



第772次学术讨论会·原子制造前沿科学问题



超高真空扫描探针辅助的量子器件原子级制造技术

杨嘉琪, 李宇昂, 李雪妍, 潘毅*

西安交通大学材料科学与工程学院, 自旋电子材料与量子器件研究中心, 金属材料强度全国重点实验室, 西安 710049

* 联系人, E-mail: yi.pan@xjtu.edu.cn

2025-06-26 收稿, 2025-10-08 修回, 2025-10-09 接受, 2025-10-10 网络版发表

国家重点研发计划(2022YFA1204100)和国家自然科学基金(12074302)资助

摘要 原子级精准的器件制造技术作为突破光刻工艺线宽极限的关键, 有望成为未来固态量子器件等原子级精度芯片和传感器的新型生产工艺, 且因与半导体工艺和材料兼容而具有通用性. 当前, 该技术已在国际上逐渐兴起, 科研人员利用扫描隧道显微镜原子操纵方法成功在硅基体系中实现单原子级演示芯片, 初步验证了原子制造策略的有效性. 本文从工艺流程、原子操纵/刻蚀方法、电极沉积与封装等方面介绍了面向未来固态量子芯片的超高真空扫描探针辅助原子级精准器件制造技术的前沿现状. 首先简要回顾了该技术的发展过程, 并提出了全真空环境下固态量子器件的制造工艺路线, 随后基于扫描隧道显微镜原子操纵/刻蚀方法, 详细介绍了固态量子器件制造的关键步骤与发展过程, 最后总结并分析了该技术在未来应用方面的主要难点和可能的解决思路.

关键词 扫描隧道显微镜, 原子操纵, 原子级精准制造, 固态量子器件

随着传统半导体芯片工艺线宽逐渐逼近光刻技术的物理极限, 新型量子芯片的开发与原子级精度芯片制造技术的创新已成为突破技术瓶颈的重要途径之一^[1-3]. 其中, 固态量子芯片在众多量子计算实现路线中因与成熟半导体工艺兼容而易于实现大规模集成化、工程化, 具有独特的优势^[4]. 而互补型金属氧化物半导体工艺(complementary metal-oxide-semiconductor, CMOS)作为当前成熟半导体工艺中广泛应用的制造技术, 为固态量子芯片的发展提供了坚实基础. 近些年, 基于硅材料的量子点方案受到了科研人员的持续关注. 它通过在硅基衬底中构建量子点并利用束缚电子或原子核的自旋量子态作为量子比特, 具有自旋弛豫时间长、兼容CMOS工艺、可扩展性强等特点, 是当前极具产业化前景的平台之一^[5-7]. 然而, 构建真正可用的

量子计算系统需集成数十万乃至百万量级高保真物理量子比特, 对器件的原子级精度控制与规模化制备提出了极高要求, 这已超出当下硅工艺的技术范围. 面对这一重大技术难题, 实现真正的半导体基固态量子器件亟需原子级制造技术的突破. 基于此, 我国研究人员提出引入原子及近原子尺度制造(atomic and close-atomic scale manufacturing, ACSM)技术突破现有加工极限, 以显著提高制造精度^[1]. 与此同时, 我们国家高度重视未来原子级制造的科学探索 and 产业发展, 国家自然科学基金委员会于2023年召开了以“原子级制造的基础科学问题”为主题的论坛(www.nsfc.gov.cn/p1/2855/3129/73458.html). 通过该论坛及系列后续研讨, 我国科研领域逐渐凝聚了原子级制造前沿领域的发展方向共识, 并从理论框架、技术路径、应用制造等多

引用格式: 杨嘉琪, 李宇昂, 李雪妍, 等. 超高真空扫描探针辅助的量子器件原子级制造技术. 科学通报, 2026, 71: 3598–3611

Yang J, Li Y, Li X, et al. Ultra-high vacuum scanning tunneling microscope-assisted atomic-scale manufacture of quantum devices (in Chinese). Chin Sci Bull, 2026, 71: 3598–3611, doi: [10.1360/CSB-2025-5148](https://doi.org/10.1360/CSB-2025-5148)

个方面展开了系统性探索^[1,8-13]。这些举措将大力促进相关方向的协同发展,助力我国在超高真空扫描探针辅助的量子器件原子级制造技术领域走向世界前列。

目前,美国英特尔公司、澳大利亚新南威尔士大学和荷兰代尔夫特大学在与CMOS工艺兼容的半导体量子芯片领域居于领先地位。2022年,英特尔和QuTech采用先进晶体管制造技术,在300 mm硅晶片上实现了量子比特的规模化制备^[14]。该技术通过光学光刻和工业化处理,在硅表面实现了量子点的构筑。然而将现有光刻工艺用于量子器件制造时仍面临精度不足的问题。相比之下,扫描隧道显微镜(scanning tunneling microscope, STM)的原子(分子)操纵技术与分子束外延(molecular beam epitaxy, MBE)生长技术这两种可靠的原子制造手段,在规模化制备、控制原子精度等方面展现出巨大发展潜力^[15]。Brien等人^[6]在21世纪初就利用STM在硅表面实现了具有原子级精度的单磷分子线性阵列,并验证了其尺寸能够完全满足硅基量子计算机的制造要求。STM由IBM苏黎世实验室的Binnig和Rohrer首次发明,它通过导电探针与样品表面之间的局域隧穿电流成像,能够对材料表面结构和电子结构进行原子级精准测量。其核心部件导电探针一般由毫米尺度直径的钨丝制成,经电化学刻蚀后可达原子级精度。基于STM基本原理,后续衍生出了原子力显微镜、磁力显微镜等多种扫描探针技术。这些技术通过探针与样品表面的不同相互作用(如力、磁等)实现多样化表征。1990年, Eigler和Schweizer利用STM探针在Ni(110)表面精确操控35个Xe原子,成功构筑了原子级精度的“IBM”图案,这一关键工作标志着STM原子操纵技术的诞生,开启了单原子尺度器件的新纪元^[16]。利用这种技术,人们能够在特定材料表面搬运单个原子或分子,从而构筑具有特定功能的人工量子结构。1997年, Wada系统论证了STM在纳米/分子器件制备中的应用潜力^[17]。随后, Tucker和Shen于1998年提出了利用STM制备原子级器件的制造方案,并通过实验初步验证了其可行性,为后续研究奠定了基础^[18]。此外,非接触原子力显微镜(non-contacted atomic force microscopy, NC-AFM)同样可以在特定体系中实现原子级分辨成像与单原子操纵^[19,20]。它通过针尖与衬底之间的原子间相互作用力实现原子操纵,因此在绝缘体衬底上具有独特优势^[21];然而,其目前的操纵成功率与精度方面仍然落后于STM。未来,随着技术发展与优化,NC-AFM有望应用于绝缘衬底上原子级器件的构筑工艺中。

近几十年来,利用STM在硅材料中构筑人工结构以实现硅基量子器件的技术正飞速发展。该技术经历了由大到小,最终到单原子尺度的演化历程,为硅基固态量子计算机及其框架下量子器件的实现提供了实验依据。在这一领域,澳大利亚新南威尔士大学Simmons教授的研究团队持续推动该方向发展。该团队基于Kane提出的硅基磷掺杂量子计算模型^[22],将STM氢(H)原子操纵技术与MBE外延生长技术相结合发展出了一套完整的原子级制造工艺。该工艺的核心在于利用STM针尖精准操控硅表面氢钝化层中H原子的脱附^[23,24],形成具有原子级精度的图案化模板;随后利用MBE实现磷化氢(PH₃)分子在脱附区域的吸附、解离及硅外延生长^[25]。当前该技术已经在量子器件制作中得到了验证与全流程应用^[26,27]。2003年,他们通过该工艺实现了磷原子的精准掺杂和图案化控制,为硅中磷掺杂量子比特的可控制备提供了技术支持^[28]。2019年,该团队贺煜和Gorman等人^[29]利用该方法创建出了首个硅中双原子量子比特门,其操作可在0.8 ns内完成,比目前其他基于自旋的双量子比特门快200倍,这是构建原子级量子计算机的一个重要里程碑。此外, Hill等人^[30]将STM与MBE结合的方法从面内磷掺杂扩展到三维空间,提出了一种垂直三维器件结构。该结构可实现量子比特的同步并行控制与读取,并能够以高精度读出单个磷原子上单个电子自旋态。为实现真正器件的转化,2022年,由Simmons带领的团队^[27]构建了世界上首款硅量子处理器,将实验室成果向产业化推进了一步。当前该领域发展非常迅速,随着技术成熟与产业化发展,未来数年内将迎来快速增长。

国内利用STM开展原子操纵研究开始于20世纪90年代中期,中国科学院真空物理实验室庞世谨团队^[31]在Si(111)表面刻蚀出了原子级尺寸的纳米沟槽,并且构筑了“中国”字样的人工图案;中国科学院物理研究所高鸿钧院士团队^[32]利用STM首次实现了对Si(111)-7×7表面的超高分辨率成像,为后续单原子刻蚀与掺杂技术发展奠定了基础。近年来,高鸿钧院士团队进一步利用超高真空STM技术在拓扑量子结构及其阵列^[33,34]、分子自旋链^[35]和单分子异质结^[36]等方面取得系列突破;南京大学丁海峰团队在贵金属表面利用原子操纵技术构筑原子级精确的“量子围栏”^[37,38],系统研究了其量子尺寸效应,成功构建了基于人工量子结构的信息逻辑运算原型器件;西安交通大学潘毅团队与合作者致力于III-V族半导体表面In增原子的操纵

与低维量子结构制备^[39,40], 获得了能级展宽小于5 meV的高精度全同性人工量子点, 这一系列成果为实现半导体量子器件与分子器件设计提供了新范式. 近年来, 国内科研团队在硅基固态量子芯片方面也取得良好进展. 2022年, 郭光灿院士团队^[41]开发硅基量子芯片工艺, 实现了多量子比特纠缠操纵. 南方科技大学贺煜研究团队^[42]则致力于硅基单原子量子器件的集成与高保真度量子模拟. 中国科学院微电子研究所殷华湘团队^[43]将原子级精度制造与CMOS工艺结合, 提出了一种基于成熟硅基高k/金属栅FinFET工艺的量子点器件集成方案, 在硅基量子比特制造方面取得突破. 这一系列由基础研究到器件应用的全方位探索, 为我国在固态量子芯片的原子级制造领域实现技术追赶和跨越提供了重要支撑.

本文主要介绍基于扫描隧道显微镜原子操纵技术的原子级固态量子器件制造的研究进展. 首先, 我们通过总结本领域前期进展, 结合与国内同行的多次讨论, 提出并设计了扫描探针辅助的全真空量子器件制造工艺路线; 其次, 详细阐述了涉及超高真空技术的单原子刻蚀与掺杂工艺的关键步骤和技术难点; 同时, 综述并分析了基于扫描隧道显微镜构筑人工量子结构并将其应用于量子器件制造的最新研究进展与可行性; 进而, 深入讨论了量子器件实用化进程中电极沉积、封装与测量三大核心内容的发展现状; 最后, 总结了该技术在将来应用方面面临的主要技术瓶颈, 并提出了可能的

解决思路.

1 扫描探针辅助原子级制造工艺路线

经过长期摸索, IBM实验室率先总结出了与半导体工艺兼容的硅基固态量子器件制作流程^[44]. 他们提出可以将利用STM原子操纵工艺构筑的人工结构、纳米导线与利用CMOS工艺制作的金属电极、预埋对准标记结合起来, 从而实现原子精度的硅基量子器件制造. 该流程首先利用CMOS工艺在SiO₂表面预埋电极并做好标记, 然后沉积Si制备SOI(绝缘体上的Si)作为STM原子操纵的衬底, 接下来在超高真空环境下利用STM与MBE完成人工结构构筑与纳米级介电层“封装”, 最后在“封装层”上的电极制作等后处理流程中引入传统CMOS工艺沉积具有良好接触的电极完成器件制作. 利用这种方法可以实现亚纳米尺度的原子级人工结构与微米尺度的电极的良好结合, 并且使STM构筑的量子结构获得良好保护, 从而可以脱离真空环境进行测量.

近些年来, STM原子操纵领域又有诸多新的进展, 一方面STM辅助的单原子精度刻蚀和缺陷调控扩展到了更多材料体系, 另一方面III-V半导体表面的纵向原子操纵趋于成熟. 基于这些进展, 我们提出一套适用Si及其他半导体衬底的固态量子器件原子级制造的通用工艺路线, 如图1(a)所示. 该路线包括三个部分: 核心为中间原子级制造工艺, 在其前端和后端采用传统CMOS

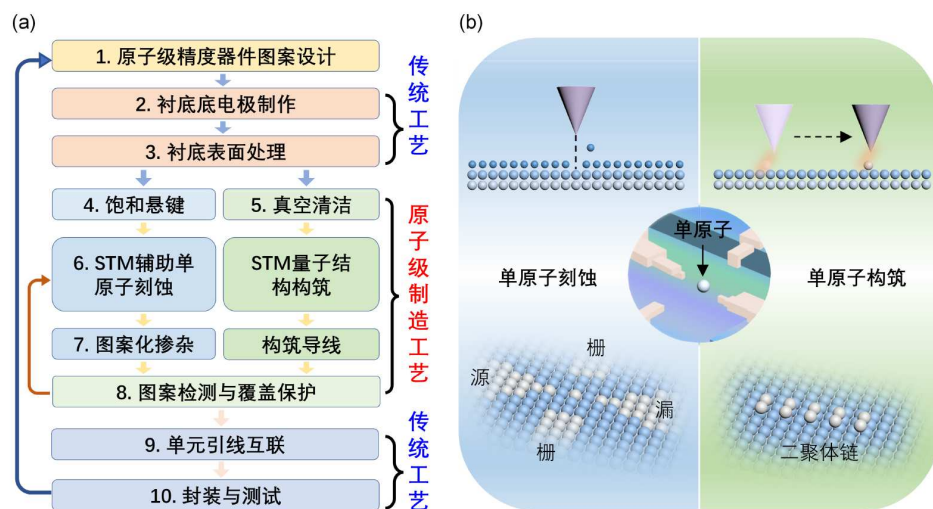


图1 (网络版彩色)(a) 与CMOS工艺兼容且基于扫描隧道显微镜的全真空量子器件制备路线图. (b) 原子级制造的两种核心工艺: 单原子刻蚀与单原子构筑

Figure 1 (Color online) (a) Roadmap for all-vacuum quantum device fabrication based on STM and compatible with CMOS. (b) Two distinct pathways of atomic-scale manufacturing: single-atom lithography and construction

工艺,以兼顾原子级精准和通用性.其中,前端衬底预处理通常采用高温退火、化学清洁等工艺,对于具体的如Si、III-V族半导体等衬底材料,这一环节已经形成了成熟的工艺.完成衬底准备与覆盖层沉积后,样品被传入超高真空环境进行STM加工.而后端的封装层生长与引线连接的环节则面向器件的测量与运用.作为整个工艺流程中影响工艺效率、成功率和器件性能等因素的主要环节——原子级制造工艺,可细分为图1(b)所示的两种方法:单原子刻蚀和单原子构筑.单原子刻蚀是通过STM针尖精确输入能量,进而去除材料特定位置原子的单原子级减材制造工艺,如图1(b)左图所示,往往结合单原子掺杂实现量子点与导线制作.该方法主要由Simmons研究团队持续迭代开发,目前可以在Si:P体系上稳定制备原子精度量子芯片,且逐渐开始了产业化.单原子构筑是通过STM针尖在半导体表面搬运单原子,进而制造特定量子结构和导线的单原子级增材制造工艺,如图1(b)右图所示,可用于人工量子点及其阵列的构筑.该方法主要由Fölsch研究团队引入III-V半导体体系,目前可以在InAs(111)A等表面制备原子精度全同量子点、量子点二聚体以及单分子模型器件.原子级制造工艺整体上仍然处于起步阶段,未来在原理、设备和材料体系方面都有待进一步探索.

总而言之,扫描探针辅助的原子级制造技术,尤其是以STM单原子刻蚀与掺杂工艺为核心的量子器件制造方法,正推动硅基固态量子器件从实验室原型向产业化应用迈进.与CMOS工艺的兼容也促使原子级量子器件逐步走向可规模化制造,为下一代高性能量子计算平台奠定坚实基础.

2 单原子刻蚀及掺杂

在硅基量子器件的研究进程中,STM辅助图案化工艺已被证实是当前唯一能够在硅基材料中实现原子级精度器件的方法.目前较为成熟的实例是基于硅衬底上单个磷原子核自旋的量子器件,已经可以实现单比特和双比特高保真演示器件.我们以此体系为例,详细介绍单原子刻蚀和掺杂工艺.

早在20世纪90年代,Boland^[45]就报道了Si(100)-2×1:H表面(即氢钝化硅表面)的氢原子以氢分子形式脱附后暴露出的成对硅悬挂键具有高反应活性,在一定条件下可实现氢原子的重新吸附.随后,McEllistrem和Soukiasian等研究团队相继对氢原子在Si(100)解理表面的扩散和重结合等动力学^[46]以及非弹性电子相互作用^[47]进行了研究,为后续硅表面氢原子的操纵奠定了实验基础.1994年,Lyding等人^[48]利用STM选择性解吸氢钝化Si(100)-2×1表面氢原子,开发出了与超高真空环境兼容的STM辅助单原子“氢刻蚀”工艺.该工艺以表面残留的氢原子为天然掩模,可在真空环境下实现原子级精度的图案化.这种图案化工艺与电子束直写工艺有相似之处,但其空间分辨率可达到单原子精度.

氢脱附之后暴露出的硅悬挂键不仅可以吸附氧(O)原子,还可以吸附钴(Co)、磷化氢(PH₃)以及三溴化磷(PBr₃)等各类原子和分子^[25].其中,PH₃在Si(100)表面的反应行为得到了广泛研究.Wilson等人^[49-51]通过理论与实验结合的方式研究了单个PH₃分子在Si(100)表面的解离机制以及P原子进入Si(100)表面的详细路径,建立了PH₃在硅表面吸附-解离-脱附过程的完整模型,为磷原子掺杂工艺提供了物理基础.相关研究也在Si(111)-7×7^[52,53]与Ge(100)表面^[54-56]展开,但由于分辨率、针尖干扰等问题,其仍存在一定挑战.而氢钝化的Si(100)-2×1重构表面因其高度稳定性与刻蚀成功率,成为有重要应用价值的单原子刻蚀与掺杂衬底材料.

基于这些前期成果,Tucker和Shen最早提出了在超高真空环境下将STM氢原子刻蚀、气相单原子掺杂与MBE外延生长结合起来构筑量子器件核心单元的工艺方法^[18].该方法包括以下三个关键步骤:(1)通过STM针尖施加脉冲电流选择性诱导氢钝化Si(100)表面氢原子脱附,暴露硅悬挂键;(2)通入PH₃、AsH₃或B₂H₆等气体分子,使其在暴露的悬键上吸附;(3)通过加热退火处理,脱氢将P、As或B原子掺入衬底表面特定位置,形成量子点及源极、漏极、栅极等图案化电路,最后通过加热整体去除氢钝化层.图2(a~c)以硅表面磷原子掺杂为例展示了利用该方法构建量子比特的典型工艺流程.为确保所构筑的器件离开真空环境后仍能稳定存在,后续需采用低温硅分子束外延技术进行外延“封装”保护,避免掺杂原子横向扩散和表面偏析.有关“封装”的具体内容在第4部分详细讨论.

由Simmons带领的研究团队率先实现了基于该工艺的量子器件制造与应用.他们首先对6~80 nm宽度的Si:P纳米线进行原位形貌表征(图2(d~f)),证明了该工艺在各阶段都能保持纳米线结构完整^[25].随后,利用STM完成了包括高精度纳米级磷原子导线、源漏区隧穿结、高度稳定的磷原子量子点以及磷掺杂面内栅极等量子器件关键组件的构建^[25,57](图2(g~i)).在此基础上,他们进一步利用这些关键组件实现了原子精度的

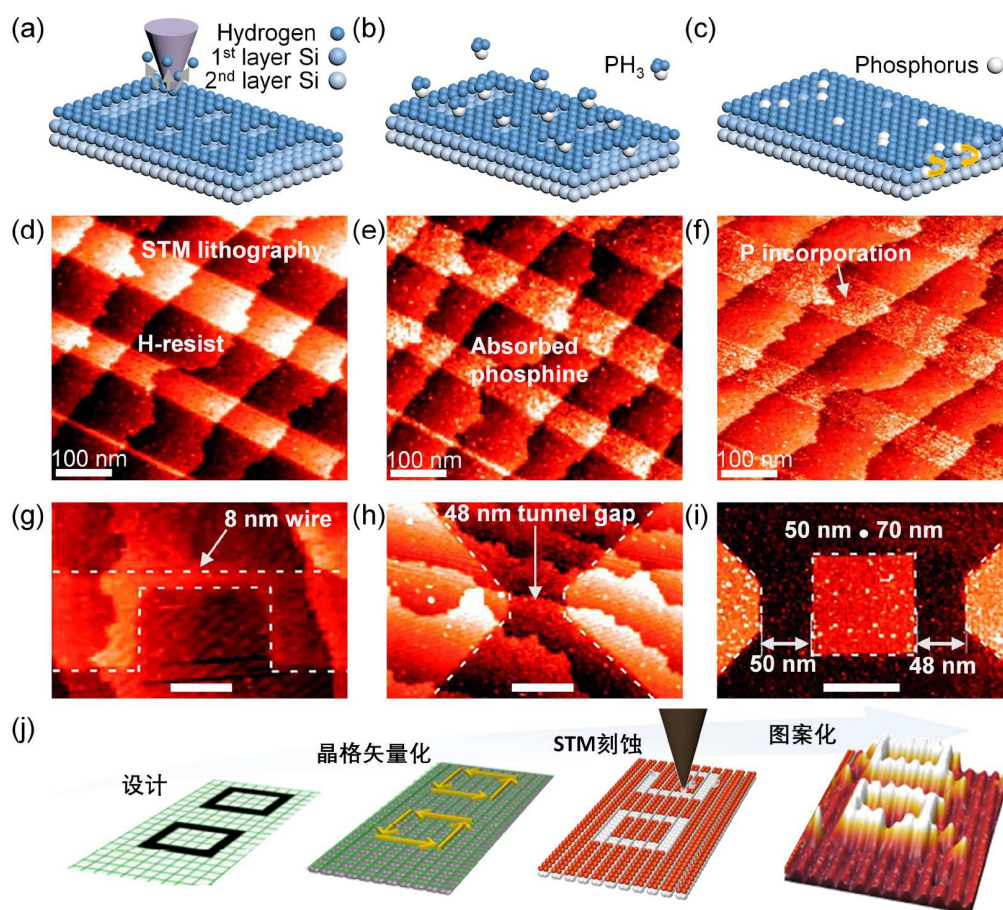


图 2 (网络版彩色)(a~c) 硅中磷量子比特原子阵列的原子制造工艺示意图。(a) 利用STM针尖选择性解吸H原子以暴露硅表面；(b) 通入 PH_3 气体使其在暴露的硅表面吸附；(c) 退火使P原子掺入硅表面并去除氢钝化层。(d~f) 经刻蚀-掺杂后 $\text{Si}(100)\text{-}2\times 1$ 表面的STM图像^[25]。(d) 刻蚀形成的宽度为80、38、26和6 nm的纳米线。(e) PH_3 分子在同一刻蚀区域吸附；(f) 退火使P原子掺入硅表面的刻蚀区域。(g~i) 纳米电路三个关键组件的STM图像^[25]：(g) Si:P纳米线、(h) 隧道结以及(i) 量子点。比例尺：(g) 20 nm；(h) 50 nm；(i) 100 nm。(j) 基于STM的自动化刻蚀系统流程图

Figure 2 (Color online) (a~c) A schematic of the atomic fabrication strategy to realize an atomic array of phosphorus qubits in Si. (a) Selective H desorption using STM tip to expose Si surface; (b) dosing with PH_3 to allow one phosphine molecule to adsorb at the exposed silicon surface; (c) P is incorporated into the Si surface and the hydrogen passivation layer is removed by thermal annealing. (d~f) STM images of a clean $\text{Si}(100)\text{-}2\times 1$ surface after lithography and dosing^[25]. (d) 80, 38, 26, and 6 nm wide lithographic wire patterns. (e) The same area after chemisorption of PH_3 into the lithographic regions; (f) P is incorporated into the Si surface after thermal annealing. (g~i) STM images for three key elements of nanocircuitry^[25], including (g) Si:P nanowire, (h) tunnel junction, and (i) nanodot. Scale bars: (g) 20 nm; (h) 50 nm; (i) 100 nm. (j) Schematic of an automated lithographic system based on STM

量子点器件^[58]和单原子器件^[59]。这些工作验证了这种原子级刻蚀-掺杂工艺的可行性，为硅基量子器件制造的先进工艺奠定了基础。

STM辅助的单原子刻蚀-掺杂工艺的技术难点主要在于原子级精确定位与掺杂浓度控制。目前，Schofield等人^[28]已经在氢钝化 $\text{Si}(100)\text{-}2\times 1$ 表面实现了空间位置的纳米级精确调控。他们发现在氢脱附温度以下就可以实现P原子的热掺杂，并成功以亚纳米级精度(± 1 nm)定点掺杂了单个P原子。Campbell等人^[60]则通过研究不同工艺条件下形成的Si:P量子点中掺杂P原子

数量，提出 PH_3 解离的反应温度、真空度和反应时间对磷掺杂原子的位置与数量具有重要影响，进而实现了对掺杂浓度的控制。

然而，实现硅基量子计算芯片仍然面临量子比特大规模集成化制备难题。Wolkow等人^[61]通过改进STM技术，显著提升了硅表面氢原子刻蚀的自动化水平，成功制作了两个可重写的原子精度存储器。美国Zyvex Labs公司更是推出了全球首个基于STM的原子级精确自动化刻蚀系统(www.zyvexlabs.com)。该系统是目前唯一面向商业化器件制造的装备，能够制造低至

0.7 nm线宽的芯片,为固态量子器件和其他纳米器件提供原子级精确的图案加工能力,图2(j)为其刻蚀流程。此外,在器件制造过程中,研究人员还将机器学习图像识别方法引入STM图像分析以确定量子比特位点中供体数量的概率分布,为实现原子级量子比特自动化与规模化制造提供了新的探索方向^[62]。

3 单原子结构构筑

如前所述,自Eigler首次利用STM探针开展原子操纵(atom manipulation)工作后,他们又在Cu(111)表面移动Fe原子构筑出了著名的量子围栏结构^[63]。以STM为工具的原子操纵技术进入了蓬勃发展的阶段。原子操纵的基本原理是针尖尖端原子对被操纵原子施加局域作用力,使其克服衬底表面的扩散势垒或脱附势垒,从而离开原来的吸附位并定向运动至新的吸附位。STM原子操纵可以分为横向操纵和纵向操纵两种模式。其中,横向操纵模式主要通过针尖垂直接近并锚定操纵对象、针尖引导操纵对象在衬底表面平行运动以及针尖垂直远离并释放操纵对象三个关键步骤实现^[64]。图3(a)上图为横向操纵模式示意图。该模式操纵过程中要求操纵对象与衬底相互作用小且衬底具有较平的势能面,只适用于与衬底弱结合的物理吸附体系,如金属表面的金属原子、惰性气体原子与小分子。Meyer团队对原子操纵的规律和方法做了系统性的研究和总结^[65],并研发了专用的仪器设备^[66]。

长期以来,对于原子操纵的研究主要集中在金属衬底上,然而这类衬底对器件制造并不适用。固态量子器件制造需要发展半导体表面的原子操纵技术。对于具有共价键结构的半导体表面,金属材料制备的针尖可以移动的操纵对象须为表面物理吸附的金属原子或结构稳固的有机分子。另外,半导体表面的悬键往往具有自发钝化特征,倾向于形成复杂重构结构,这导致表面物理吸附原子在相邻位点之间的扩散势垒高于针尖所能提供的作用能,横向原子操纵成功率大大下降。因此,半导体表面单原子结构构筑需要纵向原子操纵模式,即通过针尖与操纵对象之间的作用力将操纵对象提起、移动和放下的操纵过程(图3(a))^[64]。该模式要求探针与操纵对象之间的相互作用大小适中,保证探针能够将操纵对象提起与放下。目前较为成熟的半导体表面单原子结构构筑主要是通过对InAs(111)A表面物理吸附In增原子的纵向操纵实现的。我们将以此体系为例,详细介绍单原子结构构筑工艺。

2009年,Fölsch团队^[69]首次报道了InAs(111)A表面In增原子的纵向可逆操纵,并首次在III-V族半导体衬底上构建了单原子精度的人工量子点。经过长期探索,他们总结出了实现高度稳定可重复的纵向原子操纵需要的条件,即利用真空原位处理获得末端具有密排结构的针尖,施加正(负)偏压纵向接近提起(放下)表面荷电原子。利用该技术,Fölsch团队与合作者实现了多种功能性人工量子结构:相互耦合的量子点分子^[70],其形貌像、成键能级与反键能级态密度分布见图3(b);结构可调的非对称量子点分子^[67];苯环结构类似的闭环量子点分子^[71];以及具有Su-Schrieffer-Heeger (SSH)模型所刻画拓扑边界态的量子点二聚体链^[39],其畴界处拓扑边界态特征如图3(c)所示。这种III-V族半导体表面的单原子构筑方法为原子级固态量子器件的实现提供了新的思路。

在以单原子和单分子构筑器件的研究方面,Wolkow^[72,73]从吸附动力学与STM操纵技术两方面入手阐述了两者的关联性,为利用STM构建原子/分子器件奠定了理论基础。基于此,研究人员在利用氢吸附原子实现分子结构与电子态调控方面取得重要成果:Liljeroth等人^[74]首次实现电流诱导分子异构化的可逆电导开关效应,证实了单分子尺度电操控可行性;Auwärter等人^[75]则通过单质子在分子内的转移实现四种不同电导状态的切换,展示了质子对分子轨道能级的影响;高鸿钧院士团队不仅实现了氢吸附原子调控分子自旋态^[76],而且通过STM与密度泛函理论观测到了氢原子在分子间转移时的中间态^[77],为开发新型分子器件提供了坚实理论与实验基础。2015年,Fölsch团队尝试了原子、分子操纵结合的模式器件构筑^[68]。他们以In量子点产生的局域势场为栅极,通过调控酞菁分子与In量子点的距离实现了单分子荷电状态的调控,如图3(d)所示。这种量子点与单分子强耦合效应导致了独特的双稳态行为和单分子电导调控,如图3(e)所示,形成了一种分子尺度的模型器件。

此外,超薄氧化物薄膜与其表面吸附的金属单原子也可以作为单原子精度量子器件构筑的良好体系。Heinrich团队及其合作者利用电子自旋共振扫描隧道显微镜(ESR-STM)系统探索了MgO超薄膜衬底上利用磁性原子构筑的自旋量子比特及其自旋态精细调控^[78]。他们提出了一个基于该体系的单原子构筑自旋多量子比特平台,可实现耦合电子自旋量子比特的原子级精准构筑、相干操控以及量子态读取。图4(a)展示

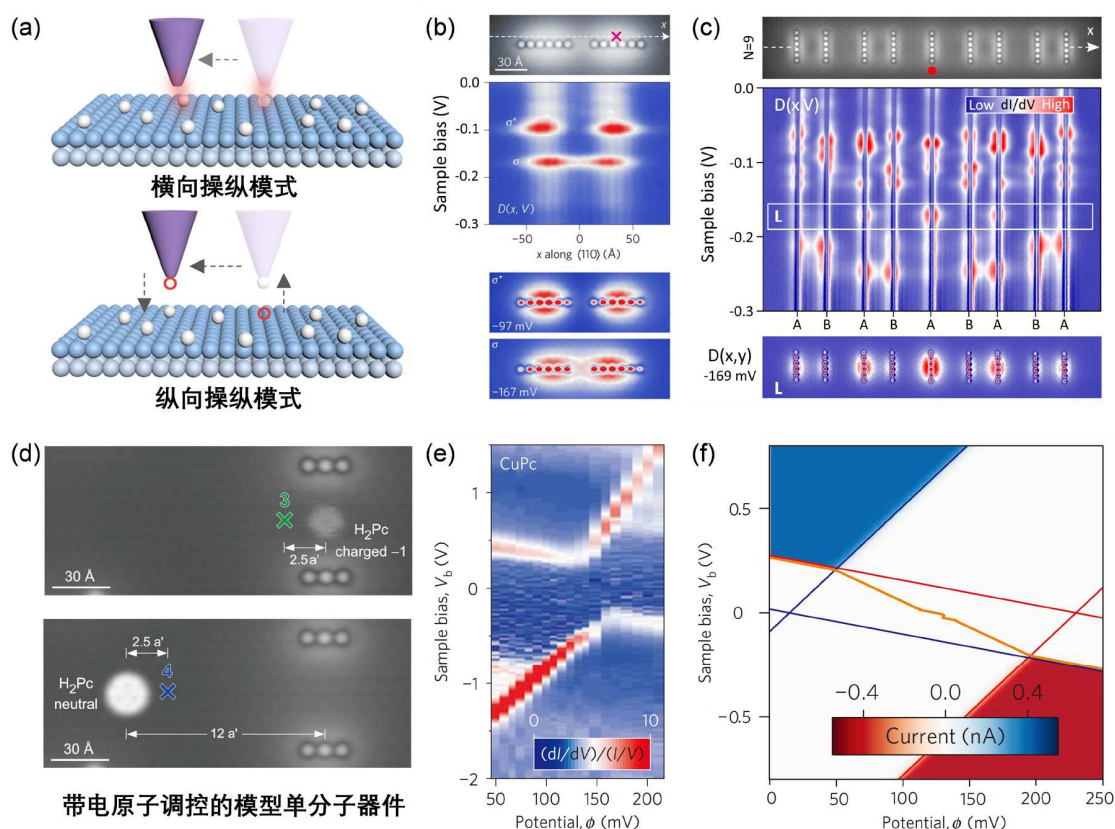


图 3 (网络版彩色)(a) 横向操纵与纵向操纵示意图。(b) 上: 两个 In_6 量子点组成的量子点分子; 中: 沿上图白色虚线测量的态密度随偏压变化的分布图, 显示了量子点分子的反键态(σ^*)和成键态(σ); 下: 成键态和反键态对应能量上态密度map图^[67]。(c) 上: 九个 In_6 量子点组成的量子点链, 中心量子点处存在局域畴壁(由红色圆点标记); 中: 沿上图白色虚线测量的态密度map图, 显示了偏压依赖的 dI/dV 信号; 下: 对应能量上边界态的态密度map图, 其态密度在中心点最大^[39]。(d-f) 单分子器件以及输运测量曲线^[68]。(d) 带电原子调控的模型单分子器件。STM针尖将单个 H_2Pc 分子(中性)移至两个三聚体中间(In_6 组成)的STM图像前后对比。(e) 针尖位于 CuPc 分子上方时的微分电导随栅极电势 ϕ 和样品偏压 V_b 变化关系图; (f) 针尖位于 H_2Pc 分子上方时的隧穿电流 $I(V_b, \phi)$ 图。橙色分界线将 V_b - ϕ 平面划分为上下两个区域, 分别对应于不同的分子构象

Figure 3 (Color online) (a) Schematic of the parallel process and perpendicular process. (b) Upper panel: Quantum dot molecule formed by two neighboring In_6 quantum dots. Center panel: the symmetric (σ) and antisymmetric (σ^*) character of the states is evident in their DOS spatial maps recorded along the white dashed line in the upper panel. Lower panel: The DOS bias map reveals bonding (σ) and antibonding (σ^*) states at characteristic energy^[67]. (c) Upper panel: a nine-dot chain formed by In_6 quantum dots and a light domain wall localized at the center dot (red marker). Center panel: DOS map showing the dI/dV signal recorded along the white dashed line in the upper panel. Lower panel: spatial DOS map of the boundary state recorded at characteristic energy, revealing that the probability density is maximum at the center dot^[39]. (d-f) Single-molecule device with transport measurement curves^[68]. (d) A model single-molecule device gated by charged atoms, comparison of STM images before and after the tip repositioned an H_2Pc molecule (neutral) to the center between two trimers (formed by In_6). (e) Normalized differential conductance map as a function of gating potential ϕ and sample bias V_b , with the tip positioned on CuPc . (f) Calculated map of the tunnelling current $I(V_b, \phi)$ with the tip positioned on H_2Pc . The orange line separates the V_b - ϕ plane into upper and lower regions corresponding to different molecule conformations

了利用自旋极化STM针尖操控的多量子比特系统示意图。该团队基于这种纯电学的操纵方式, 相继演示了快速单量子比特、双量子比特及三量子比特门操作。2024年, 中国科学院物理研究所杨楷团队进一步实现了具有多体拓扑模态的拓扑量子自旋晶格, 其原理如图4(b)所示^[79]。他们通过操纵单原子构筑了二聚化的一维自旋链和二维自旋阵列(图4(c)), 并通过调控反铁磁交换相互作用, 同时实现了自旋结构拓扑相与平庸

相的转换。这些重要进展显示了单原子构筑方法的巨大潜力。然而, 复杂固态量子器件的构筑仍面临严峻挑战。如何推动基于STM“自下而上”的原子制造技术向实用化量子器件迈进、将实验室原型器件转化为实际器件仍需工艺革新与突破。

4 电极沉积、封装与测量

利用单原子刻蚀/掺杂或单原子构筑实现的量子结

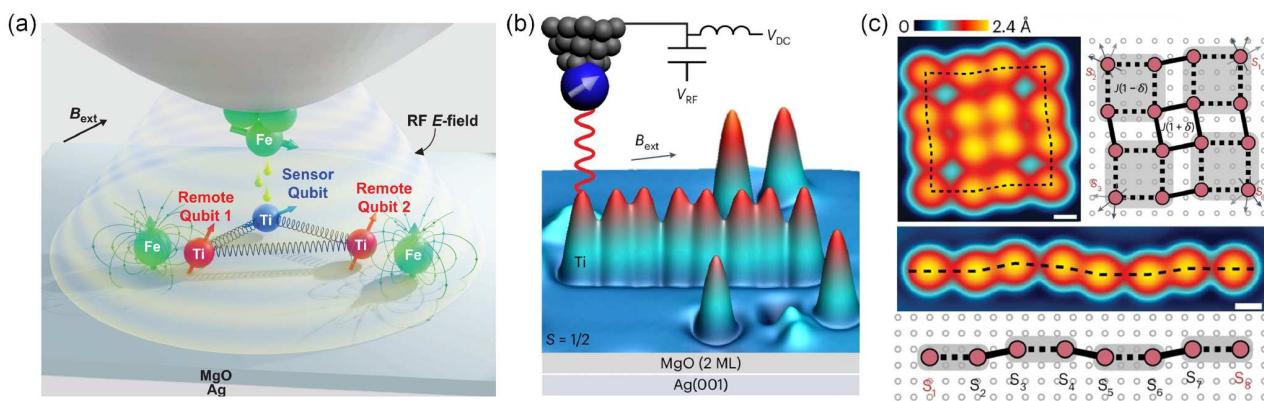


图 4 (网络版彩色)(a) 多量子比特系统示意图: 传感量子比特(Ti, 蓝色)位于自旋极化STM针尖下方, 通过原子操纵技术在距传感器量子比特特定精确间距处构建远程量子比特(Ti, Fe)^[78]; (b) 电子自旋共振扫描隧道显微镜的实验装置图及MgO/Ag(001)衬底上Ti原子的STM图像, 自旋极化尖端用于驱动和感应电子自旋共振^[79]; (c) MgO/Ag(001)衬底上形成的二维阵列(上)和8自旋链(下)的STM图像和结合位点^[79], 灰色圆圈代表MgO的氧位点, 比例尺: 5 Å

Figure 4 (Color online) (a) Schematic of a multi-qubit system: a sensor spin qubit (Ti, blue) is placed under the apex of a spin-polarized STM tip for readout. Remote qubits (Ti, Fe) are constructed at precise separations to the sensor qubit by atom manipulation^[78]. (b) Experimental setup showing an STM with ESR capability, and an STM image of Ti atoms on MgO/Ag(001). A spin-polarized tip is used to drive and sense ESR^[79]. (c) STM images and binding sites of a 4×4 spin lattice (upper panel) and a dimerized 8-spin chain (lower panel) with topological configuration on MgO/Ag (001)^[79], where the grey circles indicate oxygen sites on MgO. Scale bar, 5 Å

构非常容易受到环境气体的污染破坏。为了获得在大气环境下稳定运行的器件, 必须在超高真空条件下沉积“封装层”进行保护, 再利用成熟半导体工艺实现核心单元与外部金属电极的良好连接。这些工艺主要包括以下三步: (1) 超高真空环境下STM辅助的核心单元检测与MBE“封装层”沉积; (2) CMOS工艺条件下沉积金属电极以实现器件核心单元与外部电路互连; (3) 整体封装与输运性能测试。其中, 原子级核心单元的“封装”与跨尺度的“对准”是实现真正器件转化的关键^[80,81]。

对于硅基磷掺杂量子器件, 经STM辅助完成器件核心部分的原子级加工后, 通常使用MBE外延生长的硅作为“封装”层以保护核心单元的量子特性。但是硅外延层生长过程中的加热可能导致磷原子的横向扩散或表面偏析。因此, 通常先在较低温度下生长10~30 Å的外延硅层以覆盖磷掺杂区域, 再以更高温度生长以保证结晶性, 从而最大程度减少掺杂原子从STM图案化区域的扩散和偏析^[82]。Silver团队^[83]对相关工艺进行了研究, 通过控制生长温度和前驱体气氛, 降低掺杂原子偏析并保持原子级器件结构稳定。

经硅外延层“封装”后, 样品移出超高真空环境进入后续传统工艺处理阶段(图1(a))。在后处理阶段, 样品可以通过重新整合至CMOS工艺流程, 结合光刻工

艺实现纳米电极沉积, 图5(a~c)展示了金属电极沉积的工艺流程^[44]。首先, 将含有STM器件的器件层向下键合至新的衬底晶圆; 其次, 通过化学机械抛光工艺完全去除原始SOI衬底中的硅层, 暴露原始衬底的氧化层背面(图5(a)); 随后, 通过光刻定义图形后在氧化层上选择性刻蚀制备通孔以暴露器件层的源漏电极掺杂区底部(图5(b)上); 接着, 利用物理气相沉积制备铝硅接触电极(图5(b)下), 这些纳米电极通过通孔连接到埋藏的源漏掺杂区上, 形成欧姆接触; 此外, 研究人员还通过增加额外的光刻步骤定义金属顶栅以完善器件功能(图5(c))。图5(d)为STM器件、纳米电极以及连接器件与纳米电极的导线的STM图像。由于纳米电极的尺寸非常小, 无法直接用宏观探针进行稳定可靠的测量, 为此, 需要使用导电银胶将样品固定在芯片载体上, 并通过引线键合连接宏观电极焊盘以完成器件的封装测试。

在这一工艺环节中, 为了保证STM构筑的纳米尺度结构与纳米电极精准对准, 预先在硅衬底上制作具有高定位精度与可识别性的标记至关重要。对于STM平面器件结构——源极、量子岛、供体量子比特、漏极和面内栅极处于同一平面, 早期的Ruess等人^[84]利用STM定义量子核心单元的同时通过局部氧化技术制作了高精度但易损的标记; 随后, Rueß团队^[80,86]开发了耐高温的湿法刻蚀工艺——利用紫外光刻技术和刻蚀液

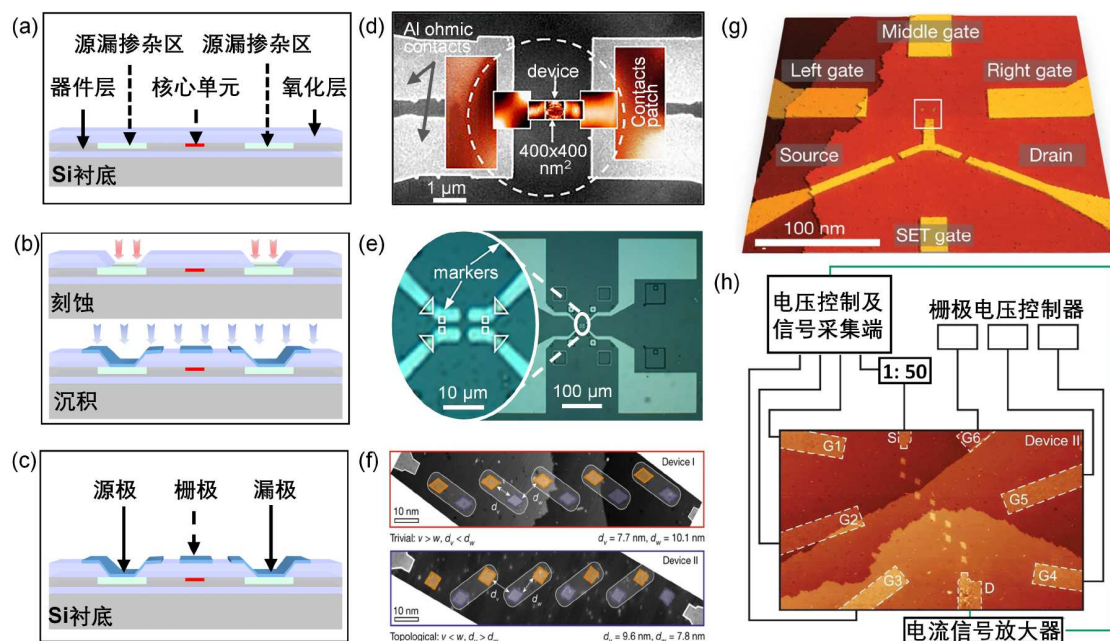


图 5 (网络版彩色)(a~c) 纳米电极沉积的工艺流程。(a) 键合至新晶圆, 去除原始SOI衬底中的硅层, 暴露原始衬底的氧化层背面; (b) 刻蚀氧化层暴露器件层的源漏掺杂区底部(上)以及沉积铝硅合金电极(下); (c) 完整器件示意图。(d) STM器件、纳米电极以及连接器件与电极的纳米导线的STM图像^[81]。(e) 铝电极沉积后, 未封装前的完整器件光学显微镜图^[86], 插图为铝金属引线对准埋藏结构后中心器件区域的放大图像, 白色三角形和正方形为对准标记。(f) 量子点阵列的平庸相(上)与拓扑相(下)的STM图像^[27]。(g) 双量子比特器件的STM图像^[29], 该器件由左、中、右和SET门四个门组成。(h) 平面量子点阵列器件STM图像以及电路连接示意图^[27]

Figure 5 (Color online) (a~c) The process flow for nanoscale electrode deposition. (a) Bonding to a new wafer, removing substrates and exposing the backside of the original buried oxide layer exposing the bottom side of the deep contact implants in the device layer (upper panel) and deposition of aluminum silicon alloy contacts (lower panel). (c) Schematic of complete device. (d) Composite images of a contacted device showing the STM device, nanoelectrodes and connecting nanowires^[81]. (e) Optical microscope image of the completed device after aluminum electrode deposition and before chip packaging^[86]. Zoom-in image illustrating the central device area after alignment of Al metal leads to the buried. The alignment markers are indicated by white triangles and squares. (f) Scanning tunnelling micrograph for the trivial (upper panel) and topological (lower panel) phases of an array of quantum dots^[27]. (g) STM micrograph of the two-qubit device^[29]. The device consists of four gates: left, middle, right and the SET gate. (h) Schematic of the experimental set up for planar device consisting of an array of quantum dots, showing all electrical connections to the device. A STM image of the device is shown^[27]

实现了能够承受所有必要化学清洗和高温处理等步骤的对准标记, 并且经STM图案化和外延硅“封装”后, 该标记在光学显微镜下成像仍可实现约500 nm的对准精度(图5(e)); Fuechsle等人^[81]则进一步采用电子束光刻(electron-beam lithography, EBL)技术将对准精度提升至100 nm。而对于增加顶部栅极以便调控的三维器件结构, Koch等人^[85]则采用多层EBL对准技术, 在三维门控单电子器件(SET)制备中引入了多层垂直对准方法, 解决了“封装”后不同层面之间的电学互连难题。

通过上述工艺的集成, Simmons团队可以实现封装的硅基量子器件原型^[27,29], 例如分别如图5(f)和(g)所示的量子点二聚体链器件和双原子量子比特器件。通过如图5(h)所示的输运测量, 可以实现二聚体链的拓扑相变调控及量子模拟。虽然人们仅在Si:P体系中系统完成

了STM辅助器件核心单元的原子级制造、低损耗外延“封装”以及亚百纳米级对准、互联、封装与测试整个工艺流程, 而在III-V半导体量子点和MgO-自旋量子比特等体系中尚未完善后续工艺, 但是扫描探针辅助的量子器件原子级制造工艺的可行性及其与COMS工艺的兼容性已经得到了充分的验证, 向未来应用迈出了坚实的一步。

5 总结与展望

固态量子器件原子级制造技术的核心在于单原子精度的结构构筑与调控, 本文基于STM这一实现原子级制造的关键工具, 提出了STM原子制造技术与传统CMOS工艺结合的全真空量子器件制造方法。该方法以成熟的半导体材料为基础, 通过前端CMOS预处理

表 1 三种原子级加工技术路线在各个环节面临的具体挑战
Table 1 Specific challenges for the three technical approaches of atomic-scale manufacturing in each stage

技术路线	前端CMOS工艺	原子制造工艺	后端CMOS工艺
硅衬底: 磷原子	原子级平整、洁净表面的制备	磷原子掺杂位置、浓度精确控制; 构筑效率	电极沉积精度控制, 量子点热漂移问题
III-V族半导体: 量子点	原子级平整、洁净表面的制备; 材料体系选择	量子点阵列精确调控; 微观电极构筑; 构筑效率	封装层制备; 量子点与金属电极相互扩散问题
氧化物薄膜: 磁性原子	晶圆级薄膜衬底的生长	磁性原子耦合调控; 微观电极构筑; 构筑效率	尚待探索

以及后端封装工艺提升制造效率, 以期实现固态量子器件的产业化与规模化制造. 而作为整个工艺流程的核心——原子级制造工艺, 其关键在于实现单原子尺度构筑. 当前, 主要有两种策略: 一是STM“自上而下”的单原子刻蚀与掺杂工艺. 利用该方法能够实现对材料表面单原子的精准操控. 二是利用STM“自下而上”组装人工结构以构建具有特定功能的量子体系. 基于这两种策略的技术路线兼具CMOS工艺的稳定性 and STM加工的原子级精度, 不仅能够突破传统加工工艺的极限, 还为量子器件的实用化开辟了新路径.

虽然近年来利用STM实现硅基固态量子器件制造已经取得了较大的进展, 研究人员也验证了该工艺的有效性, 但其在实际应用中仍面临诸多挑战. 表1总结了三种原子级制造工艺路线在原子制造工艺本身及其前后端与CMOS工艺兼容性方面面临的具体挑战.

未来, 实现固态量子计算机及其框架下量子器件的工业化生产须从以下三个方面突破: (1) 在规模化制造方面, 现有原子操纵技术效率仍然较低, 亟需开发将STM与人工智能(AI)及自动化技术融合的新型STM技术以提高制备效率. 当前, 科研人员已在该方向取得重要突破: 程序辅助的自动化原子操纵技术已在Cu(111)^[87]和Cu(100)^[88]多个表面体系中成功应用, 其控制精度满足要求, 操纵效率远超人工操纵; 类似的自动化操纵方法也被扩展到了氢钝化的Si(001)表面H空位的单原子刻蚀^[61]; 多探针并行系统如AFM传感器阵列^[89]与多探针STM/SEM集成技术^[90]也被用于提高制造效率; 此外, AI尤其是基于卷积神经网络的机器学习算法^[62,91]同样被成功应用于STM图案化加工过程, 能

够实时、准确地识别表面原子位置. 尽管该类技术仍在算法普适性与实时反馈等方面面临挑战, 但在未来, AI与STM的深度融合与发展必将为量子器件的规模化制备提供关键助力. (2) 在工艺兼容方面, 近年来, 逐渐涌现了一些专用设备或方法, 例如中国科学院纳米真空互联实验站(Nano-X)通过大装置探索了真空环境在原子级精度制造中的可行性; Simmons团队自主开发的多腔STM-SEM/MBE系统在硅基量子器件制造中发挥了重要作用; Diraq团队和Emergency Quantum公司联合研发的冷冻CMOS系统, 可有效减小运行硅基量子计算机所需的电路尺寸^[92], 为量子器件与CMOS工艺兼容提供了有益的探索. 未来原子级制造技术需要发展符合自身特点和要求的专用后端器件工艺与装备, 而不能只是沿用当前半导体工艺. 为了完全避免大气环境对STM探针辅助构筑量子结构的破坏, 需要开发能够在超高真空环境中完成器件制作和原位检测的系统装备, 即具有自主知识产权的全真空集成系统, 打造包含衬底处理、STM结构构筑、MBE薄膜生长、非接触式图案化电极沉积以及原位输运测量等功能的专用装备. 基于该设备可实现全程超高真空的衬底制备-原子级构筑-器件制造-测试封装一体化工艺, 从而彻底避免大气污染, 保证固态量子器件的稳定高效制造. (3) 在器件创新方面, 除推动固态量子器件实用化外, 还需要构建具有全新机制与结构的新型器件以寻求新的可能载体与突破. 当前研究人员能够以可控量子点分子的拓扑态与自旋态为信息载体实现量子计算^[39,79], 虽然该结构仍只能在低温下实现且极易受热扰动影响, 但它为构建新型器件开辟了全新方向.

致谢 感谢中国科学院物理研究所高鸿钧院士、杜世萱研究员、杨海涛研究员、杨锴研究员、陈辉研究员、南京大学宋凤麒教授和南方科技大学贺煜教授的有益讨论与帮助.

参考文献

- 1 Fang F Z, Lai M, Wang J S, et al. The three paradigms of manufacturing advancement: law of manufacturing development (in Chinese). *Bull Natl Nat Sci Found China*, 2024, 38: 159–171 [房丰洲, 赖敏, 王金石, 等. 制造发展的三个范式: 制造发展规律的研究. 中国科学基金, 2024, 38: 159–171]
- 2 Song F Q, Dai Q. Atom manufacturing: a future technique of physical sciences (in Chinese). *Physics*, 2023, 52: 371–380 [宋凤麒, 戴庆. 原子制造: 物质科学的未来技术. 物理, 2023, 52: 371–380]
- 3 Gao J, Luo X, Fang F, et al. Fundamentals of atomic and close-to-atomic scale manufacturing: a review. *Int J Extrem Manuf*, 2021, 4: 012001
- 4 Loss D, DiVincenzo D P. Quantum computation with quantum dots. *Phys Rev A*, 1998, 57: 120–126
- 5 Zhang X, Li H O, Cao G, et al. Semiconductor quantum computation. *Natl Sci Rev*, 2019, 6: 32–54
- 6 O'Brien J L, Schofield S R, Simmons M Y, et al. Towards the fabrication of phosphorus qubits for a silicon quantum computer. *Phys Rev B*, 2001, 64: 161401
- 7 Vrijen R, Yablonovitch E, Wang K, et al. Electron-spin-resonance transistors for quantum computing in silicon-germanium heterostructures. *Phys Rev A*, 2000, 62: 012306
- 8 Ju B, Jiang L, Sun L, et al. Overview of the current research in measurement and characterization for atomic level manufacturing (in Chinese). *Bull Natl Nat Sci Found China*, 2024, 38: 132–145 [居冰峰, 姜澜, 孙立涛, 等. 原子级制造测量与表征研究现状综述. 中国科学基金, 2024, 38: 132–145]
- 9 Luo J B, Guo D M, Yang H Y, et al. Key basic scientific issues in atomic level manufacturing (in Chinese). *Bull Natl Nat Sci Found China*, 2024, 38: 86–98 [雒建斌, 郭东明, 杨华勇, 等. 原子级制造的关键基础科学问题. 中国科学基金, 2024, 38: 86–98]
- 10 Qian L, Chen R, Zhu L, et al. Current status and scientific challenges of atomic layer manufacturing (in Chinese). *Bull Natl Nat Sci Found China*, 2024, 38: 99–114 [钱林茂, 陈蓉, 朱利民, 等. 原子层制造的研究现状与科学挑战. 中国科学基金, 2024, 38: 99–114]
- 11 Shao J, Song F, Li X, et al. Manufacturing from atomic and molecular clusters to devices (in Chinese). *Bull Natl Nat Sci Found China*, 2024, 38: 115–131 [邵金友, 宋凤麒, 李祥明, 等. 基于原子/分子团簇结构的材料与器件制造. 中国科学基金, 2024, 38: 115–131]
- 12 Zhang Z, Li L, Ju Y, et al. New mechanisms and methods for atomic precision manufacturing (in Chinese). *Bull Natl Nat Sci Found China*, 2024, 38: 146–158 [张振宇, 李琳, 巨阳, 等. 原子精度制造新原理和新方法. 中国科学基金, 2024, 38: 146–158]
- 13 Dai Q, Song F, Pan C, et al. The fundamental physical science of atom manufacturing (in Chinese). *Chin Sci Bull*, 2024, 69: 2777–2788 [戴庆, 宋凤麒, 潘曹峰, 等. 原子制造的物质科学基础. 科学通报, 2024, 69: 2777–2788]
- 14 Zwerger A M J, Krähenmann T, Watson T F, et al. Qubits made by advanced semiconductor manufacturing. *Nat Electron*, 2022, 5: 184–190
- 15 Simmons M Y, Ruess F J, Goh K E J, et al. Scanning probe microscopy for silicon device fabrication. *Mol Simul*, 2005, 31: 505–515
- 16 Eigler D M, Schweizer E K. Positioning single atoms with a scanning tunnelling microscope. *Nature*, 1990, 344: 524–526
- 17 Wada Y. Atom electronics: a proposal of atom/molecule switching devices. *Surf Sci*, 1997, 386: 265–278
- 18 Tucker J R, Shen T C. Prospects for atomically ordered device structures based on STM lithography. *Solid-State Electron*, 1998, 42: 1061–1067
- 19 Oyabu N, Custance Ó, Yi I, et al. Mechanical vertical manipulation of selected single atoms by soft nanoindentation using near contact atomic force microscopy. *Phys Rev Lett*, 2003, 90: 176102
- 20 Oyabu N, Sugimoto Y, Abe M, et al. Lateral manipulation of single atoms at semiconductor surfaces using atomic force microscopy. *Nanotechnology*, 2005, 16: S112–S117
- 21 Liu M X, Li S C, Zha Z Q, et al. Research progress and applications of qPlus noncontact atomic force microscopy (in Chinese). *Acta Physico-Chim Sin*, 2017, 33: 183–197 [刘梦溪, 李世超, 查泽奇, 等. qPlus型非接触原子力显微技术进展及前沿应用. 物理化学学报, 2017, 33: 183–197]
- 22 Kane B E. A silicon-based nuclear spin quantum computer. *Nature*, 1998, 393: 133–137
- 23 Foley E T, Kam A F, Lyding J W, et al. Cryogenic UHV-STM study of hydrogen and deuterium desorption from Si(100). *Phys Rev Lett*, 1998, 80: 1336–1339
- 24 Shen T C, Wang C, Abeln G C, et al. Atomic-scale desorption through electronic and vibrational excitation mechanisms. *Science*, 1995, 268: 1590–1592
- 25 Rueß F, Pok W, Reusch T C, et al. Realization of atomically controlled dopant devices in silicon. *Small*, 2007, 3: 563–567
- 26 Simmons M Y, Schofield S R, O'Brien J L, et al. Towards the atomic-scale fabrication of a silicon-based solid state quantum computer. *Surf Sci*, 2003, 532–535: 1209–1218
- 27 Kiczynski M, Gorman S K, Geng H, et al. Engineering topological states in atom-based semiconductor quantum dots. *Nature*, 2022, 606: 694–699
- 28 Schofield S R, Curson N J, Simmons M Y, et al. Atomically precise placement of single dopants in Si. *Phys Rev Lett*, 2003, 91: 136104
- 29 He Y, Gorman S K, Keith D, et al. A two-qubit gate between phosphorus donor electrons in silicon. *Nature*, 2019, 571: 371–375

- 30 Hill C D, Peretz E, Hile S J, et al. A surface code quantum computer in silicon. *Sci Adv*, 2015, 1: e1500707
- 31 Gu Q J, Liu N, Zhao W B, et al. Regular artificial nanometer-scale structures fabricated with scanning tunneling microscope. *Appl Phys Lett*, 1995, 66: 1747–1749
- 32 Wang Y L, Guo H M, Liu H W, et al. The “ultimate” scanning tunneling microscopy images of the Si(111)-(7×7) surfaces (in Chinese). *Physics*, 2005, 34: 109111 [王业亮, 郭海明, 刘虹雯, 等. 扫描隧道显微镜分辨能力的研究: 对Si(111)-107×107表面的观察. *物理*, 2005, 34: 109–111]
- 33 Li M, Li G, Cao L, et al. Ordered and tunable Majorana-zero-mode lattice in naturally strained LiFeAs. *Nature*, 2022, 606: 890–895
- 34 Wang D, Kong L, Fan P, et al. Evidence for Majorana bound states in an iron-based superconductor. *Science*, 2018, 362: 333–335
- 35 Fu X, Huang L, Liu K, et al. Building spin-1/2 antiferromagnetic Heisenberg chains with diaza-nanographenes. *Nat Synth*, 2025, 4: 684–693
- 36 Yang K, Chen H, Pope T, et al. Tunable giant magnetoresistance in a single-molecule junction. *Nat Commun*, 2019, 10: 3599
- 37 Li Q, Cao R, Ding H. Quantum size effect in nanocorrals: from fundamental to potential applications. *Appl Phys Lett*, 2020, 117: 060501
- 38 Li Q, Li X, Miao B, et al. Kondo-free mirages in elliptical quantum corrals. *Nat Commun*, 2020, 11: 1400
- 39 Pham V D, Pan Y, Erwin S C, et al. Topological boundary states in engineered quantum-dot molecules on the InAs(111)A surface: odd numbers of quantum dots. *Phys Rev Res*, 2024, 6: 033268
- 40 Pan Y, Kanisawa K, Fölsch S. Creating and probing quantum dot molecules with the scanning tunneling microscope. *J Vacuum Sci Tech B*, 2017, 35: 04F102
- 41 Wang K, Xu G, Gao F, et al. Ultrafast coherent control of a hole spin qubit in a germanium quantum dot. *Nat Commun*, 2022, 13: 206
- 42 Li X, Fu X, Yan F, et al. Current status and future development of quantum computation. *Chin J Eng Sci*, 2022, 24: 133–144
- 43 Gu J, Wu Z, Zhang Q, et al. Quantum dot with a diamond-shaped channel MOSFET on a bulk Si substrate. *IEEE Trans Electron Devices*, 2021, 68: 405–410
- 44 Škřeň T, Pascher N, Garnier A, et al. CMOS platform for atomic-scale device fabrication. *Nanotechnology*, 2018, 29: 435302
- 45 Boland J J. Scanning tunneling microscopy study of the adsorption and recombinative desorption of hydrogen from the Si(100)-2×1 surface. *J Vacuum Sci Tech A*, 1992, 10: 2458–2464
- 46 McEllistrem M, Allgeier M, Boland J J. Dangling bond dynamics on the silicon (100)-2×1 surface: dissociation, diffusion, and recombination. *Science*, 1998, 279: 545–548
- 47 Soukiassian L, Mayne A J, Carbone M, et al. Atomic-scale desorption of H atoms from the Si(100)-2×1:H surface: inelastic electron interactions. *Phys Rev B*, 2003, 68: 035303
- 48 Lyding J W, Shen T C, Hubacek J S, et al. Nanoscale patterning and oxidation of H-passivated Si(100)-2×1 surfaces with an ultrahigh vacuum scanning tunneling microscope. *Appl Phys Lett*, 1994, 64: 2010–2012
- 49 Wilson H F, Warschkow O, Marks N A, et al. Phosphine dissociation on the Si(001) surface. *Phys Rev Lett*, 2004, 93: 226102
- 50 Warschkow O, Wilson H F, Marks N A, et al. Phosphine adsorption and dissociation on the Si(001) surface: an *ab initio* survey of structures. *Phys Rev B*, 2005, 72: 125328
- 51 Schofield S R, Curson N J, Warschkow O, et al. Phosphine dissociation and diffusion on Si(001) observed at the atomic scale. *J Phys Chem B*, 2006, 110: 3173–3179
- 52 Aono M, Kobayashi A, Grey F, et al. Tip-sample interactions in the scanning tunneling microscope for atomic-scale structure fabrication. *Jpn J Appl Phys*, 1993, 32: 1470–1477
- 53 Lyo I W, Avouris P. Field-induced nanometer- to atomic-scale manipulation of silicon surfaces with the STM. *Science*, 1991, 253: 173–176
- 54 Scappucci G, Capellini G, Lee W C T, et al. Atomic-scale patterning of hydrogen terminated Ge(001) by scanning tunneling microscopy. *Nanotechnology*, 2009, 20: 495302
- 55 Scappucci G, Capellini G, Lee W C T, et al. Ultradense phosphorus in germanium delta-doped layers. *Appl Phys Lett*, 2009, 94: 162106
- 56 Scappucci G, Capellini G, Johnston B, et al. A complete fabrication route for atomic-scale, donor-based devices in single-crystal germanium. *Nano Lett*, 2011, 11: 2272–2279
- 57 Fuhrer A, Füchsle M, Reusch T C G, et al. Atomic-scale, all epitaxial in-plane gated donor quantum dot in silicon. *Nano Lett*, 2009, 9: 707–710
- 58 Büch H, Mahapatra S, Rahman R, et al. Spin readout and addressability of phosphorus-donor clusters in silicon. *Nat Commun*, 2013, 4: 2017
- 59 Fuechsle M, Miwa J A, Mahapatra S, et al. A single-atom transistor. *Nat Nanotech*, 2012, 7: 242–246
- 60 Campbell Q T, Koepke J C, Ivie J A, et al. Quantifying the variation in the number of donors in quantum dots created using atomic precision advanced manufacturing. *J Phys Chem C*, 2023, 127: 6071–6079
- 61 Achal R, Rashidi M, Croshaw J, et al. Lithography for robust and editable atomic-scale silicon devices and memories. *Nat Commun*, 2018, 9: 2778
- 62 Tranter A D, Kranz L, Sutherland S, et al. Machine learning-assisted precision manufacturing of atom qubits in silicon. *ACS Nano*, 2024, 18: 19489
- 63 Crommie M F, Lutz C P, Eigler D M. Confinement of electrons to quantum corrals on a metal surface. *Science*, 1993, 262: 218–220
- 64 Li Y A, Wu D, Wang D L, et al. Investigation of artificial quantum structures constructed by atom manipulation (in Chinese). *Acta Phys Sin*, 2021,

- 70: 020701 [李宇昂, 吴迪, 王栋立, 等. 基于原子操纵技术的人工量子结构研究. 物理学报, 2021, 70: 020701]
- 65 Bartels L, Meyer G, Rieder K H. Basic steps of lateral manipulation of single atoms and diatomic clusters with a scanning tunneling microscope tip. *Phys Rev Lett*, 1997, 79: 697–700
- 66 Meyer G. A simple low-temperature ultrahigh-vacuum scanning tunneling microscope capable of atomic manipulation. *Rev Sci Instruments*, 1996, 67: 2960–2965
- 67 Pan Y, Yang J, Erwin S C, et al. Reconfigurable quantum-dot molecules created by atom manipulation. *Phys Rev Lett*, 2015, 115: 076803
- 68 Martínez-Blanco J, Nacci C, Erwin S C, et al. Gating a single-molecule transistor with individual atoms. *Nat Phys*, 2015, 11: 640–644
- 69 Fölsch S, Yang J, Nacci C, et al. Atom-by-atom quantum state control in adatom chains on a semiconductor. *Phys Rev Lett*, 2009, 103: 096104
- 70 Fölsch S, Martínez-Blanco J, Yang J, et al. Quantum dots with single-atom precision. *Nat Nanotech*, 2014, 9: 505–508
- 71 Pham V D, Kanisawa K, Fölsch S. Quantum rings engineered by atom manipulation. *Phys Rev Lett*, 2019, 123: 066801
- 72 Wolkow R A. A step toward making and wiring up molecular-scale devices. *Jpn J Appl Phys*, 2001, 40: 4378–4380
- 73 Wolkow R A. Controlled molecular adsorption on silicon: laying a foundation for molecular devices. *Annu Rev Phys Chem*, 1999, 50: 413–441
- 74 Liljeroth P, Repp J, Meyer G. Current-induced hydrogen tautomerization and conductance switching of naphthalocyanine molecules. *Science*, 2007, 317: 1203–1206
- 75 Auwärter W, Seufert K, Bischoff F, et al. A surface-anchored molecular four-level conductance switch based on single proton transfer. *Nat Nanotech*, 2012, 7: 41–46
- 76 Liu L, Yang K, Jiang Y, et al. Reversible single spin control of individual magnetic molecule by hydrogen atom adsorption. *Sci Rep*, 2013, 3: 1210
- 77 Wu R, Bao D L, Yan L, et al. Direct visualization of hydrogen-transfer intermediate states by scanning tunneling microscopy. *J Phys Chem Lett*, 2020, 11: 1536–1541
- 78 Wang Y, Chen Y, Bui H T, et al. An atomic-scale multi-qubit platform. *Science*, 2023, 382: 87–92
- 79 Wang H, Fan P, Chen J, et al. Construction of topological quantum magnets from atomic spins on surfaces. *Nat Nanotechnol*, 2024, 19: 1782–1788
- 80 Rueß F J, Oberbeck L, Goh K E J, et al. The use of etched registration markers to make four-terminal electrical contacts to STM-patterned nanostructures. *Nanotechnology*, 2005, 16: 2446–2449
- 81 Fuechsle M, Rueß F J, Reusch T C G, et al. Surface gate and contact alignment for buried, atomically precise scanning tunneling microscopy-patterned devices. *J Vacuum Sci Tech B*, 2007, 25: 2562–2567
- 82 Goh K E J, Oberbeck L, Simmons M Y, et al. Effect of encapsulation temperature on Si: P δ -doped layers. *Appl Phys Lett*, 2004, 85: 4953–4955
- 83 Deng X, Namboodiri P, Li K, et al. Silicon epitaxy on H-terminated Si (100) surfaces at 250°C. *Appl Surf Sci*, 2016, 378: 301–307
- 84 Ruess F J, Oberbeck L, Simmons M Y, et al. Toward atomic-scale device fabrication in silicon using scanning probe microscopy. *Nano Lett*, 2004, 4: 1969–1973
- 85 Koch M, Keizer J G, Pakkiam P, et al. Spin read-out in atomic qubits in an all-epitaxial three-dimensional transistor. *Nat Nanotech*, 2019, 14: 137–140
- 86 Rueß F J, Goh K E J, Butcher M J, et al. Narrow, highly P-doped, planar wires in silicon created by scanning probe microscopy. *Nanotechnology*, 2007, 18: 044023
- 87 Celotta R J, Balakirsky S B, Fein A P, et al. Autonomous assembly of atomically perfect nanostructures using a scanning tunneling microscope. *Rev Sci Instruments*, 2014, 85: 121301
- 88 Kalff F E, Rebergen M P, Fahrenfort E, et al. A kilobyte rewritable atomic memory. *Nat Nanotech*, 2016, 11: 926–929
- 89 Dürig U, Cross G, Despont M, et al. “Millipede” – an AFM data storage system at the frontier of nanotribology. *Tribol Lett*, 2000, 9: 25–32
- 90 Qin S, Kim T H, Wang Z, et al. Nanomanipulation and nanofabrication with multi-probe scanning tunneling microscope: from individual atoms to nanowires. *Rev Sci Instruments*, 2012, 83: 063704
- 91 Rashidi M, Wolkow R A. Autonomous scanning probe microscopy *in situ* tip conditioning through machine learning. *ACS Nano*, 2018, 12: 5185–5189
- 92 Bartee S K, Gilbert W, Zuo K, et al. Spin-qubit control with a milli-kelvin CMOS chip. *Nature*, 2025, 643: 382–387

Summary for “超高真空扫描探针辅助的量子器件原子级制造技术”

Ultra-high vacuum scanning tunneling microscope-assisted atomic-scale manufacture of quantum devices

Jiaqi Yang, Yuang Li, Xueyan Li & Yi Pan*

Center for Spintronics and Quantum Systems, State Key Laboratory for Mechanical Behavior of Materials, School of Materials Science and Engineering, Xi'an Jiaotong University, Xi'an 710049, China

* Corresponding author, E-mail: yi.pan@xjtu.edu.cn

Atomic-precision device manufacturing is an effective solution in overcoming the line-width limitation of current lithography technology. It holds promise as a novel production process for atomically precise chips and sensors, such as solid-state quantum devices. This technique also offers wide applications in the next-generation semiconductor industry thanks to its compatibility with the semiconductor materials and processes. As an emerging technology, it has successfully demonstrated the single-atom-level prototype silicon-based chips, realized by using scanning tunneling microscopy (STM) assisted atomic manipulation techniques. This paper reviews the state-of-the-art in ultra-high vacuum scanning probe-assisted atomically precise device manufacturing technology for future solid-state quantum chips. It covers aspects including process flow, atom manipulation/etching methods, electrodeposition, and packaging. In the first section, an overview of the technological evolution is briefly introduced. Based on the current advances and our own practices, we propose a detailed full-vacuum-environment quantum device fabrication process route, which combines the STM-assisted atomic-scale manufacture process with the traditional complementary metal-oxide-semiconductor (CMOS) technique and front-end and back-end processes. In the second section, the scanning tunneling microscopy-assisted single-atom etching (also known as STM lithography) and doping techniques are discussed in detail. Taking the Si(100)-P system as an example, the H atoms on hydrogen-saturated Si(100) surfaces could be selectively desorbed by STM lithography to form a specific pattern for the quantum dots and electrodes. Then, the sample is exposed to PH₃ molecules, so that the pattern region is specifically doped with atomic precision. In this way, P atoms or quantum dots could be fabricated as physical quantum bits, which have been realized by the M. Simmons group at the University of New South Wales. The automated STM lithography equipment developed by Zyvex Labs has been introduced as well. In the third section, we focus on the STM atom manipulation technique for the construction of quantum structures as the core of quantum devices. Taking the III-V semiconductor InAs(111)A surface as an example, the randomly distributed In adatoms could be precisely relocated by vertical manipulation, which means picking up atoms and then dropping them to the target position with the STM tip. In this way, the atomic precision quantum dots (QDs), QD molecules, gated single CuPc molecule, and the QD chains with topological edge states have been realized by the St. Fölsch group at Paul Drude Institute. Additionally, the magnetic atom array constructed on an ultra-thin oxide film surface, e.g., the Fe-Ti-MgO system, has been proposed as a promising spin quantum bit platform by the A. Heinrich group at Ewha Womans University. In the fourth section, we discuss the back-end CMOS technique for the fabrication of quantum devices from the STM-constructed quantum structures. It mainly contains the sequential steps of UHV capping layer deposition, chemical etching, and connecting electrode deposition. The prototype Si-based solid-state quantum device of a single P atom, a couple of P pairs, and QD chains has been successfully demonstrated by the M. Simmons group. In the final section, the primary challenges for future applications of this technology, along with potential solutions, are summarized.

scanning tunneling microscopy, atomic manipulation, atomic-precision device manufacturing, solid-state quantum chips

doi: [10.1360/CSB-2025-5148](https://doi.org/10.1360/CSB-2025-5148)