OUKA
The University of Osaka
Institutional Knowledge Archive

Title	高温動作単一電子トンネリングデバイスのための Cr/Cr_2O_3 構造の作製と評価
Author(s)	若家, 冨士男; 蒲生, 健次
Citation	大阪大学低温センターだより. 1996, 96, p. 1-6
Version Type	VoR
URL	https://hdl.handle.net/11094/10212
rights	
Note	

The University of Osaka Institutional Knowledge Archive : OUKA

https://ir.library.osaka-u.ac.jp/

The University of Osaka

研究ノート

高温動作単一電子トンネリングデバイスのための Cr/Cr_2O_3構造の作製と評価

基礎工学部　若家冨士男、蒲生健次（内線6302）
E-mail:wakaya@ee.es.osaka-u.ac.jp

1　はじめに

半導体集積回路の集積化・微細化はとどまるところを知らず、現在では 1μm以下の加工サイズの集積回路が量産されている。研究室レベルでは、ナノメートル程度のサイズの加工法の研究やさらには、原子をひとつひとつ操作する究極の微細加工の研究が行われているのが現状である。現在のトランジスタの動作原理のままではそのような超微細な領域でトランジスタが動作しなくなるのは明らかであり、超高集積化された次世代の電子デバイスは動作原理の変更にせまられているわけである。単一電子トンネリング現象はそのような次世代の電子デバイスの動作原理の最も有力な候補のうちの一つと考えられており、世界中で活発な研究が進められている。単一電子トンネリング現象は希釈冷凍機を使った極低温で観測できる現象であったが、近年微細加工技術を駆使して高温で観測する研究が盛んに行われてきている[1-3]。我々は、単一電子トンネリング現象を高温で観測することを目的として新しい材料と加工法を提案した。始めたばかりのテーマであるのでデータの蓄積が不十分であるが、現在得られている結果について以下に紹介し議論する。専門外の人にも予備知識なしに理解できるようにとのご依頼であったので、セクション2では浅学を顧みず簡単な解説を行った。この分野に詳しい方はこのセクションを読み飛ばしていただけると幸いである。

2　単一電子トンネリング

図1(a)のような電気回路を考える。破線で囲った部分は電気的には浮いている部分でアイランドと呼ぶ部分である。アイランドの電荷がニュートラルのときは、コンデンサの電極の電荷をQとおくと図1(b)のような状況になる。回路理論（電磁気学）によるとこの状態で系が貯えているエネルギーは

$$E_1=\frac{Q^2}{2C_1}+\frac{Q^2}{2C_2} \tag{1}$$

である。$Q=C_1V_1=C_2V_2$と$V_1+V_2=V$の関係を使うと

$$E_1=\frac{1}{2}CV^2 \tag{2}$$

となる。ただし、Cはコンデンサの直列合成キャパシタンスで$C=C_1C_2/(C_1+C_2)$である。また、この状態でのアイランドの電位は

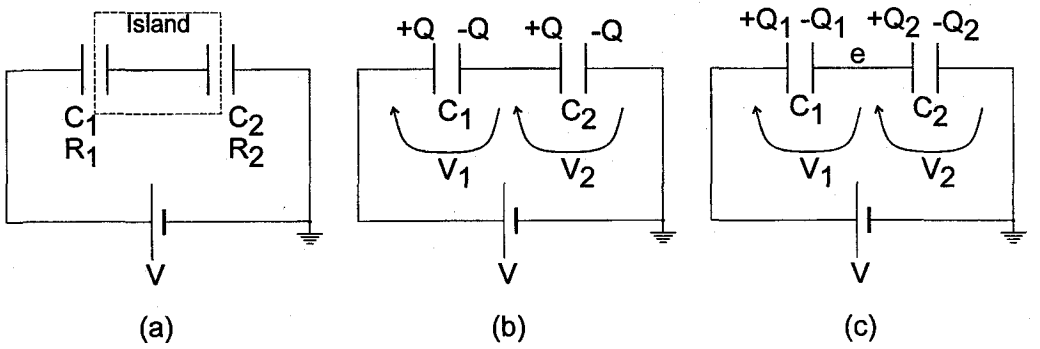

図1　クーロンブロッケードを説明するための回路図。コンデンサC_1、C_2は、通常のコンデンサではなく、絶縁体の膜厚が非常に薄いので、電子が電極間をトンネルすることが出来るようなものを考えている。そのときのトンネル抵抗がそれぞれR_1, R_2である。(a)のような回路に電源電圧Vを印加した状態を考える。(b)ではアイランドの電荷がニュートラル、(c)ではコンデンサを通してひとつの電子がトンネルした結果アイランドの電荷がeになっている。

$$V_2=\frac{C_1}{C_1+C_2}V \tag{3}$$

である。つぎに、1つの電子がコンデンサを通してトンネルしたことによりアイランドにeの電荷が溜まっている状況（図1(c)）を考える。この状況で系が貯えているエネルギーは

$$E_2=\frac{Q_1^2}{2C_1}+\frac{Q_2^2}{2C_2} \tag{4}$$

である。$Q_1=C_1V_1$、$Q_2=C_2V_2$、$e=-Q_1+Q_2$および$V_1+V_2=V$の関係を使うと

$$E_2=\frac{1}{2}CV^2+\frac{e^2}{2C_\Sigma} \tag{5}$$

と整理できる。ここで、C_Σはコンデンサの並列合成キャパシタンスで$C_\Sigma=C_1+C_2$である。また、この状態でのアイランドの電位は

$$V_2=\frac{C_1}{C_1+C_2}V+\frac{e}{C_\Sigma} \tag{6}$$

である。式(2)、式(3)、式(5)および式(6)より1つの電子がトンネルすることによりアイランドの電位が$\frac{e}{C_\Sigma}$だけ変化し、系のエネルギーは$E_2-E_1=\frac{e^2}{2C_\Sigma}\equiv E_C$だけ増加したことがわかる。このエネルギー$E_C$をチャージングエネルギーと呼ぶ。$\frac{e}{C_\Sigma}$以上の電圧を印加してチャージングエネルギーに相当する仕事を電池が系にしてやらないと、電子はトンネルすることができないわけである。このように電子のトンネルが抑制される現象をクーロンブロッケードと呼ぶ。クーロンブロッケードの状態をオンにしたりオフにしたりしながら、電子をひとつひとつトンネルさせるのが単一電子トンネリングである。キャパシタンスの値がpF程度の通常の場合を考えるとE_Cは10^{-24}J(10^{-2}meV)程度の大きさになり、非常に小さいので電子は熱的なエネルギーにより簡単にトンネルしてしまい単一電子トンネリングは観測できない。言い換えると

$$E_C \equiv \frac{e_2}{2C_\Sigma} \gg k_B T \tag{7}$$

を満たすような十分な低温にしてはじめて単一電子トンネリングを観測することができるのである。ここで、k_Bはボルツマン定数、Tは絶対温度である。また、単一電子トンネリングを観測するためにはアイランドの電荷は電気素量eの単位で量子化されていなければならないので、

$$R_1 \gg R_q \text{ and } R_2 \gg R_q \tag{8}$$

となっていなければならない。ここで $R_q \equiv \frac{h}{2e^2} \sim 13\mathrm{k}\Omega$ は抵抗の量子である（hはプランク定数）。ただし、R_1, R_2が∞だと、トンネル電流がまったく流れないので適当な大きさでなければならない。すなわち、単一電子トンネリングを観測するための式(7)以外のもう一つの条件は、

$$\infty \gg R_1 \gg R_q \text{ and } \infty \gg R_2 \gg R_q \tag{9}$$

である。

3　高温動作をめざして

セクション２の議論より、単一電子トンネリング現象を高温で観測するためには、$\frac{e^2}{2C_\Sigma} \gg k_B T$ を満足するように十分小さいキャパシタンスを実現しなければならない。そのためには、(1)コンデンサの接合面積を小さくする、(2)コンデンサの材料に誘電率の小さい材料を選ぶ、(3)コンデンサの電極間距離を大きくする、の３つの方法が考えられる。(1)については、電子ビームリソグラフィーを用いると数十nm程度の加工はできるので、10nm×10nm程度の接合面積の実現が限界であるかと思われる。STMなどを使った極限的な加工をすればさらに小さくすることはできると思われる[1)]。我々はパターン設計の自由度が大きくまたすでに確立された技術である電子ビームリソグラフィーを用いることにした。(2)については今回はあまり考慮しなかったが、材料を選ぶときの指針とすればよいであろう。(3)については電極間距離を大きくするのは容易であるが、大きくしすぎるとトンネル抵抗が無限大になってしまいトンネル電流が流れなくなってしまう。セクション２で述べたようにトンネル抵抗の値は式(9)をみたす範囲でなければならないのである。

図２は挿入図のようなポテンシャル障壁を電子がトンネルする時のトンネル抵抗の値を数値計算したものである[4)]。数値計算のパラメータは、接合面積を10nm×10nmとし、バリアの高さを金属における典型的な値としてU=10eVとした。図ではフェルミレベルのところの電子が感じるバリアの高さϕをパラメータとし、バリアの厚さとトンネル抵抗の値をプロットしてある。この図でグレーにしてある範囲が式(9)を満たしている範囲と考えることにする。電極とバリアの材料の組み合わせを決めてしまうと

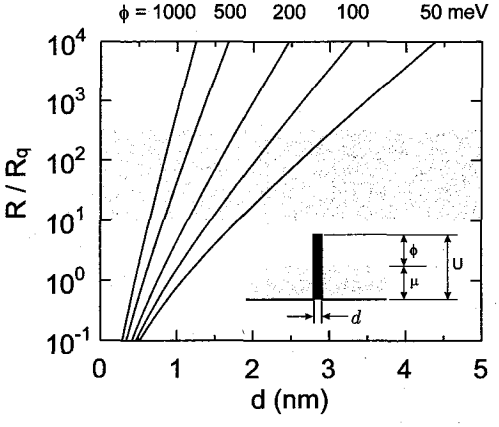

図２　トンネル抵抗の数値計算の結果。

（ϕの値を固定してしまうと）、式(9)を満たすためには電極間距離の設定にはあまり自由度がないことがわかる。逆に、小さいキャパシタンスを実現するためにコンデンサの電極間距離を大きくしようとするとポテンシャルバリアの高さϕの小さい材料を選ぶべきであるといえる。そのような観点から我々はクロムとその酸化物（ϕ＝60meV）に注目した[3]。

4　電子ビーム選択酸化プロセス

図3に我々が作製した試料の模式図とSEM写真を示す。通常の電子ビームリソグラフィー、電子ビーム蒸着およびリフトオフプロセスを用いて、厚さ3 nmのCrの細線をSiO_2/Si基板の上に作製した。その試料を再び電子ビーム露光装置にセットし、酸素および水蒸気の雰囲気中で電子ビームを照射することにより、選択的にCrを酸化した。なお、電子ビーム露光装置は試料の付近のみに局所的にO_2ガスやH_2O

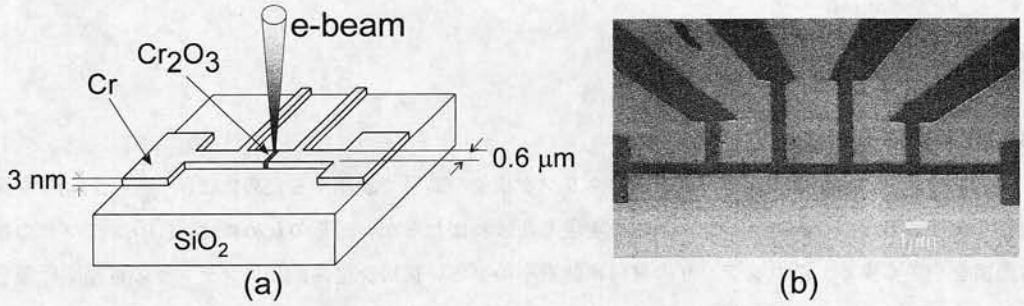

図3　作製した試料の模式図とSEM写真

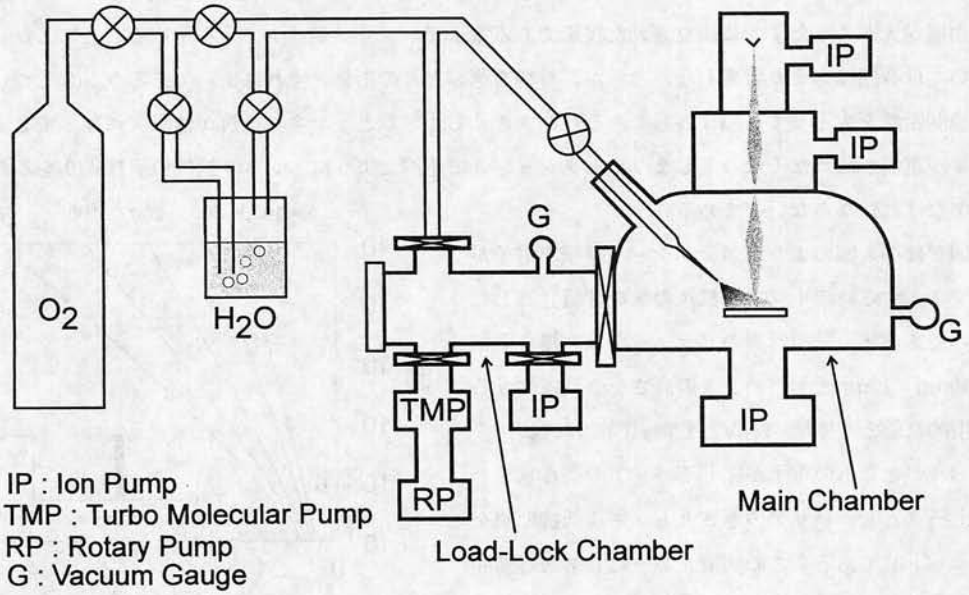

図4　電子ビーム選択酸化プロセスのためのノズルを取り付けた電子ビーム露光装置の構成図

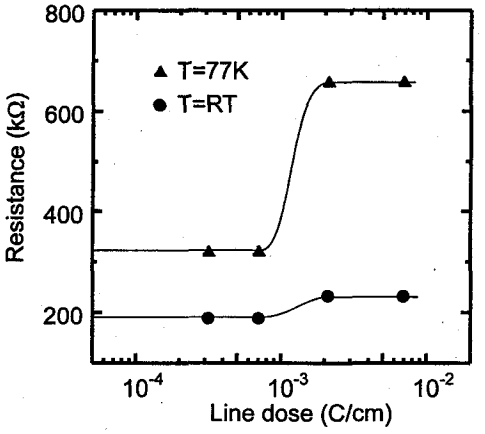

図5　試料の電気抵抗と電子ビームの照射量との関係（実験結果）

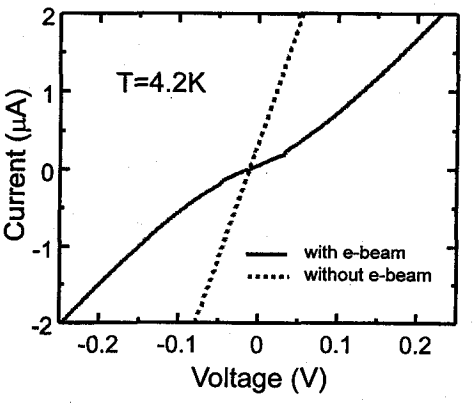

図6　試料の電流－電圧特性

ガスを導入できるように、ノズルを取り付ける改良を加えた（図4参照)。チャンバーのベース真空度は10^{-6}Pa程度、ノズルからガスを導入している時は10^{-4}Pa程度であった。ただし、試料の周辺の真空度はさらに悪いと思われる。

そのようにして作製された試料を四探針法で抵抗測定した結果を図5に示す。電子ビームの照射量が10^{-3}C/cmのあたりで電気抵抗が急激に大きくなる現象が観測された。この現象は10^{-3}C/cm程度の照射量でCrの酸化がCr薄膜の底まで到達したことを示していると考えられる。また、$Cr/Cr_2O_3/Cr$構造ができた時の抵抗の増加分が室温の時の方が77Kの時に比べて小さいのはCr/Cr_2O_3のポテンシャルバリアの高さが小さい（60meV）ことから理解できる。図6に液体ヘリウム温度での電流－電圧特性を示す。この試料では電子ビームの照射量は2.8×10^{-2}C/cmであった。電子ビームを照射すると明らかに電流－電圧特性に変化が見られている。電子ビームを照射した試料で見られている非線型な電流－電圧特性は$Cr/Cr_2O_3/Cr$構造ができたことによるトンネル電流が流れていることを示していると考えられる。零電圧付近のグラフの傾きからCr_2O_3の幅を概算すると約6nmとなり電子ビームの直径と同程度となっていることが確認できた。

5　おわりに

高温動作単一電子トンネリングデバイスの実現をめざして、Crの電子ビームによる選択酸化プロセスの検討を行った。厚さ3nmのCr薄膜は電子ビームの照射量が10^{-3}C/cm程度で酸化できることがわかった。非線型な電流－電圧特性を観測し、そこからCr_2O_3の幅を概算すると約6nmとなった。以上の実験事実より、今回提案したO_2:H_2O混合ガス雰囲気中での電子ビーム照射によるCrの選択酸化プロセスは高温動作単一電子トンネリングデバイスの実現のための微小トンネル接合の作製プロセスとして有望であると思われる。ただ、本稿で紹介したプロセスはCrの膜厚や表面のコンタミネーションなどの条件が不均一であることの影響を受けやすく、再現性の高い実験を行うことが難しかった。現在、他の材料や還元プロセスなども視野に入れながら実際に高温で単一電子トンネリングを観測するべく研

究を続けているところである。

本稿で紹介した実験の一部は本学大学院基礎工学研究科前期課程の学生である松谷正博氏が行ったものである。また、電気抵抗や電流－電圧特性の評価の際には、本学大学院理学研究科教授邑瀬和生先生の研究室の装置をお借りした。邑瀬先生をはじめ鷹岡貞夫先生、音賢一先生にはいつもお世話になっており、この場を借りてお礼申し上げる。

参考文献

1）K. Matsumoto, M. Ishii, K. Segawa, Y. Oka, B. J. Vartanian and J. S. Harris: Extended Abstracts of the 1995 International Conference on Solid State Devices and Materials, Osaka, 1995, 192

2）W. Chen, H. Ahmed and K. Nakazato: Appl. Phys. Lett. **66** 3383 (1995)

3）S. Altmeyer, B. Spangenberg and H. Kurz: Appl. Phys. Lett. **67** 569 (1995)

4）武内義尚，御子柴宣夫：トンネル現象の物理と応用（培風館　1987）2章