

## 研究課題別事後評価結果

### 1. 研究課題名「ネオシリコン創製に向けた構造制御と機能探索」

### 2. 研究代表者名及び主たる研究参加者名（研究機関名・職名は研究参加期間終了時点）

研究代表者 小田 俊理（東京工業大学量子ナノエレクトロニクス研究センター 教授）

主たる共同研究者

水田 博（東京工業大学大学院理工学研究科 電子物理工学専攻 助教授）

土屋 良重（東京工業大学量子ナノエレクトロニクス研究センター 助手）

越田 信義（東京農工大学 工学部電気電子工学科 教授）

Haroon. Ahmed（ケンブリッジ大学キャベンディッシュ研究所 名誉教授）

Zahid A.K. Durrani（ケンブリッジ大学工学部 研究員）

高木 一正（日立ヨーロッパ コーポレートテクノロジーグループ ゼネラルマネージャ）

尾内 享裕（日立製作所 研究開発本部 センター長）

中里 和郎（名古屋大学大学院理工学研究科 教授）

嶋田 壽一（QUANTUM 14 代表取締役）

### 3. 研究内容及び成果

本研究では、粒径数nmのナノ結晶シリコン量子ドットを、間隔1～2nmに制御し配列させる新材料「ネオシリコン」を提案し、独自のアイデアによりこれを形成して、その機能を探索することを目的とした。実施にあたっては、研究全体を(1)ネオシリコン作製と構造制御、(2)ネオシリコン電気特性制御、(3)ネオシリコン発光・電子放出特性制御、(4)ネオシリコンの素子応用検討、の4つの大きなタスクに分け、東工大量子効果エレクトロニクスセンター（現：量子ナノエレクトロニクス研究センター）、ケンブリッジ大学キャベンディッシュ研究所、東京農工大学、日立ケンブリッジ研究所、日立製作所中央研究所、の5研究機関をメンバーとした国際産学連携チームで、互いに密接な連携を図りながら推進された。主な成果は以下の通りである。

#### (1)ネオシリコン作製と構造制御

VHFデジタルプラズマCVD技術において、原料ガスの種類やパルス供給時間、プラズマセル圧力など粒子形成条件の総合的制御を行い、最小粒径 5nm、分散 $\pm 1$ nmの極めて均一性の高いシリコン粒子の作製に成功した。また、ナノ結晶シリコンドットの周囲に形成される酸化膜のストレス効果による酸化速度の自己停止機構を利用した寸法制御法を検討した。750℃で酸化を行うと、酸化速度の飽和が起こり、初期の寸法 10nmの粒子は 4nmで安定することをTEM観察により確認した。低温ラジカル窒化技術を開発して、薄くて均一な窒化膜をシリコン量子ドットの表面に形成する方法を開発した。更に、ナノ結晶シリコンドットの高密度化・高集積化を図るために、弗酸、純水、メタノール等、種々の溶液中にナノ結晶シリコンドットを分散させ、その濃縮溶液を基板上に滴下・蒸発させる手法を検討した。その結果、メタノールを溶媒とした分散液により、面密度で約  $7 \times 10^{11} \text{ cm}^{-2}$  の高密度化に成功した。

#### (2)ネオシリコン電気特性制御

ナノ結晶シリコンドット間のトンネル過程に着目して、ネオシリコンの電気特性を調べると同時に、単電子デバイス応用を検討した。チャネルが1個～数個のナノ結晶シリコンドットで構成された量子ポイントコンタクトトランジスタを作製し、シリコンナノ構造の単電子輸送特性を系統的に調べた。また、ネオシリコン中の粒界特性を制御するため、2段階酸化処理（低温長時間酸化＋高温アニーリング）プロセスを考案し、厚さ2～3nm、エネルギー障壁高さ 170 meV の良質なトンネル障壁を形成することで、室温で電流のクーロン振動を示す単電子トランジスタの開発に成功した。

また、2つのナノ結晶シリコンドット間の相互作用を観測・評価するため、チャネル内に2個の並列量子ドットを有するポイントコンタクトトランジスタを作製した。その結果、2個のナノ結晶シリコンドット間の静電相互作用による電流ピークのスイッチング現象を観測するとともに、2ドット間の量子力学的結合によって準分子状態が形成されていることを、シリコン系で初めて観測することに成功し

た。

### (3) ネオシリコン発光・電子放出特性制御

高効率・高安定の発光素子、ならびに高機能の面放出電子源の開発を目的として、ナノ結晶シリコンの発光特性および電子放出の特性評価を行った。シリコン発光素子の高効率化については、酸化処理の適正化によるリーク電流低減を行い、また動作安定化については、素子の表面を $\text{SiO}_2$ 膜でキャップする方法とナノ結晶シリコン表面水素終端を共有結合で置き換える方法を開発した。マルチカラー化については、ナノ結晶シリコンのサイズ制御のみで赤・緑・青色発光を得ている。

弾道性冷電子放出の機構解明に関しては、酸化膜で覆われたナノ結晶シリコンドットの1次元鎖構造の理論解析を行い、(a) 音響ひずみポテンシャル強度がバルクシリコンに比べて減少すること、(b) 電子のミニバンド下端において電子のフォノン放出によるエネルギー損失が大きく抑制されることなどを解明した。また、放出電子のエネルギー分布測定を行い、高エネルギー領域で電子が準弾道的に放出されていることを実証した。弾道性冷電子放出素子の大面積化については、TFT 用ガラス基板上に電子放出素子アレイを構成する低温プロセス技術を開発した。さらに、プラズマディスプレイ用ガラス基板を用いたプロトタイプの対角 2.6 インチ 168×126 画素さらには 7.6 インチ 336×252 画素のフルカラー薄型平面ディスプレイを試作し、単純マトリクス方式による動画表示を確認した。また、蛍光体として有機および無機の薄膜をナノ結晶シリコン層に堆積した弾道電子励起形の全固体発光素子を開発し、面発光動作を確認した。

### (4) ネオシリコンの素子応用検討

社会ニーズとネオシリコンが持つ特徴あるメリットに注目し、超低消費電力素子と高機能表示素子応用を検討した。ネオシリコンが持つクーロン遮蔽効果による高インピーダンス性と、ネオシリコンをナノ変位機構に組み合わせた不揮発性を組み合わせ、超低消費電力不揮発性 NEMS メモリの概念を提案し、その鍵となるフローティン両持ち梁のナノ変位機構、動作速度、素子のオンオフ比、消費電力などの特性予測をシミュレーションにより行うとともに、両持ち梁構造の試作・機械的特性の評価を行った。その結果、素子設計に必要なナノ領域での変位効果の特徴と構造最適化のガイドラインを明らかにするとともに、作製した梁の機械的雙安定性を実証することが出来た。また、ネオシリコンからの弾道電子放出の特異性に注目し、弾道電子放出素子とナノ蛍光体を組み合わせた、真空不要の平面ディスプレイの基本機能の検証を進めた。ナノ結晶シリコン膜低エネルギー電子照射によるナノ蛍光体の発光特性の評価を行ない、本応用の可能性実証を行った。

## 4. 事後評価結果

### 4 - 1. 外部発表(論文、口頭発表等)、特許、研究を通じての新たな知見の取得等の研究成果の状況

論文発表は英文99件、和文2件、そのうち招待されたものが夫々8件、2件、口頭発表(ポスター発表含む)は国際会議129件、国内会議41件、そのうち招待されたものが夫々17件、2件、特許出願は国内6件、海外4件など国際的評価の高い学会誌や国際会議に多くの優れた研究成果が発表されており、下記は中でも特筆すべきもので、いずれも世界で初めて報告された独創的な成果である。

ナノ結晶シリコン粒子の径制御数値目標の達成

近接したシリコンナノ粒子間の電子における量子力学的相互作用の観測

ネオ・シリコンからの電子放出の効率改善と安定化を通しディスプレイ・デバイスを実証

トンネル障壁を制御した単電子デバイスで室温クーロン・ブロッケードの観測

ナノメカニカル・メモリー素子の提案と、その原理検証

### 4 - 2. 成果の戦略目標・科学技術への貢献

本研究チーム成果の戦略目標「ネオシリコン創製に向けた構造制御と機能探索」及び科学技術への貢献は下記の3点に要約することができる。

VHF パルス・プラズマ法、ラジカル窒化法等によるネオ・シリコンの構造制御技術

近接したドット間の量子力学的相互作用や、ポイント・コンタクト特性のシリコンにおける初めて

の観測、バリスティック電子放出、特にフォノンの局在と量子化によるバリスティック輸送の証明  
ネオ・シリコンを使用したフルカラー平面ディスプレイ素子の実現、ナノメカニカルメモリー素子の提案と原理検証

#### 4 - 3 . その他の特記事項 (受賞歴など)

ネオ・シリコンの研究自体が本チーム以外には例がなく、シリコンナノ粒子の均一粒径制御技術、ネオシリコン構造からの発光・電子放出技術、ネオシリコンのデバイス応用はいずれも世界最高水準である。量子ドット構造の制御技術の高度化により、Siにおいて初めて量子結合ドットの実現、及びクーロン階段の実証の科学的インパクトは大きく、ネオシリコンからの弾道電子放射は新規な発光デバイス、LSIのチップ間連結などへの展開が期待できる。

本研究は大学と民間、日本と英国という組み合わせのチームであったが、異質のプレイヤーのシナジーを十分に発揮することに成功し、実用化までには更に研究が継続される必要があるが、将来発展の期待が大いにあり、平面ディスプレイやナノメカニカルメモリー素子など企業化が期待される研究成果があり戦略的創造研究の目的を十分満足する成果である。

受賞については以下の通りである。

・藤野研究賞 小田俊理 2002

・第25回半導体物理国際会議 Young Author Best Paper Awards “Katsuhiko Nishiguchi and Shunri Oda, Ballistic transport under magnetic field in silicon vertical transistors”, 2000.

・Materials Research Society Fall Meeting, Graduate Students Paper Awards, “K.Nishiguchi, S.Oda, Fabrication and Characterization of Cold Electron Emitter based on Nanocrystalline Silicon Quantum Dots”, 2000