

平成 22 年 6 月 3 日現在

研究種目：若手研究 (B)
 研究期間：2008 ～ 2009
 課題番号：20760197
 研究課題名 (和文) 電気磁気効果と交換結合による電子スピン制御のための半導体電界効果素子構造の作製
 研究課題名 (英文) Preparation of Semiconductor Field Effect Transistor for electron spin controlling using magneto-electric effect and exchange interaction
 研究代表者
 横田 壮司 (YOKOTA TAKESHI)
 名古屋工業大学・大学院工学研究科・助教
 研究者番号：10402645

研究成果の概要 (和文)：本研究は、電界によって磁性を誘起出来る電気磁気効果物質:Cr₂O₃を用いて、電子のもつ電荷という性質によってのみ状態記憶していた半導体電界効果素子にスピン情報を付与することを目指したものである。そのような背景を元に Cr₂O₃/強磁性体/CeO₂/Si MIS キャパシタを作製し、強磁性体層の厚み等の制御により磁場・電場の同時印加により様々な磁場下において異なるスピン量を蓄積・保持出来る事を明らかにした。

研究成果の概要 (英文)：This research was focused on an controlling of spins in semiconductor using magneto-electric (ME) material : Cr₂O₃, which can be controlled their magnetic or ferroelectric properties can be controlled by an external electric or magnetic field. In this purpose, we prepared Cr₂O₃/ferromagnetic/CeO₂/Si MIS capacitor. We revealed that the capacitor can be controlled an amount of injected charge depending on an external magnetic and electric field applying.

交付決定額

(金額単位：円)

	直接経費	間接経費	合計
2008 年度	2,400,000	720,000	3,120,000
2009 年度	1,000,000	300,000	1,300,000
年度			
年度			
年度			
総計	3,400,000	1,020,000	4,420,000

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：①電子・電気材料②電気磁気効果

1. 研究開始当初の背景

電界による磁性の制御 (もしくは磁性による誘電性の制御) を実現する電気磁気効果は、従来制限のあった材料機能を飛躍的に拡大するものであり、最近注目されているマルチフェロイク材料の世界的な研究開発はその実現を目指したものである。本研究で取り上

げている Cr 酸化物はその先駆けをなす有名な材料であったが、電気磁気効果が極めて小さく応用の観点からは全く注目されてこなかったのが現状である。我々は、薄膜化によって電圧に対し極めて大きな電界が薄膜に印加されることを利用して、低電圧でも室温で顕著な磁気的変化が得られることを最近

明らかにし、従来顧みられなかった応用への道を開いた。また、また、 Cr_2O_3 をゲート絶縁膜とした Si 電界効果素子構造へ応用し電界で半導体界面の電子を制御できることを報告してきた。

2. 研究の目的

本研究の目的は、前項に示した電気磁気 (ME) 効果物質をゲート絶縁膜とした Si 電界効果素子構造に反強磁性体/強磁性体積層構造を導入し、磁性層間の磁気スピンの平行/反平行からもたらされるスピンの選択的な通過現象 (磁気抵抗効果) を利用して電子スピン情報を持った電子を絶縁体フローティングゲート中に保持することを目的とする。具体的には、 Cr_2O_3 /強磁性体フローティング (F.G.) 層/ CeO_2 /Si 構造を作製し、以下の点に関して調査した。

- (1) F.G.層としての強磁性金属(Fe、 FeCr) ナノドットの作製
- (2) 強磁性金属を F.G.層として分散させた試料の電気特性評価
- (3) 磁場下での電気磁気 MIS キャパシタの誘電特製及び F.G.材料の違いによる電気特性
- (4) 電気磁気 MIS キャパシタの記憶特性評価

3. 研究の方法

目的で挙げた 4 項目に対する研究方法を示す。

(1) 強磁性金属ナノドットフローティングゲート作製を行う。既存の RF マグネトロンスパッタリング装置を用い、強磁性金属である CrFe、Fe、Cr (反強磁性キヤントにより強磁性を示す。) 極薄膜 (ナノドット) をトンネル絶縁膜上に作製する。成長時の成膜条件 (成膜温度、成膜速度、成長時の導入ガス等) により 3 次元成長を促進させ、ナノドット作製をこころみる。また、成長直後の極薄膜試料への急速熱処理(Rapid Thermal Annealing(RTA)法)による検討も行う。

(2) (1) により得られた試料を電流-電圧(I-V)測定、容量-電圧(C-V)測定により電気特性を評価する。I-V 測定の結果から伝導機構を理論的に解析し、伝導種の同定を行う。また、C-V 特性も測定周波数、挿引電圧依存性などから F.G.層厚との関係を探っていく。

(3) 磁場中での C-V、I-V の電気特性評価を行う。ME 物質である Cr_2O_3 は、反強磁性体でもあるため、強磁性体 F.G.層との交換結合が注入特性に及ぼす影響を探る。

(4) これまで得られた試料の記憶保持特性 (容量 - 時間測定) を評価する。

4. 研究成果

目的に沿って、成果を示す。

(1) CeO_2 /Si 上に Fe、FeCr の薄膜を種々の厚さで成膜し、強磁性体ナノ粒子の分散状態の異なる試料を作製した。AFMによりその表面形状を観察し、分散状態に差異があることを確認した。Fig. 1 に真空急速加熱炉を用いて熱処理を施した試料の AFM 画像を示す。これより、比較的均一な粒径(約 18 nm)を有した試料が作製できることがわかった。また、いずれの試料も熱処理によって大きく粒成長はせず最近接の粒子と結合した成長をすることがわかった。

(2) Cr_2O_3 /(Fe or FeCr)/ CeO_2 /Si の容量-電圧測定により電荷注入特性を評価した。F.G.層

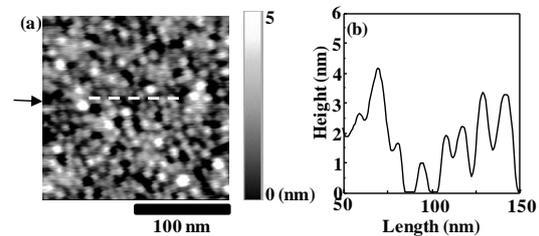


Fig. 1 (a) CeO_2 /Si 上に成膜した Fe 粒子の表面観察図(RTA 処理後) (b)(a)の点線部におけるラインプロファイル

の分散状態を Fe の成膜時の換算膜厚で番号付けして電荷注入量との探索を行った。Fig. 2(a) に電荷注入を示す C-V ヒステリシス曲線を (b) に電荷注入量と鉄の換算膜厚の関係を示す。磁場印加時の電荷注入量の変化も併せて示す。

その結果、換算膜厚 0.5 nm の時に最も電荷注入量が多いことがわかった。これは、分散状態が高い場合、強磁性体よりも欠陥が多い酸化物中に電子が注入されやすいためである。このような状態で磁場を印加しその注入量を探索したところ、0.5 nm 以下の F.G.層では電子が注入されるものの磁場に対して応答はなかった。一方で、0.5 nm 以上では注入量が増加することがわかった。磁場中で注入過程における電流-電圧測定から磁気抵抗を見積もったところ、負の磁気抵抗を示し磁場による抵抗変化が電荷注入量の増加に起因していることを明らかにした。この挙動は FeCr を用いた場合もほぼ同様の傾向を示した。これらの結果は、このキャパシタが電荷を記憶し、磁場によって別の情報を記憶できる可能性を示唆するものであり、当初の目的である電場・磁場による多値化メモリ作製の可能性の糸口となる。

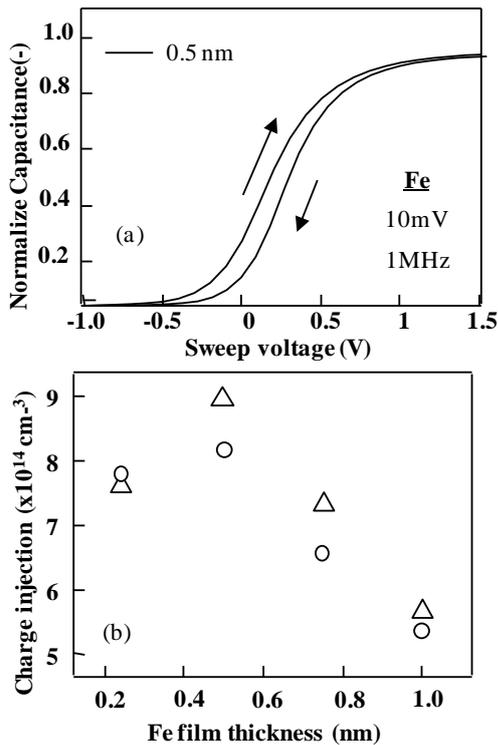


Fig. 2 (a) Fe を 0.5 nm 成膜した $\text{Cr}_2\text{O}_3/\text{Fe}/\text{CeO}_2/\text{Si}$ MIS キャパシタの C-V 曲線 (b) (RTA 処理後) (b) 電荷注入量と鉄の換算膜厚の関係

(3) 強磁性体層の層厚によって電荷注入量が増えることがわかり、またその外部磁場応答性も変化することがわかった。外部磁場との応答をみる上で、電荷注入量が多い方が変化をとらえやすいために、強磁性層を酸素欠損した $\text{Cr}_2\text{O}_{3-x}$ へと変えた。そのような資料を用いて外部磁場印加による電荷注入特性の挙動と界面交換結合との相関に関して調査した。Fig.3 に磁場印加前後の C-V ヒステリシス曲線の挙動を示す。これより、Fe を用いた時と同様に磁場印加により、電荷注入量の増大が確認された。また、電界・磁界同時印加により蓄積層側の容量が増加しており、これは Cr_2O_3 の誘電率が 20% 増加していることを意味する。また、Fig. 4 にこのときの磁場印加前後の電荷注入電圧以降における電流密度 - 電圧曲線の結果を示す。これより、磁場印加に伴い電気抵抗が減少していることがわかる。このことより電荷注入時には、より多くの電子が流れる事になり、多くの電荷を注入できるようになったと考えられる。注入過程の I-V 測定の結果を解析したところ、見掛けの電子の有効質量が減少していることがわかり、トンネル確率も同時に上昇していることがわかった。これにより磁場印加に伴うキャパシタへの注入電荷増加が電気磁気効果による誘電率増加及びトンネル確率の上昇により発現することがわかった。

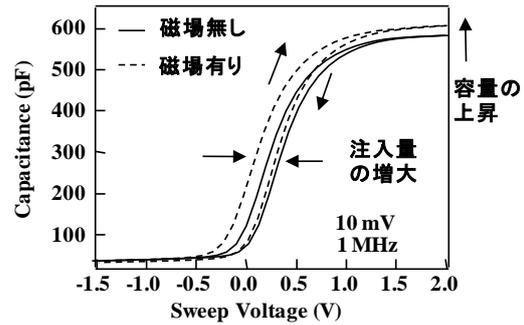


Fig. 3 $\text{Cr}_2\text{O}_3/\text{Cr}_2\text{O}_{3-x}/\text{CeO}_2/\text{Si}$ MIS キャパシタの磁場印加前後における C-V 曲線

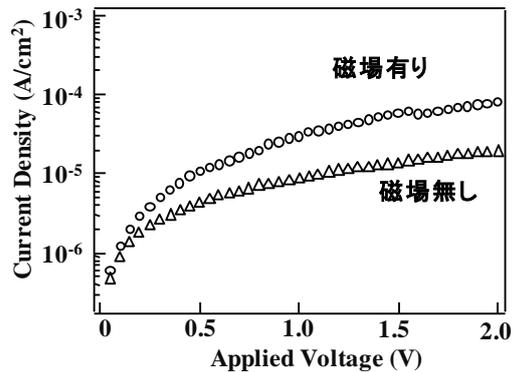


Fig. 4 $\text{Cr}_2\text{O}_3/\text{Cr}_2\text{O}_{3-x}/\text{CeO}_2/\text{Si}$ MIS キャパシタの磁場印加前後における I-V 曲線

(4) 以上のような試料においてキャパシタの記憶保持特性及び電荷注入特性の変調に関して評価を行った。Fig. 5(a) に異なる磁場下で測定した C-V 測定の結果を示す。(b) に (a) の点線部を拡大した図を示す。これにより磁場の変化に伴い電荷注入量を制御出来る事がわかる。これは、スピン情報を有しない半導体中の電子がトンネル効果と外部磁場によりスピン情報が付与され、強磁性層に選択的に注入されているためであると言える。Fig. 6 に異なる磁場状態において注入された電荷の保持特性の結果を示す。いずれの磁場下において注入された電荷量は 1000 [sec] の範囲内で安定し保持していることがわかる。最終的には 1 日程度保持することも確認している。このことにより、本システムは、電界と磁界の印加により半導体中の電子にスピン情報を付与し、選択的にその情報を保持できることを明らかにした。これは、半導体メモリ産業において微細化限界が危惧される中、素子構造を変化させることなく新たにスピン情報を付与できるものであり、その波及効果は高いものと期待できる。また、スピン情報を保持できることから、現在盛んに行われているスピン情報操作を目的としたスピントランジスタとの併用により新しい、論理回路を構築できると期待でき

る。

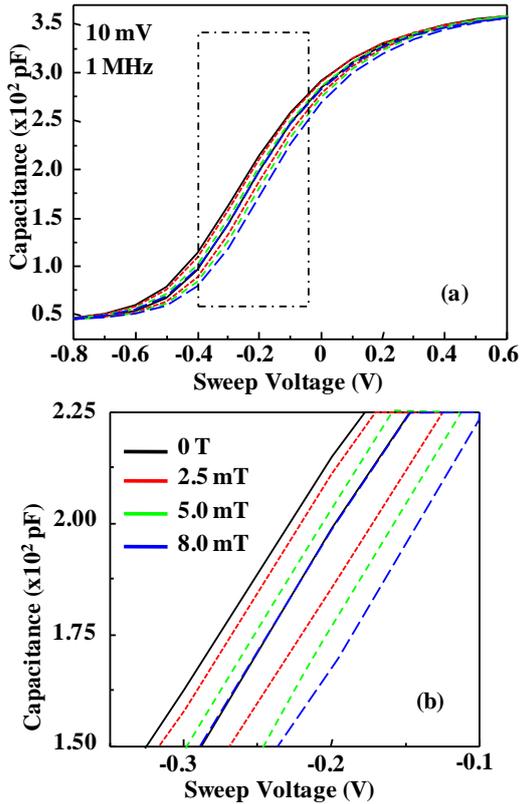


Fig. 5 (a) 異なる磁場で測定した Cr₂O₃/Cr₂O_{3-x}/CeO₂/Si MIS キャパシタの C-V 曲線 (b) (a) の点線部の拡大図

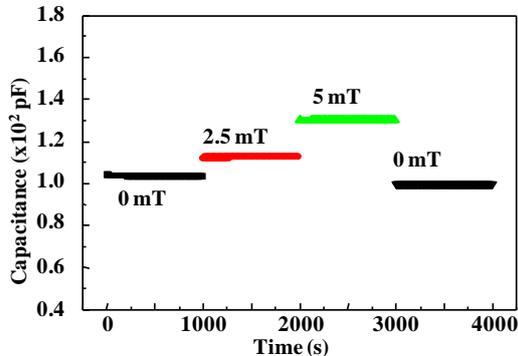


Fig. 6 異なる磁場で電荷注入した Cr₂O₃/Cr₂O_{3-x}/CeO₂/Si MIS キャパシタの電荷保持特性

5. 主な発表論文等

[雑誌論文] (計 12 件)

1. ***Takeshi Yokota**, Y. Tsuboi, S. Murata, S. Kito, and M. Gomi
“Magnetic and Dielectric Properties of Cr₂O₃/LiNbO₃/Cr₂O₃ multi layer”
Electroceramics in Japan XIII, Key Engineering Materials, 107 (2010), pp.421-422 (査読有り)

2. ***Takeshi Yokota**, S. Kito, Y. Tsuboi, S. Murata, and M. Gomi
“Relationships between negative differential resistances and resistance switching properties of SrFeO_{2+x} thin films with excess oxygen”
Electroceramics in Japan XIII, Key Engineering Materials, 157(2009), pp.421-422(査読有り)
3. ***Takeshi. Yokota**, Shotaro Murata, Sinya Kito, and Manabu Gomi
“Electric field-induced resistance changes at low temperature on a Cr₂O₃/ultra-thin (La,Sr)MnO₃ magnetic hetero structure”
Journal of Ceramic Society of Japan 117[5] 639-642 (2009) (査読有り)
4. ***Takeshi. Yokota**, Shotaro Murata, Sinya Kito, and Manabu Gomi
“Relationships between magneto-capacitance-voltage characteristics and magneto-resistance of Au/Cr₂O₃/Cr₂O_{3-x}/FeCr/CeO₂/Si MIS capacitor”
Journal of Applied Physics, 105, 07D905-908, (2009) (査読有り)
5. ***Takeshi Yokota**, S. Murata, S. Kito, and M. Gomi
“Relationships between electric field induced resistance changes and an exchange interaction in interface of Cr₂O₃/La_{1-x}Sr_xMnO₃ magnetic hetero structure”,
Extended Abstracts of 14th US-Japan Seminar on Dielectric and Piezoelectric Materials, pp.227-230 (2009)(invited) (査読有り)
6. ***Takeshi Yokota**, Shotaro Murata, Sinya Kito, and Manabu Gomi
“Preparation and Dielectric Properties of Cr₂O₃/Ferroelectric Film/Cr₂O₃ Hetero Structure”
Proc. of The 26th Korea-Japan international Seminar on Ceramics, 371-374 (2009) (査読有り)
7. ***Takeshi Yokota**, Shotaro Murata, Sinya Kito, and Manabu Gomi
“Injected charge modulation using magnetic tunneling junction in Cr₂O₃/FeCr/CeO₂/Si capacitor”
Proc. of International Workshop on Advanced Ceramics (2008), 45-47, C42 (査読無し)

8. *Takeshi. Yokota, Shotaro Murata, Takaaki Kuribayashi, and Manabu Gomi
“Magnetic and magneto-electric properties of magneto-electric field capacitor using Cr_2O_3 ”
Journal of Ceramic Society of Japan 116[11] 1204-1207 (2008) (査読有り)
9. *Takeshi. Yokota, Shotaro Murata, Sinya Kito, and Manabu Gomi
“Resistance Changes of (La, Sr) MnO_3 Thin Film via Exchange Bias Tuning by the Application of an External Electric Field”
Electroceramics in Japan XII, Key Engineering Materials, 19, 107-110 (2008) (査読有り)
10. *Takeshi. Yokota, Shotaro Murata, Sinya Kito, and Manabu Gomi
“Influence of an external magnetic field on injected charges of a $\text{Cr}_2\text{O}_3/\text{Fe}/\text{CeO}_2/\text{Si}$ MIS capacitor”
Electroceramics in Japan XII, Key Engineering Materials, 19, 157-160(2008) (査読有り)
11. *Takeshi Yokota, T. Kuribayashi, S. Murata, M. Gomi
“Preparation and exchange bias of a $\text{Cr}_2\text{O}_3/(\text{La}_{0.7}\text{Sr}_{0.3})\text{MnO}_3$ magnetic hetero junction”
Key Engineering Materials, 18, 289-292 (2008)
12. *Takeshi Yokota, T. Kuribayashi, S. Murata, M. Gomi
“Preparation and electric properties of Cr_2O_3 gate insulator embedded Fe dot”
Applied surface science, 254, 7959-7962 (2008) (査読有り)

[学会発表] (計 14 件)

1. 横田 壮司 Preparation and Dielectric Properties of $\text{Cr}_2\text{O}_3/\text{Ferroelectric Film}/\text{Cr}_2\text{O}_3$ Hetero Structure
第 26 回日韓国際セラミックスセミナー2009 年 11 月 25 日 茨城
2. 横田 壮司 $\text{La}_{1-x}\text{Sr}_x\text{MnO}_3$ 薄膜における電界誘起抵抗変化特性および磁気特性
平成 21 年度東海支部学術研究発表会 2009 年 11 月 28 日 愛知
3. 横田 壮司 $\text{Cr}_2\text{O}_3/\text{LiNbO}_3/\text{Cr}_2\text{O}_3$ 絶縁膜をゲートとする Si-MIS キャパシタにお

ける
多段階電荷注入特性と電気磁気効果の相関
日本セラミックス協会 2009 年年会 2010 年 3 月 23 日 東京

4. 村田 章太郎, 横田 壮司 強磁性フィルタの磁化整列状態が $\text{Cr}_2\text{O}_3/\text{Si-MIS}$ キャパシタの磁気誘電特性に及ぼす影響の探査 日本セラミックス協会 第 22 回 秋季シンポジウム 2009 年 9 月 16 日 愛媛

5. Shotaro Murata, Takeshi Yokota Magneto-charge injection property $\text{Cr}_2\text{O}_3/\text{Ferromagnetic filter}/\text{Cr}_2\text{O}_3\text{-x}/\text{Ferromagnetic filter}/\text{CeO}_2/\text{Si MIS capacitor}$
第 26 回日韓国際セラミックスセミナー2009 年 11 月 25 日 茨城

6. Shotaro Murata, Takeshi Yokota Controlling of spin injection properties in $\text{Cr}_2\text{O}_3/\text{Si-MIS}$ capacitor having ferroelectric and ferromagnetic layers
第 48 回セラミックス基礎科学討論会 2010 年 1 月 13 日 沖縄

7. Takeshi Yokota Injected Charge Modulation Using Magnetic Tunneling Junction in $\text{Cr}_2\text{O}_3/\text{FeCr}/\text{CeO}_2/\text{Si}$ Capacitor
IWAC03 Innovation Ceramics 2008 年 11 月 6 日 ~ 8 日 Limorges, France

8. Takeshi Yokota Influence of an external magnetic field for injected charge of $\text{Cr}_2\text{O}_3/\text{Fe}/\text{CeO}_2$ MIS capacitor
AMEC-6 The 28th Electronics Division Meeting of CSJ 2008 年 10 月 22 日 ~ 24 日 Tsukuba, Japan

9. Takeshi Yokota Resistance Changes of (La, Sr) MnO_3 Thin Film via Exchange Bias Tuning by the Application of an External Electric Field
AMEC-6 The 28th Electronics Division Meeting of CSJ 2008 年 10 月 22 日 ~ 24 日 Tsukuba, Japan

10. Takeshi Yokota Relationships between magneto-capacitance-voltage characteristics and magneto-resistance of $\text{Au}/\text{Cr}_2\text{O}_3/\text{Cr}_2\text{O}_3\text{-x}/\text{FeCr}/\text{CeO}_2/\text{Si}$ MIS capacitor
53rd Magnetism and Magnetic Materials 2008 年 11 月 10 日 ~ 14 日 Austin, Texas, USA

11. 横田 壮司 ハーフメタルをフィルタ層とするフローティングゲート型 Si-MIS キャパシタにおける誘電特性
日本セラミックス協会 2009 年年会 2009 年

3月16日～18日 東京理科大学

12. 横田 壮司 $\text{Cr}_2\text{O}_3/\text{La}_{1-x}\text{Sr}_x\text{MnO}_3$ 磁気ヘテロ構造における交換結合係数と電界誘起抵抗変化の関係

日本セラミックス協会 2009 年年会 2009 年
3月16日～18日 東京理科大学

13. 横田 壮司 $\text{Cr}_2\text{O}_3/\text{Cr}_2\text{O}_{3-x}/\text{FeCr}/\text{CeO}_2/\text{Si}$ キャパシタにおける磁場による電荷注入特性の制御

IEEE Magnetic Society 若手研究会 2009 年
3月16日 名古屋大学

14. 村田 章太郎、横田 壮司 Fe , CrFe を強磁性体浮遊層とする $\text{Cr}_2\text{O}_3/\text{Si-MIS}$ Capacitor における磁気輸送特性

日本物理学会、2008 年秋季大会 2008 年
9月20日～23日 岩手大学

6. 研究組織

(1) 研究代表者

横田 壮司 (YOKOTA TAKESHI)

名古屋工業大学・大学院工学研究科・助教

研究者番号：10402645