

令和元年6月10日現在

機関番号：10101

研究種目：挑戦的萌芽研究

研究期間：2016～2018

課題番号：16K14240

研究課題名(和文) 金属短針電流雑音誘起機構による半導体単一電子トラップ検出と評価

研究課題名(英文) Detection and characterization of single-electron-trap in a semiconductor based on a metal-tip-induced current noise mechanism

研究代表者

葛西 誠也 (Kasai, Seiya)

北海道大学・量子集積エレクトロニクス研究センター・教授

研究者番号：30312383

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 2,800,000円

研究成果の概要(和文)：半導体の中には電子トラップと呼ばれる電子の落とし穴が複数存在する。原子ほどの大きさしかない電子トラップを1つずつ捉えその電気的影響を調べる計測技術はまだない。本研究は、極細の金属短針によって原子レベルの空間分解能をもつ走査プローブ顕微鏡に、トラップに捕らわれ動きを制限された電子の電荷を増幅する独自のメカニズムを付与し、トラップを出入りする電子の動きを雑音として検知し分析する新しい単一トラップ計測技術を開発した。さらに、この計測技術を分子の電気的性質を調べることに応用した。

研究成果の学術的意義や社会的意義

半導体デバイスのなかに存在する電子の落とし穴である電子トラップは、電子の流れをゆがめたり電子が持っているエネルギーを奪い熱にかえてしまう。これらはデバイスの特性を劣化させたり、デバイス寿命を縮める原因になっている。本研究の成果は、個々の電子トラップの位置とその性質を捉える計測技術を提供することで、電子トラップが悪影響をおよぼすメカニズムの理解を助け、電子デバイスの安定動作や電子機器の長寿命化に貢献する。

研究成果の概要(英文)：A novel characterization technique for detecting single electron trap in a semiconductor surface has been developed in this research project. The characterization system is composed by integrating a scanning probe microscope, achieving atomic-scale spatial resolution owing to a very narrow metal tip, and a charge amplification mechanism using a semiconductor nanowire through the local capacitive coupling between the metal tip and the electron trap. The dynamic behavior of the electron in a single trap is detected as current noise in the semiconductor nanowire and the electric properties of the trap are characterized by the noise analysis. This characterization technique has been successfully applied to the characterization of the single molecular nano-particles.

研究分野：半導体電子デバイス

キーワード：半導体 単一電子トラップ 走査プローブ 表面準位 容量結合 電流雑音

様式 C-19、F-19-1、Z-19、CK-19 (共通)

1. 研究開始当初の背景

半導体デバイスの動作不安定や特性ばらつきなど信頼性低下の原因の1つがバンドギャップ中に存在する電子トラップである。その影響はFETのドレイン電流変動、半導体レーザの端面破壊、出力雑音の増大など様々な形で表れ、昨今デバイスサイズの縮小にともない一層顕著になっている。電子トラップがもたらす半導体内部の電気的影響は、局所的な帯電による電界の集中、キャリア再結合による漏れ電流発生、ランダム充放電による雑音発生など多種多様である。本質的な問題解決には個々の電子トラップを検出しその物性パラメータを知り制御することが不可欠である。しかしながら単一電子トラップを検出評価する適切な手法が存在しない。個々の電子トラップにアクセスすること、微小電荷の時間的変化の捕捉が難しいためである。

2. 研究の目的

本研究の目的は、独自に見いだした金属短針による雑音誘起機構と高空間分解能をもつ走査プローブ技術を組み合わせた時空間分解電流計測系を実現し(図1(a))、新たな単一電子トラップ評価手法を開拓することである。

3. 研究の方法

独自に編み出した金属短針による雑音誘起機構を用いた単一電子トラップ検出・評価原理(図1(b))を、導電性短針原子間力顕微鏡(AFM)、FET雑音評価系を組み合わせた独自の計測系、10年以上の技術的蓄積がある独自のエッチングGaAs系ナノワイヤデバイス作製技術と特性評価、化合物半導体表面物性に関する知見、確率共鳴はじめとする雑音に関わる現象と解析に関する知見を有機的に組み合わせて実現する。半導体単一トラップの計測系を確立し、トラップ空間位置・エネルギー・素子特性への影響の定量評価、単一トラップ物性パラメータのマッピング可視化や計測技術の応用へ展開する。

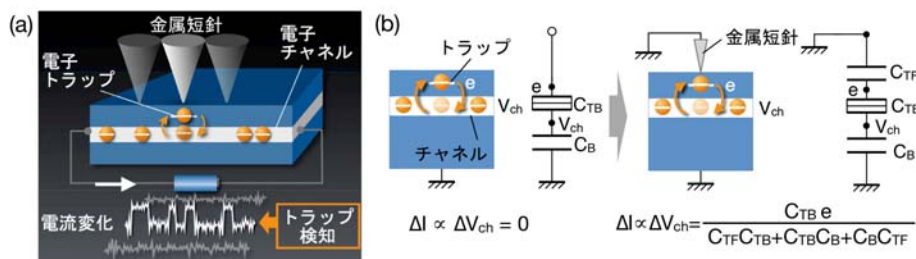


図1 金属短針誘起雑音による単一電子トラップ検出 (a)コンセプトと(b)原理. 単一トラップの電子電荷e充放電はサンプル表面の電位を固定することで明確にチャネルポテンシャルの変化 ΔV_{ch} に反映される.

4. 研究成果

本研究をすすめることで提案の計測系を実現できた。これを用い半導体表面の単一電子トラップを検出し、個々のトラップの電荷充放電時定数やエネルギーなどの物性評価が可能になった。短針位置依存性の計測まで到達したが、計測時間の長さや再現性に難があり当初計画の空間マッピングには至らなかった。一方、本評価技術を分子計測に展開し、分子電子物性評価に応用可能であることを示した。以下に本研究で得られた結果および知見について列記する。

(1) 深い電子トラップの検出

高い捕獲エネルギーをもつ「深い」電子トラップ状態が検出可能になった(5.学会発表(6))。トラップの捕獲エネルギーが大きい場合、時定数が非常に長く現実的な時間で電流変化を観測することができない。解決策として短針バイアス V_{tip} によるエネルギー補償を試みた。局所的な表面ポテンシャル変化によってトラップの捕獲エネルギーを相殺され(図2(a))ナノワイヤとトラップの電荷交換が可能になり、 $V_{tip} = 0$ Vでは観測できなかったランダムテレグラフシグナル(RTS)雑音が誘起された(図2(b))。詳細釣合いのもとでバイアスと充放電時定数から得られるエネルギーの関係は妥当なものであった。

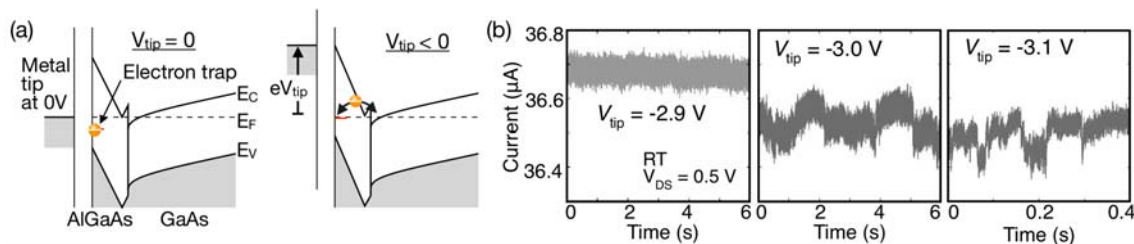


図2 (a)金属短針バイアスによるトラップエネルギーシフトと(b)観測されたRTS雑音.

(2) 雑音スペクトルから時定数分布を導く解析手法の開発

雑音スペクトル解析方法として、ナノワイヤ電流の雑音スペクトルからトラップ充放電時定数分布を解析的に導き出す強力な解析手法を熊本大学 谷田部然治先生との共同研究によって確立した(5. 雑誌論文(2))。従来は関数フィッティングによってスペクトル分解解析するしか手段がなく、フィッティングパラメータの選び方に任意性があった。本研究手法を用いることで一義的にスペクトルから時定数分布を得ることができる。具体例として、下記の分子ナノ粒子の雑音スペクトルから分子の充放電時定数を直接的に導き出した(5. 雑誌論文(2))。

(3) 分子の物性評価への応用

本研究の計測系を応用し Tetraphenylporphyrin (TPP, テトラフェニルポルフィリン) 分子ナノ粒子の電荷充放電プロセスを捉えることに成功した(5. 雑誌論文(4), 学会発表(4)等)。GaAs ナノワイヤ表面に分散した TPP 直上に金属短針を位置させると(図3(a))、ナノワイヤ電流に RTS 雑音が誘起された(図3(b), (c))。半導体ナノワイヤのフェルミエネルギーと差が大きく検出に光照射が必要であった分子に対しても、短針電圧バイアスにより光無しで検出可能となった。短針と被測定サンプルの結合容量を簡単なモデルで表現してエネルギーの見積りを行ったところ、定量的に妥当な結果が得られた。

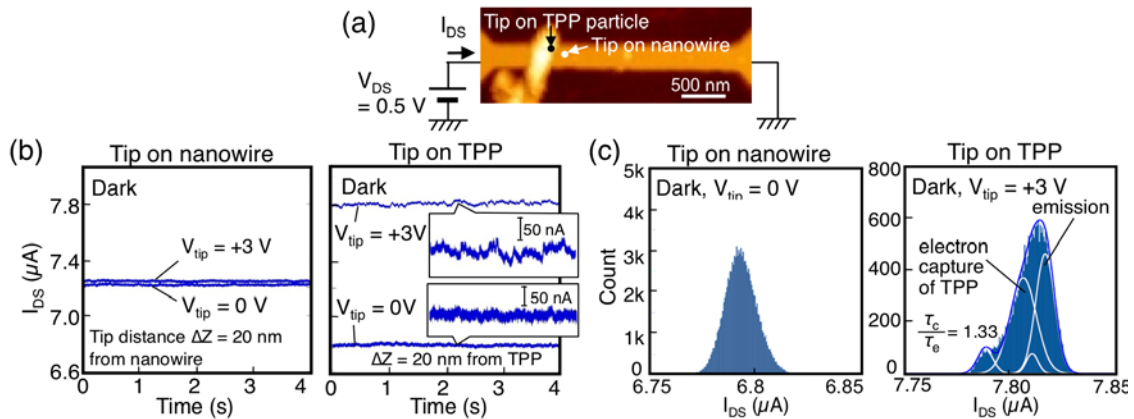


図3 (a) TPP ナノ粒子が分散されたナノワイヤと短針位置、(b) 計測ナノワイヤ電流と(c) 短針電圧印加時の電流ヒストグラム。

さらにポリ酸(Polyoxometalate, POM)分子の電荷状態計測を試みた(図4(a)) (5. 雑誌論文(1), 学会発表(1))。POM は多価イオン化するためバッテリー応用が検討されている分子である。ここでは Nature Communication 9, p. 2693 (2018)で Tanaka らが仮説としていた POM ナノ粒子における一斉電荷充放電の実験的検証を狙いとした。まず GaAs 系ナノワイヤ表面への分子ナノ粒子の分散方法と所望の密度で分散するプロセスを構築した(図4(b))。低密度の POM ナノ粒子を分散させて AFM 金属短針をアプローチし、ナノ粒子と短針が 20 nm 程度に近接すると容量結合が形成される。ここで短針に電圧印加するとステップ関数的な電流変動が起こることを確認した(図4(c), (d))。観測された電流変化量から、多数の電荷が一斉に充放電していることがわかった。単なる容量結合による電荷変化ではなく、一定の時間経過後に電荷変化をおこす鹿威し型ダイナミクスをもつことを直接的に捉えた。この結果は Tanaka らの仮説を立証するものである。また、ナノワイヤ電流変動量は大気中の湿度と強く相関していることがわかった。POM ナノ粒子の特徴的な電荷ダイナミクスは環境と分子の相互作用に起因しているといえる。

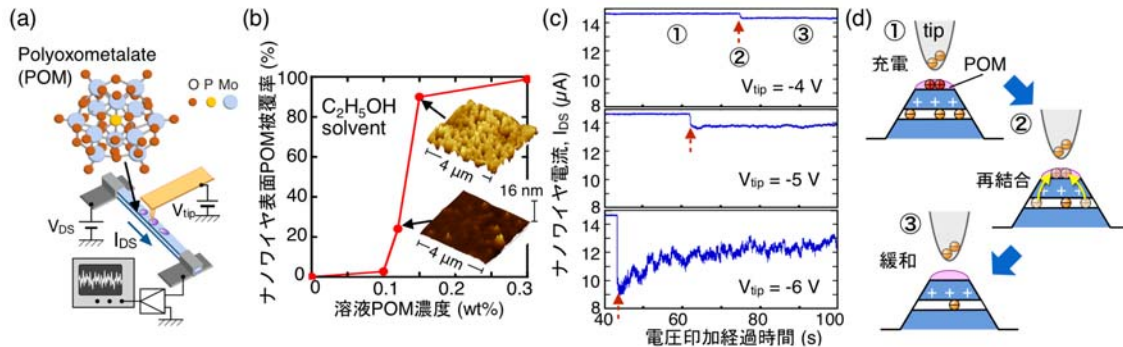


図4 (a) POM 分子と計測系模式図、(b) POM 分散エタノール溶液の POM 密度とドロップキャストによって GaAs ナノワイヤ表面に形成された POM ナノ粒子被覆率、(c) 短針電圧印加したときのナノワイヤ電流経時変化、(d) 推測される系の電荷状態の変化。

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕（計8件）

- (1) K. Sasaki, S. Okamoto, S. Tashiro, T. Asai, and S. Kasai, “Formation and Characterization of Charge Coupled Structure of Polyoxometalate Particles and a GaAs-based Nanowire for Readout of Molecular Charge States”, Jpn. J. Appl. Phys. (accepted) (査読有) .
- (2) Z. Yatabe, S. Inoue, J. T. Asubar, and S. Kasai, “Analytical derivation of charge relaxation time distribution in a transistor from current noise spectrum using inverse integral transformation method”, Appl. Phys. Express 11, pp.031201.1-4 (2018) (査読有) .
- (3) A. Setiadi, H. Fujii, S. Kasai, K. Yamashita, T. Ogawa, T. Ikuta, Y. Kanai, K. Matsumoto, Y. Kuwahara, and M. Akai-Kasaya, “Room-temperature discrete-charge-fluctuation dynamics of a single molecule adsorbed on a carbon nanotube”, Nanoscale 30, pp.10674-10683 (2017) (査読有) .
- (4) S. Okamoto, M. Sato, K. Sasaki, and S. Kasai, “Detection of charge dynamics of a tetraphenylporphyrin particle using GaAs-based nanowire enhanced by particle-metal tip capacitive coupling”, Jpn. J. Appl. Phys. 56, pp.06GK02.1-6 (2017) (査読有) .

〔学会発表〕（計20件）

- (1) K. Sasaki, S. Okamoto, S. Tashiro, T. Asai, and S. Kasai, “Charge Coupling between Polyoxometalate Molecule and a GaAs-Based Nanowire for Readout of Molecular Multiple Charge State”, 31st International Microprocesses and Nanotechnology Conference (MNC2018), Nov. 13-16, 2018, Sapporo Japan.
- (2) K. Sasaki, S. Okamoto, S. Tashiro, T. Asai, and S. Kasai, “Characterization of stochastic charge dynamics of polyoxometalate dispersed on a GaAs-based nanowire FET”, International Workshop on Molecular Architectonics 2018, Mar. 2-3, 2018, Toyonaka, Osaka, Japan.
- (3) 佐々木健太郎、岡本翔真、殷翔、佐藤将来、葛西誠也、「多重ゲートナノワイヤ FET による空間分布分子電荷検出実証のための単一分子表面分散手法の検討」、第 64 回応用物理学会春季学術講演会、2017 年 3 月 14 日-17 日、パシフィコ横浜、横浜。
- (4) S. Okamoto, M. Sato, K. Sasaki, and S. Kasai, “Detection of Charge State of Single Molecules Using A GaAs- Based Nanowire Enhanced by Metal-Molecule Capacitive Coupling”, 29th International Microprocesses and Nanotechnology Conference (MNC2016), Nov. 8-11, 2016, Kyoto, Japan.
- (5) K. Sasaki, R. Kuroda, X. Yin, M. Sato, T. Ogawa, and S. Kasai, “Fabrication and Characterization of A Multiple Gate Nanowire FET for Detecting Spatially Distributed Molecular Charges”, The 43rd International Symposium on Compound Semiconductor (ISCS2016), June 26-30, 2016, Toyama, Japan.
- (6) 佐藤将来、殷翔、黒田亮太、葛西誠也、「金属探針表面局所電位変調による GaAs 表面トラップ位置の評価」、第 77 回応用物理学会秋季学術講演会、2016 年 9 月 13 日-16 日、朱鷺メッセ、新潟。

〔図書〕（計2件）

- (1) 葛西誠也、「3 章 Basic concept-4 : 揺らぎを利用したエレクトロニクス」、CSJ カレントレビュー「分子アーキテクトニクス 単分子技術が拓く新たな機能」、日本化学会編、化学同人、2018 年 12 月 25 日、8 頁。
- (2) S. Kasai, S. Inoue, S. Okamoto, K. Sasaki, X. Yin, R. Kuroda, M. Sato, R. Wakamiya, and K. Saito, “Detection and Control of Charge State in Single Molecules Toward Informatics in Molecular Networks”, Molecular Architectonics -The Third Stage of Single Molecule Electronics-, Ed. T. Ogawa, Springer, Switzerland (2017), pp.69-94.

〔産業財産権〕

- 出願状況（計0件）
- 取得状況（計0件）

〔その他〕

ホームページ等

<https://www.rciqe.hokudai.ac.jp/labo/qid/>

6. 研究組織

- (1) 研究分担者 なし
- (2) 研究協力者 なし