図(a)上の矢印で行った二次元フォースマッピング。凹凸像では明暗2種類しか区別できないが、フォースマッピングでは、3つのパターンが認識できている。



### 成果3 : P/Si (100) 表面における FM-AFM 高分解能測定

半導体デバイスの研究において、Si 原子中の P 原子は、ドーパントとして重要な材料であるにもかかわらず、原子分解能で観察されることはあまりなかった。さらに、Si(100) 表面における P 原子の測定はほとんど行われてこなかった。これは、P 原子を超高真空中で扱うことが困難であるからであると考えられる。通常は、 $\text{PH}_3$  を使用するのが一般的であるが、猛毒であるため、使用することができなかった。さらに、基板である Si(100) 表面は活性であるため、清浄表面を作成するのが難しいとされている。また、FM-AFM での Si(100) 表面の測定を安定に行った測定例がなかった。

清浄な Si(100)-(2x1) 表面を実現するために、試料作成中の真空度や試料温度をモニターしながら試料を自動的に作成するシステムを構築し、さらに FM-AFM の観測条件を詳細に調べることで、安定に Si(100)-(2x1) 表面を測定することが可能となった(図8(a), Jpn. J. Appl. Phys. **47**, 6085 (2008))。さらに、超高真空中で P 原子を Si(100)-(2x1) 表面に吸着させるために、InP 基板を用いて加熱し、In 原子は基板正面のスクリーンに蒸着させ、真空中に  $\text{P}_2$  分子を放出させることで、Si 基板への吸着を行った。その結果、P 原子を埋め込んだ Si(100) 面の FM-AFM 測定を行うことが可能となった(図8(b))。

### 成果4 : 室温における原子操作に必要な力の定量測定

原子組み替えの特徴は、埋め込まれている原子を室温環境で動かすことができるところにある。この場合、AFM 探針を用いて、試料の原子間の結合を切りながら原子を動かすことになる。再現性良く原子組み替えを行うためには、原子操作に必要な力を見積もりたいと考えている。図9は室温における原子操作実験の一例である。Si(111)-(7x7) 表面において、空欠陥が存在するハーフユニットセルに着目し、空欠陥

に隣接する Si アドアトムを、空欠陥に移動する原子操作の実験を行った結果である(Phys. Rev. Lett. **98**, 106104 (2007))。空欠陥に隣接する原子を移動するので、原子組み替えではないが、定量性を議論するためにこの表面で実験を行った。Si アドアトムの移動は、動かしたい Si アドアトムと空欠陥の方向に AFM 探針を走査するが、通常の画像測定よりも探針を試料に近づけ、通常の

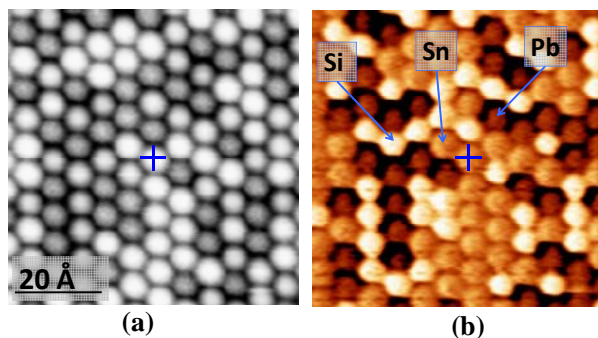


図7 (a) Si および Pb、Sn が混在する表面の FM-AFM 凹凸像。(b) 同じ領域で同時測定した原子識別像。

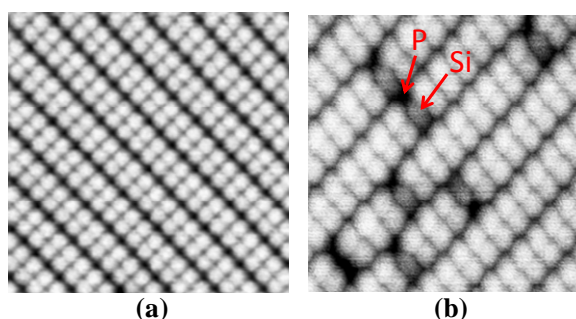


図8 (a) Si(100)-(2x1) 表面と (b) P/Si(100)-(2x1) 表面の FM-AFM 像。

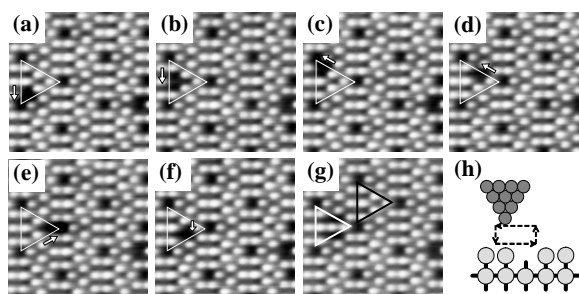


図9 Si (111)-(7x7) 表面における原子操作。空欠陥の存在するハーフユニットセル内で、空欠陥に隣接するアドアトムを空欠陥側に移動させ、その前後で FM-AFM 凹凸像を測定した。

画像測定とは異なる走査を行っている。具体的には、図9(h)に示すように、アドアトムを空欠陥へ動かす向きには AFM 探針を試料に近づけ走査し、いったん相互作用領域からはずれる場所まで探針を離してからはじめの場所に探針を戻す。これを数回繰り返していくとアドアトムは空欠陥へ移動する。図9(a)から(g)は連続的に原子操作を行った結果である。画像と測定する場合と原子を動かす場合に必要な周波数シフト $\Delta f$  から力とポテンシャルを計算したのが、表1である。シミュレーションの結果から Si 原子と隣接する欠陥とのバリアハイトが約 1.2 eV であることから、非常に小さいポテンシャルエネルギーで原子が動いていることがわかった。この結果は、原子の移動(組み替え)には熱的エネルギーの効果や探針に働く横方向の力の寄与が大きいことを示している。横方向の力の寄与を求めるために、フォースマッピングから横方向の力を求めるための方法を考案しており(Phys. Rev. B 77, 195424 (2008))、今後、原子組み替えの定量実験に使いたいと考えている。

表 1 図 9 の実験における探針に働く力とポテンシャル

実験	探針にかかる力	ポテンシャル
画像化	-0.16 nN	-0.065 eV
原子操作	-0.47 nN	-0.127 eV

#### 成果 5：新しい原子操作モードの発見

原子組み替えでは、隣接する原子を AFM 探針で入れ替えるが、この手法で実際にキュービットとなる P 原子を並び替えるには非常に時間がかかる。この課題を解決できるかもしれない原子操作の新しいモードを発見した(Science 322, 413 (2008))。この方法では、探針先端にある原子をペン先のインクのように試料表面に落としていき、埋め込んでいく(原子ペン)。この方法では、一つの原子を並べるのに一回の原子操作で完了するので非常に効率がよい。この方法で文字を書いた結果を図10に示す。画像測定時間も含めて1時間半程度で作成することができた(図1(b)は9時間必要であった)。

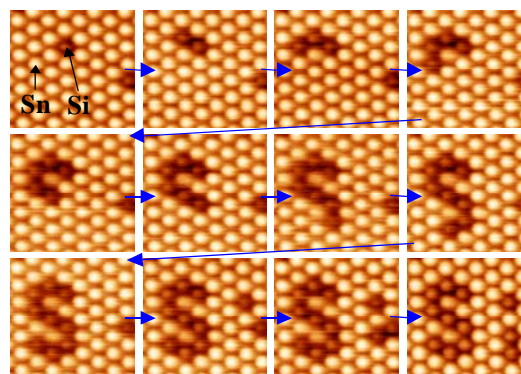


図 10 “原子ペン”による原子文字。

#### 5. 自己評価

上述した「成果1」が本研究課題のすべてであったと考えている。「成果2」と「成果3」はそれぞれ、海外の理論グループとの連携もありNature誌とScience誌に採択されたが、「成果1」の結果がなくてはこれらの結果を得ることができなかった。原子組み替えを100%の確率で行うためには、原子種の識別や原子組み替え実験の定量化は必須であり、これらの課題は達成できたと考えている。一方、P/Si(100)清浄表面の作成条件とAFMの測定条件の解明に関しては、予想していた以上に困難であった。Si(100)表面が非常に良い真空度が必要( $1 \times 10^{-8}$  Pa以下)である上、AFM測定は走査型トンネル顕微鏡(STM)よりも探針-試料間距離が小さいため、測定時に試料表面を破壊してしまうことがわかった。さらに、P原子を真空装置に導入するには、猛毒の $\text{PH}_3$ からPを分離する必要がある、大学での取り扱いが困難であった(結果的には別の方法を確立したが)。この結果、当初の予定であったP/Si(100)清浄表面での実験を進めることができなかった。

#### 6. 研究総括の見解

極めて多くの重要な成果を上げられているので、とても詳述できませんが、基本的にはピコメートルオーダーでの探針位置決め技術の開発がキーになっています。その上に立ってシリコン表面上に置かれた原子を識別する手法の確立とP/Si(100)表面におけるFM-AFM高分解能測定で

世界をうならせたと思います。両方とも、いずれ量子計算機の固体素子を作る上で重要な要素技術になると思います。一方、それ自体も興味深く、多くの人が使えるようにして下さる研究もされたので、今後は標準的になるのでは、と期待しています。また、予想外の展開として阿部さんの武器であるカンチレバーが量子制御の発展と繋がっていく可能性も最近出てきて、さきがけ領域会議では大いに盛り上がりました。将来有望な研究です。

## 7. 主な論文等

### 【A さきがけの個人研究者が主導で得られた成果】

#### ①論文

1. Y. Sugimoto, T. Namikawa, M. Abe, and S. Morita: “Mapping and imaging for rapid atom discrimination: A study of frequency modulation atomic force microscopy”, *Applied Physics Letters* **94**, 023108 (2009).
2. Y. Sugimoto, P. Pou, Ó. Custance, P. Jelinek, M. Abe, R. Pérez, and S. Morita, “Complex Patterning by Vertical Interchange Atom Manipulation Using Atomic Force Microscopy”, *Science* vol.322, 413 (2008).
3. Y. Sugimoto, K. Miki, M. Abe, and S. Morita, “Statistics of lateral atom manipulation by atomic force microscopy at room temperature”, *Physical Review B* vol.78, 205305 (2008).
4. M. Abe, Y. Sugimoto, T. Namikawa, K. Morita, N. Oyabu, and S. Morita, “Drift-compensated data acquisition performed at room temperature with frequency modulation atomic force microscopy”, *Applied Physics Letters* **90**, 203103 (2007).
5. Y. Sugimoto, P. Pou, M. Abe, P. Jelinek, R. Pérez, S. Morita & Ó. Custance, “Chemical identification of individual surface atoms by atomic force microscopy”, *Nature* **446**, 64–67 (2007).

#### ②特許出願

なし

#### ③受賞

1. 計測自動制御学会賞(技術賞) 計測自動制御学会、業績名:“ピコメートルオーダーでの高精度位置決め技術の開発と原子レベル物性計測への応用”、平成20年8月21日
2. ナノプローブ賞 日本学術振興会第167ナノプローブ委員会、業績名:“原子間力顕微鏡で原子識別や原子操作を行うための新技術”、平成20年4月24日

#### ④著書

1. Masayuki Abe, “Precise Force Measurement” Chap. 2 in “Noncontact Atomic Force Microscopy vol.2”, 2009 年出版予定(Springer)

#### ⑤学会発表

1. M. Abe, Y. Sugimoto, and S. Morita, “Atomic force techniques for nano-engineering”, 2008 International Symposium on Physics of Quantum Technology, TU-K9
2. Y. Sugimoto, T. Namikawa, K. Miki, M. Abe, and S. Morita, “Vertical and lateral force mapping on the Si(111)-(7x7) surface by dynamic force microscopy”, The 11th International Conference on Non-contact Atomic Force Microscopy(NC-AFM) (2008).
3. M. Abe, Y. Sugimoto, K. Miki, T. Namikawa, and S. Morita, “Imaging and Mapping for discriminating atom species using Non-contact Atomic Force Microscopy”, The 11th International Conference on Non-contact Atomic Force Microscopy(NC-AFM) (2008).
4. M. Abe, Y. Sugimoto, O. Custance, and S. Morita: “Drift-compensated data acquisition performed at room temperature with frequency modulation atomic force microscopy”, 17th International Vacuum Conference, July 2–6 2007, Stockholm, Sweden (NSP1–76).

⑥招待講演

1. 阿部真之: “LabVIEW で原子を見て動かす”, LabVIEW Days 2007, 2007/11/22, ザ・プリンスパークタワー東京.
2. M. Abe: “Interchange atom manipulation toward the fabrication of solid quantum devices”, Handai Nanoscience and Nanotechnology International Symposium 2006, Nov. 20-22, Osaka University Nakanoshima Center, Japan (O-4-3).

【B その他の主な成果】

①論文

なし

②特許出願

なし

③受賞

なし

④著書

なし

⑤学会発表

なし

⑥招待講演

なし