

平成 21 年 4 月 20 日現在

研究種目：基盤研究(B)
 研究期間：2007～2008
 課題番号：19360139
 研究課題名(和文) ガリウムナイトライド系ヘテロ接合ホール素子を有する高温走査型磁気顕微鏡の開発
 研究課題名(英文) Development of high temperature a scanning Hall probe microscope incorporating a Hall probe fabricated using gallium nitride heterostructures
 研究代表者
 サンドゥー アダルシュ (SANDHU ADARSH)
 東京工業大学・量子ナノエレクトロニクス研究センター・准教授
 研究者番号：80276774

研究成果の概要：高温における強磁性体の磁区構造の観察を目的とし、高温走査型ホールプローブ顕微鏡(High Temperature Scanning Hall Probe Microscopy, HT-SHPM)用プローブを作製した。高温観測のためのプローブに Al 組成比、Si ドープの有無など構造の異なる AlGaIn/GaN の温度特性を調べ、感磁部の大きさが $2 \mu\text{m} \times 2 \mu\text{m}$ であるホールプローブを作製した。作製したプローブの電気特性を評価し、ホール係数は 25°C で $0.0077 \Omega/\text{G}$ 、 400°C においては $0.0046 \Omega/\text{G}$ という結果を得た。また、HT-SHPM を用いて 100°C 以上における強磁性体ガーネット薄膜の磁区観察、外部磁界印加時の磁区観察に成功した。

交付額

(金額単位：円)

| | 直接経費 | 間接経費 | 合計 |
|---------|------------|-----------|------------|
| 2007 年度 | 7,400,000 | 2,220,000 | 9,620,000 |
| 2008 年度 | 6,600,000 | 1,980,000 | 8,580,000 |
| 年度 | | | |
| 年度 | | | |
| 年度 | | | |
| 総計 | 14,000,000 | 4,200,000 | 18,200,000 |

研究分野：工学

科研費の分科・細目：電気電子工学・電子・電気材料工学

キーワード：磁性、走査プローブ顕微鏡、磁区、スピンエレクトロニクス、磁気記録

1. 研究開始当初の背景

申請者は、長年、大手企業の基礎研究所で化合物半導体の結晶成長、及び 2 次元電子ガスを利用した微細デバイス作製の分野で、先導的な研究成果をあげた実績を持つ。次世代の高保磁力永久磁石、超高密度磁気記録技術及びスピンエレクトロニクスなどには、磁性体特有の磁区の観察が非常に重要である。申請者は 2000 年に AlGaAs/GaAs 系半導体マイクロ・ホール・素子を有する室温走査型ホー

ル・素子顕微鏡装置(以下「RT-SHPM」)の開発を行い、世界に先駆けて $0.8 \mu\text{m}$ の高空間分解能で、かつ室温における磁区の観察に成功した。さらに、申請者は 2003 年、広範囲(数百 μm)の走査かつナノメートルの空間分解能での観察を可能にした「温度可変形走査型ホール・素子顕微鏡」(以下 VT-SHPM)の開発を行い、10 K から室温までの強磁性体の磁区観察に成功した。今後、磁気記録媒体用の磁性材料中の磁区及びスピン素子を支配する磁気スピンの高温における観察が非常

に重要になる。しかし、現在、高温における定量的かつ高分解能の走査型ホール・素子顕微鏡技術は存在しない。その理由として、従来のホール素子の材料である Si、GaAs、InSb 等の半導体は、温度変化により、磁場に対する出力であるホール電圧が大きく減少し、120 °C 以上の動作が困難であるという問題が挙げられる。

国内外における GaN 等のワイドギャップ窒化物半導体を用いた青色レーザーや FET 素子に関する研究例は多い。しかし、AlGaIn/GaN ヘテロ構造を利用する高温用のホール素子は申請者のオリジナルなアイデアであり、この研究は日本（東工大）以外では行われていない。申請者が AlGaIn/GaN ヘテロ構造を有する ~100 μm 角単体ホール素子の作製と電気的特性を行い、国内の日本応用磁気学会（23pE-17、2004 年 9 月）、応用物理学会（29a-M-3、2005 年 3 月）及び J. Appl. Phys. 99, (2006). で報告し、高い評価を受けている。今回の計画では、単体の ~数 μm 角の AlGaIn/GaN ヘテロ構造ホール素子と今までの申請者の走査型ホール・プローブ顕微鏡装置開発の実績を合わせて、例のない「高温走査型ホール・プローブ顕微鏡装置」の実現を目指す。

2. 研究の目的

本研究では従来のホール素子の 120 °C 以上の動作が困難であることを解決するため、ホール素子に用いる半導体材料として 2 次元電子ガスを有する AlGaIn/GaN ヘテロ構造に着目し、ホール電圧の温度変化が極めて小さい約 2 μm 角 AlGaIn/GaN ヘテロ構造ホール素子を用いた高感度・高空間分解能「高温走査型ホール・プローブ顕微鏡装置」（以下 HT-SHPM）を開発することが本研究の目的である。GaN 系半導体は、(1) 3.4 eV 以上の広い禁制帯幅を持つ；(2) 比較的電子移動度が大きい；(3) 材料物性的に弾性定数が小さい；(4) 化学的に安定である、等の特徴を有するため、高感度・高温用ホール素子の材料として好ましいと考えられる。

将来的に、本研究で提案する高温用 AlGaIn/GaN ヘテロ構造ホール素子を有する HT-SHPM は、高温での磁性体中の磁区の観察や、磁性体材料のキュリー温度の局所的かつ精密な測定を可能にすることにより、次世代のエレクトロニクス産業界に大きなインパクトを与えると考えられ、研究の意義は極めて高い。尚、本研究は平成 17~18 年度の文部省科学研究助成金、萌芽研究（課題番号：17656107：研究課題名：「高温用 GaN 系ホール素子の作製に関する研究」）の成果を活かし、当研究目標の達成を目指す。

3. 研究の方法

高温走査型ホールプローブ顕微鏡 (High Temperature Scanning Hall Probe Microscopy, HT-SHPM) は Sandhu らが高温における磁界分布観察の目的で開発したものである。本装置はホールプローブとサンプルがチャンバー内にあり、プローブを固定し、サンプルを動かすことにより走査を行い、磁区を観察する。従来の SHPM では、ホールプローブをチップに金ワイヤーでボンディングすることにより電気信号の送受を行うが、HT-SHPM では熱により金ワイヤーが取れてしまう可能性があった。この問題の解決策として HT-SHPM では、GaN の硬度が高いという特徴を生かし、ホールプローブの電極部分に電気信号の送受のための針を落としてある。これにより、ホールプローブの台への固定と、電気信号の送受を行うことができる。また、ホールプローブは試料に対して 2 ° 傾いており、STM チップを用いることにより、トンネル電流をモニターしながら接近を行う。ヒーターにはセラミックヒーター (1 A, 100 V) を使用し、温度の監視はサンプルの近くに設置した R 型熱電対で行う。加熱はサンプルを直接ヒーターの上に設置することにより行い、500 °C までの加熱が可能である。また、ヒーターから熱を試料に集中させるために試料のまわりに熱遮蔽板を設置してある。測定を行う際のチャンバー内はロータリーポンプによって真空引きされており、ホールプローブなどのチャンバー内にあるものの酸化を防いでいる。駆動部には XYZ ピエゾアクチュエータを使用し、チャンバーをアクチュエータの上ののせることで走査を行う。つまり、走査を行う際にはサンプルだけでなく、チャンバー自体を動かす。10 V の最大制御入力電圧に対し、x-y 方向の変位は 100 μm 、z 方向の変位は 20 μm となるため、本装置の最大測定範囲は 100 μm \times 100 μm となっている。チャンバーの外には電磁石がついており、これを用いてサンプルに垂直外部磁界を印加することができる。ホールプローブとサンプルに純鉄のヨークによって磁界印加を行え、その最大出力は 5000 G 程度となる。また、本装置を空気バネ式除振台の上に設置することにより、外部からの振動を遮断している。制御系ではピエゾによる走査、温度調整、ホール電圧の検出をパソコンで制御し、検出したホール電圧から磁界を可視化する。制御系で使用するプログラムは、VT-SHPM で用いたプログラムに基づいて LabViewTM で作製されている。HT-SHPM の基本構造を図 1 に示す。

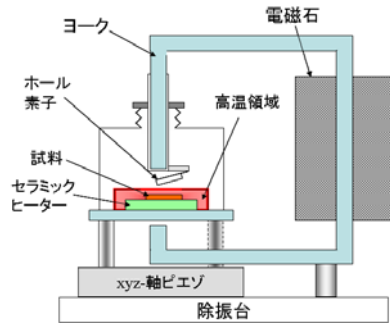


図1. 高温走査型ホールプローブ顕微鏡の構造

室温から高温までの磁区観察結果を図3.6に示す。温度上昇によって磁壁が移動し、磁区幅が減少したことがわかる。室温での磁区幅は約90 μm であり、100 $^{\circ}\text{C}$ では約50 μm である。この装置を用いると500 $^{\circ}\text{C}$ までの加熱、測定が可能である。

・ GaN/GaNヘテロ構造

窒化ガリウム (GaN) は、III族窒化物半導体の代表的なものであり、高効率青色、緑色及び白色発光ダイオードが市販されており、非常に脚光を浴びている。III族窒化物半導体は、BNを除きいずれも室温、大気圧下でウルツ鉱型の結晶構造を持つ直接遷移型半導体である。また、同一結晶構造の化合物同士では3元または4元混晶の作製が可能で、それらもすべて直接遷移型のバンド構造をもち、バンドギャップが室温で1.9 eVから6.2 eVに及ぶため、紫外域から可視光全域をカバーする発光ダイオード、レーザーダイオード及び紫外線検出素子用材料としても極めて有望な材料である。しかも、これらIII族窒化物半導体は物理的、化学的にも安定であり、また、AlNやGaNは熱伝導率が比較的大きいため、通常の半導体デバイスに比べより過酷な環境・条件下での動作が可能である。さらに、III族窒化物半導体やそれを用いたデバイスは、安全性の点からも他の化合物半導体に比べ優れており環境に優しいと言える。III族窒化物半導体の性質を表に示す。

その中で、GaNは電子飽和速度がGaAsの電子飽和速度よりも大きく、AlGaNは負の電子親和力を持つことから、また、AlGaN/GaNヘテロ構造にすることにより2次元電子ガスが使えることから、この材料系は高周波・高出力動作のトランジスタや固体電子エミッタなど、新しいデバイスへの応用も期待されている。

・ III族窒化物の結晶成長法

III族窒化物半導体の結晶成長法には、有機金属気相成長法 (Metal Organic Chemical Vapor

Deposition、MOCVD)、分子線エピタキシ法 (Molecular Beam Epitaxy、MBE)、ハイドライド気相エピタキシ法 (Hydride Vapor Phase Epitaxy、HVPE) などの種類がある。MOCVD法は、サファイア (Al₂O₃) 基板にバッファ層を形成することにより良質のエピタキシャル層が得られ、GaNの電気的、光学的物性が改善され、現在もっとも広く用いられている方法である。MOCVD法とは、カチオンとなる金属元素 (III族) の原料として、アルキル基 (C_nH_m-) を構成要素に有する有機金属化合物と、アニオンとなるV族元素である窒素を含む原料ガスを、加熱された基板上に送り込んで基板上に成長を行う成長法である。III族元素の有機金属化合物にはTMGa (トリメチルガリウム)、TMAI (トリメチルアルミニウム) が、V族元素の原料ガスには水素化合物であるアンモニア (NH₃) が一般的に用いられる。ドナー不純物にはシリコン (Si) が一般的であり、原料ガスにはシラン (SiH₄) やジシラン (Si₂H₆) などが用いられる。成長時の基板温度は約1000 $^{\circ}\text{C}$ である。III族窒化物半導体の結晶成長温度は他のIII-V族化合物半導体と比べて高いため、熱対流を抑制するため様々な配慮、工夫が施されている。

MBE法による成長には、III族源にGa、Alの固体が、窒素源に窒素やアンモニアなどのガスが用いられる。窒素分子の解離エネルギーが9.5 eVと大きいため、単に窒素ガスとGaを基板表面に供給するだけではGaNの成長は生じなく、RF窒素プラズマによって活性窒素をつくるか、原子状窒素を発生させる必要がある。原子状窒素は結晶成長に有効であり、Gaと結合してすぐに結晶に取り込まれる。活性窒素分子の供給では、活性種のエネルギーとGaとNが結合するとき放出される結合エネルギーとの和が窒素分子の解離エネルギーを超えると、窒素分子が分解してGaNの成長が起こる。ここで、結晶成長の流れの一例を示す。まず、サファイア基板に前処理を施し平坦な表面をつくる。さらに成長チャンバー内で基板を高温にし、表面クリーニングを行う。その後、活性窒素もしくはアンモニアガスを基板に照射しながら表面窒化を行った上にバッファ層を形成し、III族窒化物の成長を行う。MBEによるGaNの成長温度は様々あるが、760 $^{\circ}\text{C}$ の報告例がある。図3にMOCVD装置とMBE装置の一例を示す。

・ AlGaN/GaNヘテロ構造

AlGaN/GaNヘテロ構造は、AlGaAs/GaAsヘテロ構造と同様高周波デバイスへの応用が期待されており、様々な研究がなされているが、表に示すように、物性面でAlGaN/GaNの方が有利に働き、今後の展開が注目されている。ここでは、AlGaN/GaNヘテロ構造による2DEG

の発生とその特性について述べる。AlGa_N/Ga_N について述べる前に AlGaAs/GaAs ヘテロ構造による 2DEG について説明する。従来の Si 系トランジスタは、不純物添加層と電子の流れる領域が同じであり、電子移動度の減少が起こる。そのため、高周波領域で利得が小さくなり、サブミリ波、ミリ波帯域での動作が不可能であった。AlGaAs/GaAs ヘテロ構造は、不純物添加層と電子の流れる領域が異なっており、高周波動作が実現する。

これには不純物ドーピングに空間的分布を持たせる変調ドーピングの技術が応用されている。基本的な AlGaAs/GaAs ヘテロ構造を図 2. (a) に示す。S. I. GaAs 基板上に i-GaAs、AlGaAs、n-AlGaAs がそれぞれエピタキシャル成長された構造になっている。n-AlGaAs 層内は、ショットキー接合とヘテロ接合で空乏化されており、電子の一部は表面ショットキーメタル側へ移動し、整流性障壁が形成される(図にはソース、ゲート、ドレインは省略してある)。残りの電子は、GaAs と AlGaAs の電子親和力の差により、AlGaAs 層内のドナーから GaAs へ供給され、2次元電子ガス(2DEG)を形成する。2DEG はドナー原子と空間的に分離しており、不純物散乱がなく高移動度となる。また、GaAs 層と n-AlGaAs 層の間にスペーサー層として AlGaAs 層を挿入することにより、電子が流れる領域と不純物が離れ、特に低温において電子移動度が上昇する(5 K で $2.12 \times 10^6 \text{ cm}^2/\text{Vs}$)。AlGa_N/Ga_N ヘテロ構造でも 2DEG が発生するが、AlGaAs/GaAs とは異なり、AlGa_N 層にドーピングを行わなくても、ウルツ鉱型結晶構造による piezo 分極と自発分極により電界が発生し、ヘテロ界面に電子層が形成される。この概略を図 5 に示す。図 6 は AlGa_N/Ga_N ヘテロ構造のエネルギー準位である。

4. 研究成果

HT-SHPM では 100 °C 以上の磁区観察を行う際に、プローブのオフセットが増すなどの点から観察が困難である。プローブに Al_{0.25}Ga_{0.75}N/GaN ヘテロ構造を用いていた。高温 SHPM 用プローブには移動度は高く、ホール電圧の温度依存性は低い材料を用いる方が望ましい。移動度は磁界感度に関っており、移動度が高いものの方が高感度を期待できる。ホール電圧の温度依存性は HT-SHPM の安定した走査に関わる。温度依存性が大きい場合、HT-SHPM を用いての高温における強磁性体の磁区観察時に定量的な測定、正確な磁区構造の観察が困難になるためである。電気特性の測定には van der Pauw 法を用いた。これはキャリアの移動度を求める際に、抵抗とホール係数を組み合わせた測定法で

あり、厚さが一様なサンプルにおいて有効である。測定するにあたりそれぞれの試料の大きさを 5 mm 角にダイシングし、4 隅 1 mm 角の部分にオーミックとして Ti/Al/Ni/Au がそれぞれ 50/200/50/100 (nm) 蒸着されている。

試料の高温評価は高温チャンバーを用いて行う。チャンバー内はロータリーポンプと油拡散ポンプにより真空引きをすることで、チャンバー内の酸化を防いでいる。チャンバー内には 4 本のタングステンプローブ、ヒーター等がある。ヒーターには SiC を用いており 1000 °C まで加熱することができる。ヒーターの上にはホール素子台、R 型熱電対が設置されている。試料の直下に熱電対があることで正確な温度での測定が可能である。また、チャンバー全体の高温下を防ぐために冷却水が循環する構造になっている。ホール測定は、高温チャンバーを電磁石の間に入れた状態で行う。それぞれの温度で外部磁界を 0 G~5000 G まで印加し、ホール電圧を測定する。測定した値からホール係数を算出する。また、電子移動度は付録 A に示すように van der Pauw 法より算出した。

・ AlGa_N/Ga_N ホールプローブの作製

AlGa_N/Ga_N ヘテロ構造は、2 インチのサファイア基板(0001)面に、MOCVD 法によりエピタキシャル成長して作製されたものを用いた。2次元電子ガス(2DEG)は上部から約 30 nm のところに存在する。室温における移動度 μ は $1.1 \times 10^3 \text{ cm}^2/\text{Vs}$ 、電子密度 n_s は $8.3 \times 10^{12} \text{ cm}^{-2}$ である。

HT-SHPM 用ホールプローブの作製に用いるマスクパターンを図 4.19 に示す。素子の大きさは 4.25 mm 角、感磁部である十字部分の大きさは 2 μm となっており、解像度も 2 μm 程度になるものと考えられる。

AlGa_N/Ga_N ホールプローブの評価

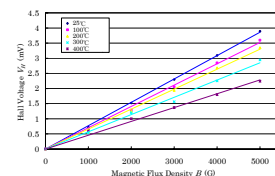


図 4 ホールプローブ (左) と 温度特性

高温におけるホール効果等の測定には高温チャンバーを用いている。作製したホールプローブの高温における $V_H - B$ 特性とホール係数について述べる。図 9 は室温から 400 °C までにおける $V_H - B$ 特性である。

400 °Cにおいてもホール電圧が磁束密度に対して線形になっている。これにより 400 °Cにおいてもホール素子として動作可能であることを確認できた。これにより室温でのホール係数が 0.0077 Ω/G、400 °Cにおいては 0.0046 Ω/G である。ホール係数から求めた。

高温になるに従いホール係数が減少している。高温になるに従いホール係数が減少するのは電子密度が増加するためである。しかし、電子が流れる領域である GaN のバンドギャップは約 3.4 eV であり熱励起は考えづらい。原因の 1 つとして考えられることは、AlN と GaN の熱膨張係数が異なるため、温度が上昇すると格子定数が変化し、AlGaIn/GaN ヘテロ構造のピエゾ分極が増加することである。しかし、高温における格子定数を正確に求めることが困難であり、また、2.5.3 節でも述べたようにゲート電極がないため具体的数値を求めることが困難である。

もう 1 つの原因として、ドーパされた AlGaIn 層からの電子の供給が増加したため、2DEG の電子密度が増加したと考えられる。実際に、Si がドーパされた Al_{0.15}Ga_{0.85}N の電子密度が温度上昇とともに増加していることが報告されている。これは、室温ではドーパントから伝導帯への熱励起が完了していないためであると考えられ、実際に Al_{0.15}Ga_{0.85}N ヘテロ構造の場合でも温度上昇に伴って電子密度が増加していることも報告されている。以上の 2 つの原因のどちらか、または相互が影響し温度が上昇すると電子密度が増加すると考えられる。

次に、室温から 400 °C における AlGaIn/GaN ヘテロ構造のシート抵抗を図 1 2 に電子移動度を図 1 3 に示す。AlGaIn/GaN の電子移動度は室温で約 1800 cm²/Vs、400 °C で約 240 cm²/Vs である。また、温度上昇に伴い減少している。窒化ガリウムの特性を詳細に述べ、異なる構造の AlGaIn/GaN の高温における電気特性を測定し、構造による違いを示した。Si ドープしてあるものがホール電圧の温度依存性が小さく、Al 組成比が大きいものが高移動度を示すことを確認し、ホールプローブを作製した。作製したホールプローブの電気特性を調べ、高温状態においてもホール素子として動作することを確認した。

走査型ホールプローブ顕微鏡 (SHPM)

SHPM を使って試料を観察する場合、プローブが検出する磁場の強さは、試料-プローブ間の距離に敏感に反比例し、距離が大きいと劇的に減少する。そのため、従来の HT-SHPM では STM チップを利用し、トンネル電流をモニターしながら試料との距離を制御していた。しかし、走査中にもトンネル電流をモニ

ターすることにより制御を行うことで、そこから出るノイズの影響が憂慮されていた。また、サンプルの傾きなどで接触した際、ホールプローブを抑えている針がずれてしまい、連続した走査ができなくなるなどの問題があった。改善案としてたとえ接触してもフレキシブルに走査可能なように HT-SHPM を新たに構築した。接触した際に電圧の値として読み取れるようにストレインゲージを取り付けた。また、ヨークを薄くすることで接触によって針がずれる恐れを少なくした。改良した HT-SHPM は図 5 に示すとおりである。

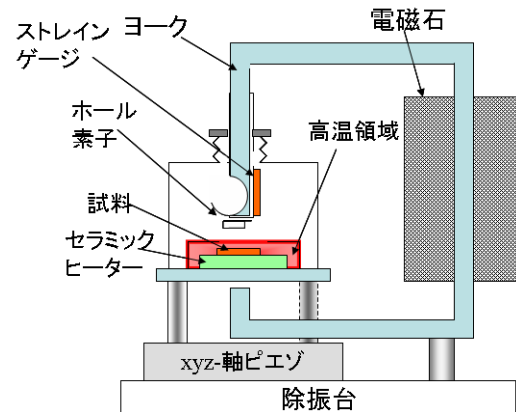


図 5 改良した HT-SHPM

・高温における磁区観察

HT-SHPM を用いてガーネット薄膜の磁区観測を行った。室温から高温までの磁区観測を行った結果を図に示す。温度が上昇するに従い磁区の様子が変化し、磁区幅が減少していく様子を観測できる。これらの結果から考察を行う。高温になるにつれて磁区幅が減少していき、磁区が観測し辛くなっていく様子が読み取れる。室温での磁区幅は 13 μm、100 °C での磁区幅は 9 μm となっており、200 °C 以上になると全体が砂嵐のようになって磁区の確認ができなくなる。これは温度が上昇するにつれてサンプル原子の磁気モーメントが一定の方向を向かなくなり、サンプル全体の自発磁化が減少して見えるためである。温度が上昇していくに従い自発磁化は減少していく。自発磁化が 0 になったときの温度はキュリー温度と呼ばれており、今回の結果からは測定したサンプルのキュリー温度は 200 °C であるといえる。キュリー温度を測定する方法の中で代表的なものに VSM による飽和磁界測定がある。今回測定しているサンプルはあらかじめ VSM により飽和磁界やキュリー温度等が判明しているものである。その結果によるとキュリー温度は 250 °C 程度であった。あらかじめ判明していたキュリー温度の値と、今回の結果の値の差が生じる原因は

次のように考えられる。高温になるに従いサンプルの磁区幅が減少している。ここから、200℃以上になるとサンプルの磁区幅がホール素子の感磁部の大きさよりも小さくなり測定できなくなっていることが考えられる。

まとめ

本章では作製したホールプローブを搭載したHT-SHPMの改良した構造と、それを用いてのガーネット薄膜の高温磁区観察について述べた。温度を上昇させるに従い室温での磁区幅は13 μm 、100℃での磁区幅は9 μm 、また200℃では6 μm と磁区幅が減少していく様子の観察に成功した。また、一定温度において、外部磁界を印加した際の磁区構造の観察を行い磁区構造の変化の観察に成功した。

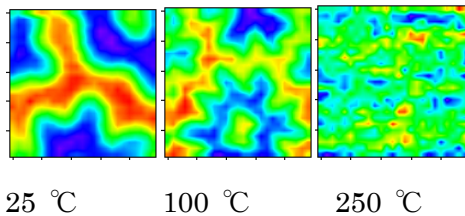


図15 ガーネット薄膜の磁区構造

5. 主な発表論文等

(研究代表者、研究分担者及び連携研究者には下線)

[雑誌論文] (計2件)

① T. Ohashi, H. Osawa, A. Sandhu, Contact mode scanning Hall probe microscopy, IEEE Transactions on Magnetics 44, 3252-3254(2008). 査読有

② Z. Primadani, H. Osawa and A. Sandhu, High Temperature Scanning Hall Probe Microscopy (HT-SHPM) using AlGaIn/GaN 2DEG micro-Hall Probes, J. Appl. Phys. 101, 09K105-09K106, (2007). 査読有

[学会発表] (計3件)

① T. Ohashi, H. Osawa, A. Sandhu, Novel contact mode scanning Hall probe microscopy, International Magnetics Conference 2008 5th May 2008, Madrid, Spain.

② Z. Primadani, H. Osawa and A. Sandhu,

“High Temperature Scanning Hall Probe Microscopy (HT-SHPM) using AlGaIn/GaN 2DEG micro-Hall Probes”, 10th Joint MMM/Intermag Conference, FH-14, 8th January 2007, Baltimore, Maryland.

③ 大澤洋貴、プリマダニ ザキ、サンドゥー アダルシュ、AlGaIn/GaN 系ホール・プローブを用いた高温用走査型ホール・プローブ顕微鏡(HT-SHPM)の開発、春季第54回応用物理学関係連合講演会、29a-SL-7、2007年3月29日。

6. 研究組織

(1) 研究代表者

サンドゥー アダルシュ (Sandhu Adarsh)
東京工業大学・量子ナノエレクトロニクス研究センター・准教授
研究者番号：80276774

(2) 研究分担者

なし

(3) 連携研究者

なし