

同時発表：
筑波研究学園都市記者会（資料配布）
文部科学記者会（資料配布）
科学記者会（資料配布）



分子を用いた縦型共鳴トンネルトランジスタを開発

～既存の微細化プロセスを適応可能、シリコンを超えた高性能トランジスタの開発に期待～

配布日時：平成29年7月31日14時

解禁日時：平成29年8月1日18時

国立研究開発法人 物質・材料研究機構

概要

1. 国立研究開発法人物質・材料研究機構 国際ナノアーキテクトゥクス研究拠点 量子デバイス工学グループの早川竜馬 主任研究員、若山裕 グループリーダー、統合型材料開発・情報基盤部門 情報統合型物質・材料研究拠点の知京豊裕 副拠点長の研究グループは、分子を量子ドットとして用いた縦型共鳴トンネルトランジスタ^①の作製および動作の実証に成功しました。シリコンデバイスと同じ微細化プロセスを適応し、分子の持つ離散的なエネルギー準位を利用して、“0”と“1”の2値だけでなくトランジスタの多値制御^②に繋がる成果を得ました。次世代トランジスタに求められる微細化、高集積化、低消費電力化に加え、高速化を同時に実現する分子デバイス^③の開発につながると期待されます。
2. 単一分子をトランジスタやメモリの素子に用いる分子デバイスの開発は、究極のナノエレクトロニクスとして期待されており、ここ20年の間に、単一分子の電気伝導を計測する技術が確立され、分子の優れた機能が示されてきました。しかし、分子デバイスを集積する技術が確立されておらず、いまだ基礎物性の評価に留まっています。一方、シリコントランジスタのさらなる高速化、高集積化、低消費電力化を実現するため、電子のトンネルリングを用いたトンネルトランジスタ^④や、多値制御を可能とする単電子トランジスタ^⑤が注目されています。ただ、トンネルトランジスタは、“0”と“1”の2値動作という点では従来のトランジスタと変わらず、単電子トランジスタも量子ドットのサイズをナノスケールで均一に制御することが難しいため、いまだ実用化されていません。
3. これらの問題を解決するため、本研究グループはこれまで、絶縁体の間に分子を壊すことなく集積する技術を確認し、分子を量子ドットとして、絶縁体間に共鳴トンネル電流が流れることを実証してきました。分子はナノスケールで均一に合成できるため、サイズの制御も容易です。さらに、分子のエネルギー準位が分子設計や外場によって制御できる利点を活かして、共鳴トンネル電流の多値制御も可能であることを2端子構造において実証してきました。
4. 今回、上記成果をさらに発展させ、絶縁体部分に分子を内包したチャンネル層を、既存のリソグラフィ技術を用いて微細加工することにより、縦型共鳴トンネルトランジスタを作製しました。既存の微細化技術は、有機材料であるレジストや有機溶媒を使用するため、通常分子デバイスでは使用できません。しかし今回提案したトランジスタ構造では、分子が絶縁膜で保護されているためシリコンプロセスで培った微細化技術が適応できます。さらに、作製したトランジスタを用いて、低温条件下(20K)にて、ゲート電圧によってトンネル電流が階段状に変化する様子を観測しました。
5. 今回作成したトランジスタ構造は、縦型のため高集積化が可能で、トンネル電流を使うことで低消費電力化も実現できます。さらに、分子設計に基づいたトランジスタの多値制御が実現できることを示しており、シリコントランジスタの限界を超えた高速化、高集積化、低消費電力化を実現する次世代ナノトランジスタの開発が期待できます。
6. 本研究成果は、現地時間平成29年8月1日10時（日本時間8月1日18時）にイギリス王立化学会が発行するNanoscale誌に公開されます。

研究の背景

素子の微細化によって達成されてきたシリコントランジスタの高性能化は、限界を迎えつつあります。そのため、従来のトランジスタとは異なる、新しい動作原理で駆動するトランジスタの開発が求められています。さらなるトランジスタの高速化、高集積化、低消費電力化、多値制御を目指して、電子のトンネルリングを利用したトンネルトランジスタや、半導体や金属のナノ粒子を量子ドットとして利用する単電子トランジスタが注目されています。しかしながら、トンネルトランジスタは、“0”と“1”の2値動作という点では従来のトランジスタと変わりません。また、単電子トランジスタも、量子ドットの粒径をナノスケールで均一に制御することが困難なため、いまだ実用化には至っていません。

一方、単一分子を電子回路に用いる分子デバイスは、1974年に Aviram と Ratner による分子ダイオードの提唱以来、ポストシリコンデバイスとして精力的に研究されてきました。分子は、ナノスケールでの微小性と均一性に加え、離散したエネルギー準位を持ちます。そのため、優れた量子ドットとして機能します。さらに、分子のエネルギー準位が分子設計や外場によって制御できるため、無機材料量子ドットでは実現できない“分子機能”を活かした新しい量子効果デバイスが実現できると期待されています。しかしながら、提案から40年以上経った今でも実用化には至っていません。その問題点として実用的なデバイス構造が提案されていないことが挙げられます。走査型トンネル顕微鏡に代表されるナノプローブ電極や一次元金属細線の破断により形成するナノギャップ電極によって一つの分子の電気特性を評価できるようになりましたが、素子の高集積化には向きません。分子の持つ優れた機能を如何に実用デバイスの中で発現するかが重要な課題になっています。

我々は、現在のシリコンプロセスに適合した実用的な分子デバイスを実現するために、トランジスタの主構造である金属-絶縁体-半導体構造⁽⁶⁾の絶縁膜中に様々な分子を壊す事無く集積する技術を確立してきました。これまで内包した分子の離散したエネルギー準位に起因する明瞭な共鳴トンネル電流を観測することに成功しています。また、分子のエネルギー準位が置換基の付加や光によって制御できる利点を活かして異種分子を用いた共鳴トンネル電流の多値制御や光異性化分子を用いた光制御といった無機材料量子ドットでは実現できない分子機能を2端子構造デバイスの中で実証してきました。

研究内容と成果

今回、研究グループは、上記成果をさらに発展させ、分子を内包したトンネル2重接合⁽⁷⁾をチャンネル層に用いた新規縦型共鳴トンネルトランジスタを提案し、その動作実証に成功しました。図1に提案したトランジスタの模式図と実際に作製した素子の断面像を示します。分子には、これまで実績のあるC₆₀を用いました。個々の分子は、孤立分散した状態で絶縁膜である酸化アルミニウム(Al₂O₃)とシリコン酸化膜(SiO₂)の間に埋め込まれています。側面からゲート電圧を効率よく印加するために、分子を内包したトンネル2重接合を既存のリソグラフィ技術を用いて幅50nmの細線に微細加工しました。その後、ゲート絶縁膜とゲート電極を形成し、縦型トランジスタを作製しました。

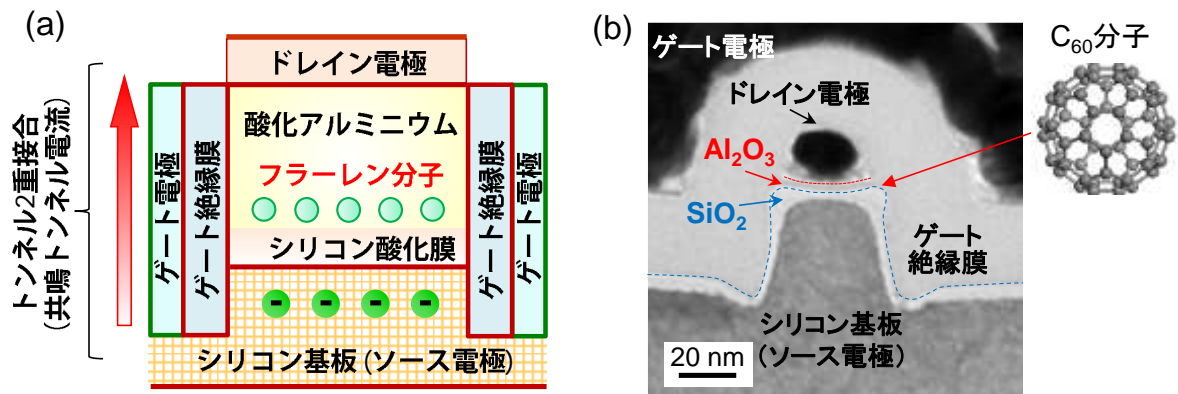


図 1. (a) 分子を内包した縦型共鳴トンネルトランジスタの模式図。(b) 作製した試料断面の走査型トンネル電子顕微鏡像。個々の分子が孤立した状態でドレイン電極直下に形成された酸化アルミニウム(Al₂O₃)とシリコン酸化膜(SiO₂)間に埋め込まれています。

今回提案した分子トランジスタの特徴は、ソース・ドレイン電極を縦方向に配置した縦型トランジスタ構造を採用しているため、素子の高集積化が期待できます。さらに、ソースドレイン電極間距離をナノ

メートルオーダーで精密に制御できるため、電子の量子トンネル効果を利用したドレイン電流制御が可能になります。これは、低消費電力化、高速スイッチングに繋がる技術として次世代トランジスタでは不可欠な要素になっています。さらに、分子の持つ離散準位を利用した共鳴トンネル電流を誘起できれば分子設計によって多彩な多値論理回路を形成することが可能になります。

また、従来の分子デバイスにおいて実用化を阻害する一つの要因として既存のリソグラフィ技術を用いた微細加工が非常に困難なことが挙げられます。有機材料であるレジストや有機溶媒を使用するため、目的の分子材料自体が溶解し、ナノ構造を形成することが困難だからです。一方、今回提案したデバイスにおいては、分子が絶縁膜中に内包され、絶縁膜が保護層として働きます。そのため、既存のリソグラフィ技術を用いた微細加工が可能になり高集積化に適した構造になっています。

図2(a), 2(b)に作製したトランジスタのドレイン電流ードレイン電圧特性を示します。測定温度は20 Kにおいて行っています。内包した分子のエネルギー準位に起因する明瞭な階段状のステップが観測されています。ゲート電圧を印加することにより、ドレイン電流が変調されていることから分子トランジスタとして機能していることが分かります。ドレイン電流の ON/OFF 比は 10^4 に達し、これまで報告されている単分子トランジスタや自己組織化膜を用いた単分子層トランジスタと比べ桁以上高い値を示しました。

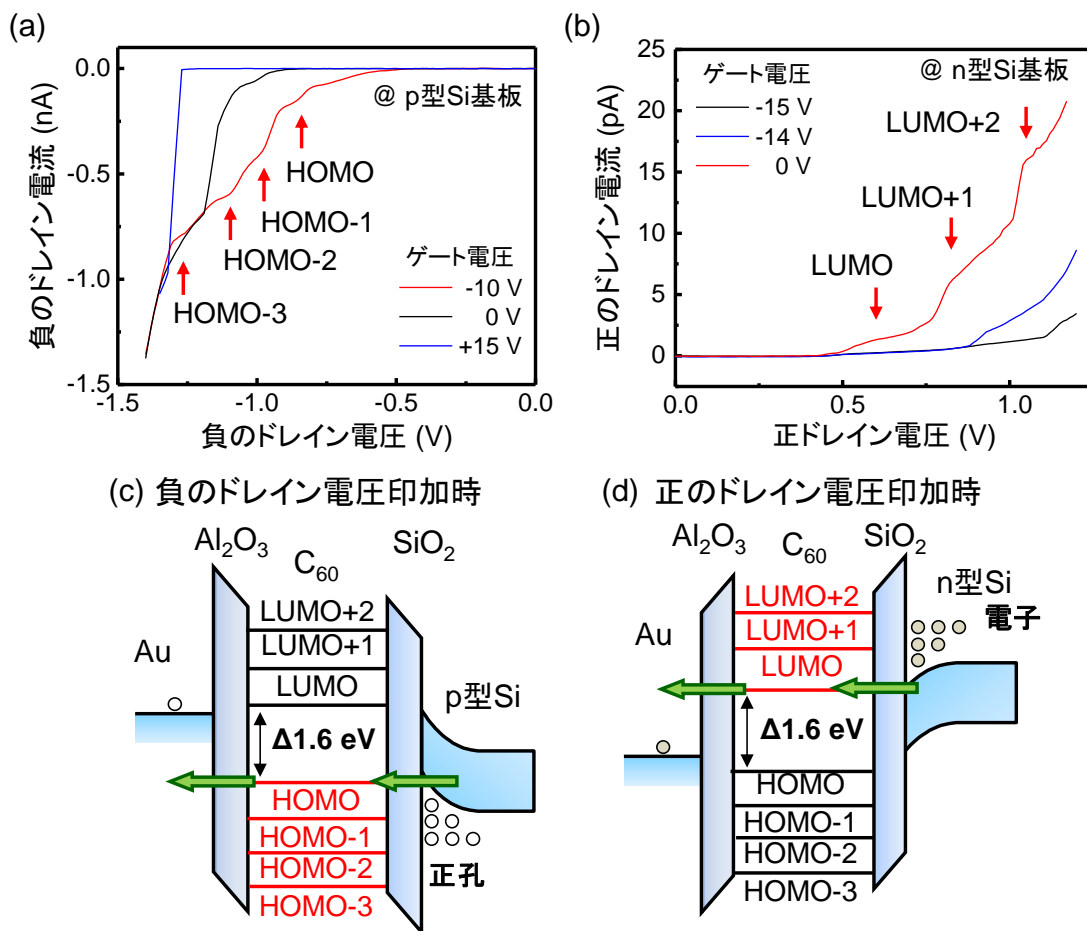


図2. (a), (b) 20 Kにおいて測定した縦型トランジスタのドレイン電流ードレイン電圧特性。(a)ではp型シリコン基板、(b)ではn型シリコン基板を用いています。内包したC₆₀分子の占有軌道および非占有軌道に起因する階段状のステップが観測されています。(c)負のドレイン電圧、(d)正のドレイン電圧を印加した場合のエネルギーダイアグラム、ソース電極として用いているシリコン基板から正孔あるいは電子が分子軌道を媒介してドレイン電極に流れていることを示しています。

ここで重要な点は、シリコン基板の伝導型 (p型、n型) を変えることにより、ドレイン電流ードレイン電圧特性において内包したC₆₀分子の占有軌道と非占有軌道に起因する階段状のステップが観測されていることです。p型シリコン基板を用いた試料では負のドレイン電圧領域において分子の占有軌道であるHOMO, HOMO-1, HOMO-2, HOMO-3に起因するステップが観測され、一方でn型シリコン基板を用いた試料では正のドレイン電圧領域において非占有軌道であるLUMO, LUMO+1, LUMO+2に帰属されるステ

ップが観測されています。この結果は、ソース電極として用いているシリコン基板から分子へ正孔あるいは電子が共鳴トンネリングによって輸送されていることを示しています(図(c),(d))。また、HOMO-LUMO間のエネルギーギャップは1.6 eVと見積もられ、単一C₆₀分子のものと非常によく一致します。一つのトランジスタの中には千個から1万個程度の分子が埋め込まれていますが、単一分子のエネルギー準位によってトランジスタのドレイン電流を多段階に制御できることを示しています。

提案したトランジスタにおけるドレイン電流の変調メカニズムを議論するために、分子のエネルギー準位に対応するステップ電圧位置とゲート電圧との関係を詳細に検討しました。その結果、シリコン基板内に形成される空乏層によってドレイン電流が効率的に変調されていることが明らかになりました。これまで報告されている分子トランジスタでは、ゲート電圧により分子のエネルギー準位を変化させることにより動作します。しかしながら、ゲート電圧による分子のエネルギー準位の変化率が極めて小さいためドレイン電流を制御することに課題がありました。一方、本提案デバイスでは、シリコン基板を電極として用いているため、シリコン基板内に形成される空乏層によってドレイン電流を制御できます。その結果として4桁に渡るドレイン電流変化を実現できたと考えられます。上記知見は、シリコンデバイスに分子を集積する重要な利点になります。

今後の展開

今回、分子を量子ドットとしてシリコンデバイスに集積した新しい縦型共鳴トンネルトランジスタを提案し、その動作を実証しました。実用的な分子トランジスタの開発に繋がる成果になります。今後、トランジスタチャネルとして用いている細線幅の低減やシリコン基板のキャリア濃度の最適化によって更なる高性能化が期待できます。さらに、分子のエネルギー準位によってドレイン電流を多段階に制御できることから、分子設計に基づいた多値化が実現できます。例えば、研究グループが確立してきた異種分子を用いたトンネル電流制御技術と組み合わせれば、共鳴トンネル電流の精密な閾値電圧制御が可能になります。さらに、光によって分子構造が可逆的に変化する光異性化分子を利用すれば、光制御可能な分子量子効果トランジスタが実現できます。このように、従来の無機材料デバイスでは実現できない分子固有の機能を兼ね備えた次世代トランジスタが実現できると期待されます。

掲載論文

題目：Vertical resonant tunneling transistors with molecular quantum dots for large-scale integration

著者：Ryoma Hayakawa, Chikyow Toyohiro, and Yutaka Wakayama

雑誌：Nanoscale

掲載日時：平成29年8月1日(オンライン版に掲載)

用語解説

(1) 共鳴トンネルトランジスタ

ナノメートルサイズの物質では量子閉じ込め効果により離散的なエネルギー準位をとります。その離散したエネルギー準位と電極のフェルミ準位が一致したときに流れる電流を共鳴トンネル電流と言います。共鳴トンネルトランジスタは、離散したエネルギー準位を流れる共鳴トンネル電流をゲート電圧によって制御するトランジスタです。

(2) 多値制御

現在のトランジスタは“0”あるいは“1”の2値により動作しています。その値を3つ以上に増やすことを多値化あるいは多値制御と言います。無機材料量子ドットの場合は、量子閉じ込め効果によりエネルギー準位の離散化が生じるため、エネルギー準位の間隔は量子ドットの粒径に依存します。一方、分子はもともと離散したエネルギー準位(分子軌道)を持つため分子サイズを制御する必要がありません。また、分子設計や外部刺激によってエネルギー準位を制御することができるため、従来の無機材料では実現できない多値制御が期待できます。

(3) 分子デバイス

単一分子をトランジスタやメモリといった電子回路の構成要素に用いたデバイスの総称。1974年に

Aviram と Ratner による分子ダイオードの提案以降、様々な分子デバイスが提案されています。

(4) トンネルトランジスタ

p 型と n 型半導体を接合した p-n 接合をチャンネル層に用いたトランジスタ。p-n 接合に電圧を印加したときに生じるツェナートンネリングを利用しています。電子のトンネリングを利用することにより従来の理論限界を超える急峻なスイッチングと低消費電力を実現できるため、次世代トランジスタとして注目されています。

(5) 単電子トランジスタ

量子ドットとして半導体や金属のナノ粒子をトンネル絶縁膜に集積した構造（トンネル2重接合）をチャンネル層に用いたトランジスタ。量子ドットに電子が入ったときに生じる帯電エネルギーによって電子一つ一つを制御することが可能になります。高速動作、低消費電力さらには多値制御を実現できるトランジスタとして期待されています。

(6) 金属-絶縁体-半導体構造

電圧を金属電極に印加することで生じる絶縁体の分極を利用してシリコン半導体の電荷を制御できるため現在のトランジスタの主要構造となっています。しかしながら、今回開発したトランジスタでは、全く異なる使い方をしています。絶縁体層に有機分子を量子ドットとして埋め込むことにより、金属-絶縁体-半導体構造をトンネル2重接合として用いています。このアイデアによって現在のシリコンプロセスと親和性を持った分子量子効果トランジスタが実現できます。

(7) トンネル2重接合

量子ドットを極薄のトンネル絶縁膜に内包した構造。単電子トンネリングや共鳴トンネリングといった量子効果現象を発現することができます。通常、量子ドットとして半導体や金属のナノ粒子が用いられますが、本研究においては分子を量子ドットとして用いています。

本件に関するお問い合わせ先

（研究内容に関すること）

国立研究開発法人 物質・材料研究機構

国際ナノアーキテクトゥクス研究拠点 ナノシステム分野 量子デバイス工学グループ

主任研究員 早川 竜馬 (はやかわ りょうま)

TEL: 029-860-4808 (直通), FAX: 029-860-4916

E-mail: HAYAKAWA.Ryoma@nims.go.jp

国立研究開発法人 物質・材料研究機構

国際ナノアーキテクトゥクス研究拠点 ナノシステム分野 量子デバイス工学グループ

グループリーダー 若山 裕 (わかやま ゆたか)

TEL: 029-860-4403 (直通), FAX: 029-860-4916

E-mail: WAKAYAMA.Yutaka@nims.go.jp

（報道・広報に関すること）

国立研究開発法人 物質・材料研究機構 経営企画部門 広報室

〒305-0047 茨城県つくば市千現 1-2-1

TEL: 029-859-2026, FAX: 029-859-2017

E-mail: pressrelease@ml.nims.go.jp