

科学研究費助成事業（科学研究費補助金）研究成果報告書

平成 24 年 6 月 12 日現在

機関番号：12601

研究種目：挑戦的萌芽研究

研究期間：2010 ～ 2011

課題番号：22656071

研究課題名（和文） 磁性体微粒子を含む酸化物ヘテロ構造の創製と半導体電子デバイスへの応用

研究課題名（英文） Creation of oxide heterostructures with magnetic particles and their application to semiconductor-based electronic devices

研究代表者

中根 了昌 (NAKANE RYOSHO)

東京大学・大学院工学系研究科・特任講師

研究者番号：50422332

研究成果の概要（和文）：

本研究では磁性体微粒子を含む酸化物ヘテロ構造の創製と半導体電子デバイスへの応用を最終目標にして、そのために必要な高品質エピタキシャル酸化物薄膜/シリコン構造の作製と評価をおこなった。超高真空 EB 蒸着法、基板温度、導入酸素ガス流量の最適化をおこなうことにより、Si(111)基板上への Al₂O₃ のエピタキシャル成長をおこなった。また、このエピタキシャル構造の結晶相、組成比、界面特性に関して X 線光電子分光により評価をおこなった。

研究成果の概要（英文）：

The aim of this research is to create oxide heterostructures with magnetic particles and their application to semiconductor-based electronic devices. To achieve this, an epitaxial oxide/Si substrate structure is needed for a template. Using high-ultra-vacuum electron beam evaporation with an optimum substrate temperature and O₂ gas pressure, Al₂O₃ was epitaxially grown on a Si(111) substrate. To analyze the phase of Al₂O₃, stoichiometry, and the heterointerface, X-ray photoelectron spectroscopy was performed for the fabricated epitaxial structure.

交付決定額

(金額単位：円)

	直接経費	間接経費	合計
2010 年度	2,300,000	0	2,300,000
2011 年度	900,000	270,000	1,170,000
年度			
年度			
年度			
総計	3,200,000	270,000	3,470,000

研究分野：工学

科研費の分科・細目：電気電子工学 5102 電子・電気材料工学

キーワード：①結晶成長②電子・電気材料③電子デバイス・機器 ④量子閉じ込め⑤磁性

1. 研究開始当初の背景

高性能化に限界の見え始めた集積電子デバイスの更なる発展を目指した研究が活発化している。これらの研究の目的は、これまで集積電子デバイスでは使用されなかった材料、構造、新規自由度などを利用した新規

半導体電子デバイスを創製して、それらをシリコンプラットフォーム上で融合することにより、これまでの延長線上では考えられない圧倒的な集積回路の高性能化や高機能化を達成することである。これまで様々な新規半導体電子デバイスが提案・研究されている

が、本研究ではそれらの一つであるキャリアのスピンの偏極を用いたシリコンベースの新規スピン機能半導体電子デバイスの実現を最終的な目標とする。

電子デバイスに伝導キャリアのスピンの利用するのであれば、金属強磁性体/非磁性体/金属強磁性体などの磁性多層構造において発現する磁気抵抗が有望である。これは磁性体磁化の相対的方向（平行/反平行）に依存して抵抗が変化する現象である。非磁性体が金属の場合「巨大磁気抵抗効果」、酸化物などの電気的障壁の場合「トンネル磁気抵抗効果」と呼ばれ、原理的には半導体でも良い。磁気抵抗の大きさは巨大磁気抵抗効果<<トンネル磁気抵抗効果、である。磁性体の相対的磁化方向は電源をオフしても不揮発に保持されるため、これを利用してバイナリービットを抵抗状態によって不揮発に記憶する磁性ランダムアクセスメモリが開発されているが、磁気抵抗素子は単に受動素子であり、集積回路（論理演算回路）の外付け記録メモリとしてしか利用が出来ない。本研究はこれとは異なり、集積回路の高性能化を直接的に推し進め、技術革新を達成するために、シリコン集積回路との融合が可能な「能動」電子デバイスの創製を目指す。

上記の磁気抵抗効果は磁性体を通過した伝導キャリアのスピンの偏極がその原理である。キャリアの伝導が一方のスピンバンド（アップもしくはダウンスピンバンド）しか寄与しない「ハーフメタル磁性体」を通過した電子は一方のスピンしか持たないため、これを磁性多層構造に利用した場合、磁気抵抗変化率は理論上最大限（無限大）となる。従ってデバイス応用を考えた場合、ハーフメタル磁性体を用いてトンネル磁気抵抗効果を発現させることがもっとも有望である。これまで様々なグループの研究によって、ほとんどハーフメタル性を有する強磁性金属とそれを利用したトンネル接合は作製されているが、トンネル磁気抵抗効果は期待されるほどの値が得られていない。これは、酸化物障壁層と反応したり、界面において不純物準位を形成したりと整合性がよくないことが最大の原因である。一方、半導体チャネルを介した磁気抵抗は、磁気抵抗変化が現時点では

デバイスとして使用できる値ではない。これも、半導体と金属の伝導率の違い、バンドオフセットの問題、界面での反応など、材料的に整合が良くないことが大きな理由である。

従って、伝導キャリアのスピンの偏極を用いた半導体電子デバイスを作製するためには、以下の要請を満たす材料、人工構造が必要である。

（１）磁性体と(酸化物)障壁層が材料的に整合性が良い（２）磁性体が安定したハーフメタル性を有する（３）半導体と界面反応が無く、さらにエネルギー的に整合性が良い
これら全ての要請を満たす磁性材料「磁性体微粒子を含む酸化物ヘテロ構造」を創製することを短期的な目的とする。

2. 研究の目的

本研究では、キャリアのスピンの偏極を用いたシリコンベースの新規スピン機能半導体電子デバイスの実現を最終的な目標とする。そのためには、スピン自由度でしかなしえない特徴を最大限に生かすデバイス構想や基盤技術が必要であり、真性な材料機能を発揮するための異種材料からなる高品質な人工構造がその基盤である。本研究ではこの要請を満たす「磁性体微粒子を含む酸化物ヘテロ構造の創製」をおこなう。

本研究では結晶成長技術を駆使して Si 基板上にオールエピタキシャルな酸化物磁性構造を作製するが、そのためには界面酸化 SiO₂ の無いエピタキシャル酸化物薄膜/Si 構造をテンプレートとして作製する必要がある。これに関してはこれまで膨大な研究がなされてきているが、急峻な界面特性をもつ構造はほとんど報告がなされていない。本研究では最終的には多元系酸化物も利用することを計画しているが、それよりは比較的容易であると考えられる二元系酸化物のエピタキシャル成長を、これまで報告のある方法と同様の手法によって試行することから着手した。

3. 研究の方法

2 に記載した二元系酸化物として γ -

A1203 を用いた。結晶成長には電子ビーム蒸着法を用いた。蒸着レートのモニターには水晶振動子を用いた。また、電子ビーム蒸着時に欠乏すると考えられる酸素を補償する目的で、酸素の導入もおこなった。また、メインチャンパー内におけるモニターには高速反射電子回折 (RHEED) パターンを用いた。結晶成長後の Si/ γ -Al203 構造の界面において SiO2 が形成されていないか、薄膜の組成比、薄膜の結晶構造、を確認する目的で、単色 X 線光電子分光 (XPS) の測定と評価をおこなった。

4. 研究成果

Si (111) 基板を化学洗浄した後にロードロックチャンパーに導入した。 2×10^{-7} Pa のバックグラウンドプレッシャーを持つメインチャンパーに搬送した後、基板温度を 900°C に保ち、15 分間熱処理を行った。この際、明瞭な 7×7 再構成パターンが現れたため、清浄表面が得られたと判断した。その後、基板温度 850°C、900°C、950°C において薄膜を作製した。

はじめに酸素を導入せずに $0.1\text{-}1 \text{ \AA/s}$ のレートで蒸着をおこなった。この場合、いずれの基板温度においても RHEED はハローパターンを示したため、アモルファス相 Al_xO_y が堆積されたと考えられる。次に、蒸着をおこなう直前に酸素を導入して 10^{-6} Pa 台の圧力として $0.1\text{-}1 \text{ \AA/s}$ のレートで蒸着をおこなったところ、RHEED パターンは 6 回対称のパターンを示した。また、基板温度を 850°C、900°C、950°C と上げるに従い、スポットパターンからストリークパターンに変化した (図 1)。このことは、基板温度の上昇と共に結晶配向性が高くなったことを示している。結果として、Si[111]// γ -Al203[0001] Si[11-2]// γ -Al203[-1100] の関係にあるエピタキシャル Si/ γ -Al203 構造が作製されたと判断した。また試行した基板温度の中では 950°C が最も結晶配向性が高く、この温度が最適温度であった。これらの結果は、他のグループによって報告された結果と整合する。

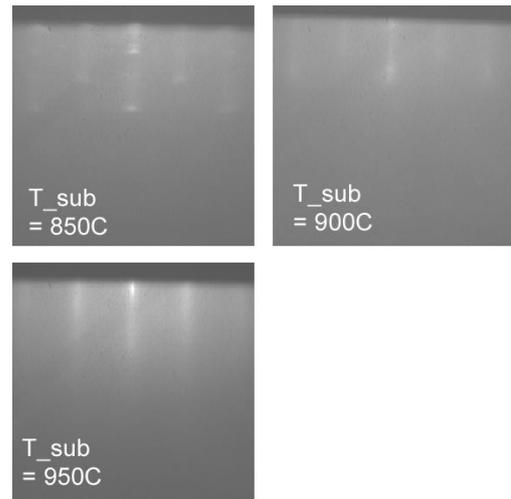


図 1 : Al203 を結晶成長した後の RHEED パターン。入射方向は Si [11-2]。T_sub は結晶成長時の基板温度を示す。

結晶成長後の Si/ γ -Al203 構造の XPS スペクトルを 2p-Si 2p-Al 1s-O 1s-C に関して取得を行い、評価をおこなった。エネルギーの構成には 1s-C スペクトルのガウスフィッティングをおこない、その中心値を用いた。

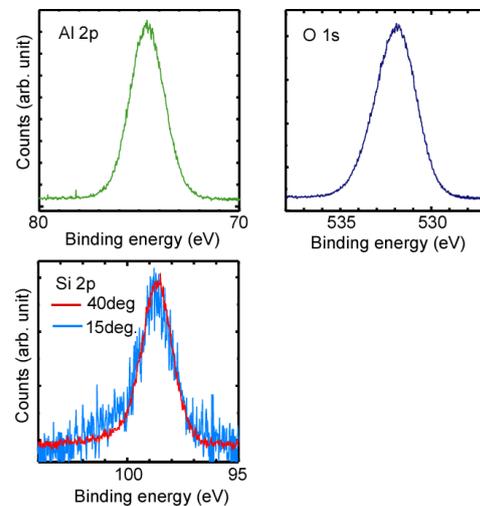


図 2 : Al 2p, O1s, Si 2p の XPS スペクトル。Al と O の脱出角度は 40 度、Si は 40 度と 15 度を比較した。

図 2 に XPS スペクトルを示す。O1s はガウスフィッティングによって 531.8 eV に平均値があり、これは参考文献の Al203 の値とほぼ同じである。Al 2p はガウスフィッティングによって 74.3 eV に平均値があるが、文献に

よれば 73.9~74.3eVの間では α 相と γ 相の両者の可能性があるため特定が出来ない。ただし、0とA1が文献値とほぼ整合しているため、組成比はA1203であることが考えられる。また、KLL オーজেピークによってオーজেパラメーターの算出とそれによる α 相と γ 相の同定を試みようとしたが、Si 2pピークと重畳しており、判断が出来なかった。

Si 2pに関しては、特に界面でのSiO₂の形成が無いか注視をおこなった。この評価には、ディテクターとサンプルの角度を変更して電子の脱出深さを変更することが有効であるため、これを行った。図2に脱出角度40度と15度において得られたスペクトルを規格化したものを載せた。ガウスフィッティングによる平均値は99.2eVとなり、これは文献値と一致を示した。SiO₂を示すピークは102-103eV程度に現れるが、脱出角度の小さい青いカーブでは、このあたりにピークがあるとも見えなくは無いが、それほど明瞭ではない。従って、界面にSiO₂が形成されていたとしても、その膜厚は非常に薄いものであると推測される。これに関しては測定時の積分時間などを増やしてノイズを減らしてスペクトルを取得する必要があると考えられる。

今回得られた結果の短期的な課題としては、作製されたエピタキシャル構造の詳細を明らかとすることである。これらにより更なる最適化をおこない、この構造をテンプレートとしたエピタキシャル磁性構造の作製と、その電気特性などをあきらかとして、電子デバイス応用につなげていきたい。

5. 主な発表論文等

[雑誌論文] (計1件)

Ryosho Nakane, Shoichi Sato, Shun Kokutani, and Masaaki Tanaka, "Appearance of Anisotropic Magnetoresistance and Electric Potential Distribution in Si-based Multi-terminal Devices with Fe Electrodes", *Magnetics Lett.* in press.

[学会発表] (計3件)

S. Sato, R. Nakane, S. Kokutani, and M. Tanaka, "Influence of anisotropic magnetoresistance on nonlocal signals in multi-terminal lateral devices with a Si channel and Fe electrodes", *International Conference on the Physics and*

Applications of Spin Related Phenomena in Semiconductors (PASPS-VI), the University of Tokyo, Tokyo, Japan August 1-4, 2010, P2-70, conference abstract pp. 299-300.

佐藤彰一, 中根了昌, 國谷瞬, 田中雅明, 第16回半導体スピン工学の基礎と応用 (PASPS-16), 2011年11月29日, 東京工業大学博物館・百年記念館 フェライト会議室, E4.

佐藤彰一, 中根了昌, 國谷瞬, 田中雅明, "Siチャンネル及びFe電極を有する多端子横型デバイスにおける非局所信号への異方性磁気抵抗効果の影響", 春季第58回応用物理学関係連合講演会, 2011年3月24日, 神奈川工科大学, 神奈川, 24a-KQ-1.

6. 研究組織

(1) 研究代表者

中根 了昌 (Nakane Ryosho)

東京大学・大学院工学系研究科・特任講師
研究者番号: 50422332