

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24日現在

機関番号：37112

研究種目：基盤研究（C）

研究期間：2009～2011

課題番号：21560022

研究課題名（和文）鉄シリサイド強磁性相/半導体相人工格子の層間結合に及ぼす圧力効果とそのメカニズム

研究課題名（英文）Pressure effect and its mechanism of interlayer coupling on the artificial lattice with semiconductor/ferromagnetic phases of iron silicide.

研究代表者

武田 薫 (TAKEDA KAORU)

福岡工業大学・工学部・講師

研究者番号：90236464

研究成果の概要（和文）：強磁性体の Fe₃Si 単層膜と反強磁性結合した Fe₃Si/FeSi₂ の多層膜を静水圧中で 2.6GPa まで圧力を印加して電気抵抗率を測定した。Fe₃Si 単層膜は圧力の増加に伴って電気抵抗率は増加しそして飽和する傾向を示した。反強磁性結合した Fe₃Si/FeSi₂ 積層膜の抵抗率は圧力の増加に伴って単調に増加することがわかった。Fe₃Si 単層膜に対する電気抵抗率の圧力効果は+0.6%/GPa 以下、FeSi₂ 単層膜の圧力効果は+1.0%/GPa 以下で変化し、さらに Fe₃Si/FeSi₂ 積層膜では AF 結合膜では+2%/GPa 以下であり、F 結合では+1.0%/GPa 以下であることがわかった。

研究成果の概要（英文）：We present preliminary results of electrical resistivity measurements of Fe₃Si/FeSi₂ artificial lattices under hydrostatic pressures up to 2.6GPa. The measurement have been performed on the Fe₃Si single layer thin film and the [Fe₃Si(25Å)/FeSi₂(7.5Å)]₂₀ multilayer thin film with anti-ferromagnetically coupling among Fe₃Si layers. For the Fe₃Si single layer thin film, it is observed that the resistivity increases with increasing pressure, showing a tendency to saturate. On the other hand, it is found that the resistivity of the [Fe₃Si(25Å)/FeSi₂(7.5Å)]₂₀ multilayer thin film increases monotonically with increasing pressure. The pressure effect of the resistivity for Fe₃Si single layered thin film were less than +0.6%/GPa, and for FeSi₂ single layered thin film ,were less than +1.0%/GPa, and for the [Fe₃Si(25Å)/FeSi₂(7.5Å)]₂₀ multilayer thin film with anti-ferromagnetically coupling, were less than +2%/GPa, and for ferromagnetically coupling, were less than +1.0%/GPa.

交付決定額

(金額単位：円)

	直接経費	間接経費	合計
2009年度	2,100,000	630,000	2,730,000
2010年度	900,000	270,000	1,170,000
2011年度	700,000	210,000	910,000
年度			
年度			
総計	3,700,000	1,110,000	4,810,000

研究分野：工学

科研費の分科・細目：応用物理学・工学基礎・応用物性・結晶工学

キーワード：ヘテロ構造、鉄シリサイド、人工格子、静水圧力、電気抵抗率

1. 研究開始当初の背景

薄膜作製技術の進展に伴い、異種原子を原子スケールで交互に積層した今までにない新しい原子配列構造の物質が半導体材料や金属材料を用いて作製され、それぞれ半導体超格子、金属人工格子と呼ばれている。

これらの人工設計の新物質では電子が今までに見せたことのない振る舞いを演じ新奇な物性・機能が多数報告されており、次世代の新しい電子デバイスへの応用の可能性が大いに期待されている。中でも強磁性金属/非磁性金属人工格子で観測される巨大磁気抵抗効果は、抵抗変化が強磁性層間の磁化の平行・反平行に対応することから、伝導電子のスピン依存散乱に起因することが明らかとなり、スピントロニクスのおもしろさが増した。多機能化を目指す上で、磁性体のスピン依存特性と従来の半導体技術の融合が極めて興味深い。半導体と磁性体は結晶構造や化学結合などの性質が互いに極端に異なるため、それらを組み合わせたヘテロ構造は、良質な単結晶性と界面の急峻性・熱力学的安定性を維持したまま作製することが極めて困難であった。しかし、その構造が実現できれば、材料設計の自由度が大幅に広がり、従来の半導体および金属からのみからなる構造では得られなかった偏極スピンを利用した新しいデバイスの実現が期待される。

その中で、スピントロニクスの代表的構造である強磁性金属/半導体積層膜は、おもに GaAs/GaMnAs で研究されてきたが、以下のような課題がある。

(1) キュリー温度が室温以下で実用的でない。

(2) GaMnAs のスピン偏極電子が主に d 電子であるのに対して半導体相の GaAs が s、p 電子系であるためにスピン注入効率は極めて小さい。

それに対して我々は、Fe-Si 系化合物による強磁性金属/半導体積層膜に着目している。Fe-Si 系化合物には強磁性相の Fe_3Si と半導体相のナノ微結晶 (NC) FeSi_2 、 $\beta\text{-FeSi}_2$ 等が存在する。なかでも Fe_3Si と FeSi_2 の積層膜では、

①強磁性 Fe_3Si のキュリー点が 850 K と高く室温以上で動作できる。

②Si、 $\beta\text{-FeSi}_2$ 、 Fe_3Si は互いに格子不整合が 4% と小さいためにエピタキシャル成長が可能であり Si テクノロジーとの和合性が高い。

③共に d 電子が伝導に寄与しており、フェルミ準位で高偏極率を示す。したがって Fe_3Si から効率よく半導体層 FeSi_2 に偏極スピンを注入できる可能性がある。

④強磁性金属/半導体ヘテロ構造では電気伝導率のミスマッチが数桁と大きくスピン注

入効率を低下させる原因となっているが、本組み合わせでは 1 桁以内と極めて小さい。

等の利点があり、スピントロニクスの新しい系として興味深い。強磁性金属/半導体積層膜では、強磁性金属/非磁性金属人工格子の巨大磁気抵抗効果の原因である磁化の平行・反平行状態のスイッチングを半導体の電子状態を変化させることで、磁場印加以外で例えば光照射、圧力印加などでスイッチングできる可能性がある。過去に Fe_3Si 膜が Si 基板上に室温でエピタキシャル成長することを報告し、その構造と磁気特性を積層膜についても報告した。すなわち、 $\text{Fe}_3\text{Si}/\text{FeSi}_2$ ヘテロ構造人工格子膜の基本的な作製方法は確立している。本研究では、全く初めての試みとして圧力印加により半導体層の厚みを変化させることにより磁化の平行・反平行の制御の可能性を探索する。

2. 研究の目的

$\text{Fe}_3\text{Si}/\text{FeSi}_2$ 積層膜を作製し FeSi_2 の膜厚を変えることにより、層間結合が反強磁性、強磁性膜が得られ、磁気抵抗効果も測定できている。この系では磁気層間結合が強く良質な量子井戸層が形成されている。また、他の観点からこの積層膜において、面内方向において電流注入磁化反転の現象も見出されている。非磁性層として、金属ではなく電子構造が圧力に敏感な半導体層 FeSi_2 を採用していることが大きな特徴である。研究の目的は層間結合に及ぼす圧力印加の効果を調べることである。すなわち、圧力印加により半導体層の厚みを変えることにより、強磁性結合、反強磁性結合に変化が現れるか調べる。具体的には圧力を印加しながら電気抵抗率を測定する。圧力に対する電気抵抗率の変化が明確に得られた場合、実験結果をもとにその起源に対して物理的考察を行なう。

3. 研究の方法

対向ターゲットスパッタ法により Si (111) 基板上に Fe_3Si 膜をエピタキシャル成長させ、その上に NC- FeSi_2 を作製し、更に Fe_3Si 膜と交互にスパッタリングを行い Fe_3Si 膜をエピタキシャル成長させ、20 層の積層膜を作製した。 Fe_3Si の膜厚を 25 Å に固定し、半導体相の FeSi_2 の膜厚を変えることにより、強磁性結合、反強磁性結合の膜を容易に作製することができる。結晶構造とエピタキシャル成長の確認は XRD を使用した。Si 基板温度は室温でもエピタキシャル成長し、積層膜の作製は可能であるが、膜質の温度依存、磁化特性を考慮すると基板温度 300°C で作製することがベストである。したがって基板温度は 300°C とした。強磁性、反強磁性結合の確認および磁化特性は VSM を使用して測定した。電気抵

抗の測定は面内方向（CIP 方向）とし、微小電圧計および微小電流計を使用して直流 4 端子法で測定した。このとき電流の方向は変えて接触抵抗はキャンセルするようにした。試料は幅約 1 mm 弱、長手方向 2 mm 程度に切り出し、0.025 mm の金線をリード線としダイヤモンドペンで深く押し付けるように傷をつけ、そこに金線を銀ペーストで固めた。それを図 1 に示すピストン型圧力印加装置にセットして、面直方向に圧力を加えながら、電気抵抗は面内方向（CIP 方向）で測定した。電気抵抗は圧力印加時と圧力開放時に測定した。

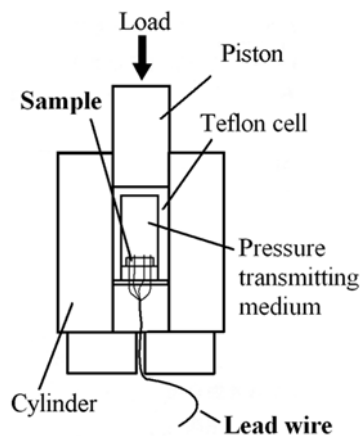


図 1. ピストン型圧力印加装置

4. 研究成果

当初、測定結果に再現性が得られなかった。原因を調べたところ、試料に直接ドータイドで電極を形成していたので不安定であった。改善するため金電極をスパッタして、その上にドータイドでリード線をつけると再現性よく測定できるようになった。Si 基板単体、Si 基板上の Fe₃Si 単層膜、Fe₃Si/FeSi₂ 積層膜に対して圧力を面直方向に印加し、面内方向で直流 4 端子法を用いて電気抵抗率を測定した。

図 2. に Fe₃Si 単層膜の電気抵抗率の荷重依存性を示す。荷重は圧力装置のピストンに加えた荷重である。常圧における電気抵抗率は 187 μΩ cm であった。圧力を加えていくと電気抵抗率は連続的に増加し、荷重 40 kN 付近であまり変化しなくなり、荷重 75 kN 付近で常圧における値から 1.7% 増加した。

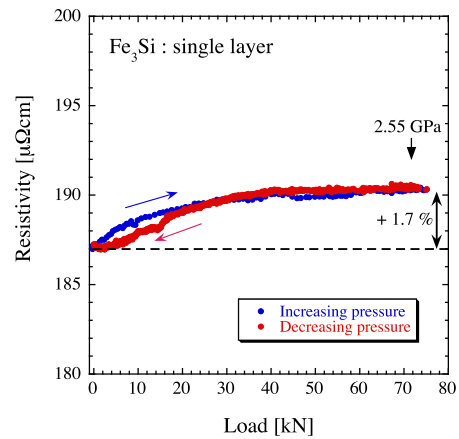


図 2. Fe₃Si 単層膜の電気抵抗率の圧力依存性

減圧していくと、電気抵抗率は連続的に減少し、完全に圧力を抜いた状態にすると加圧前の常圧における値になった。すなわち、この電気抵抗率の増加は圧力によるものと考えられる。

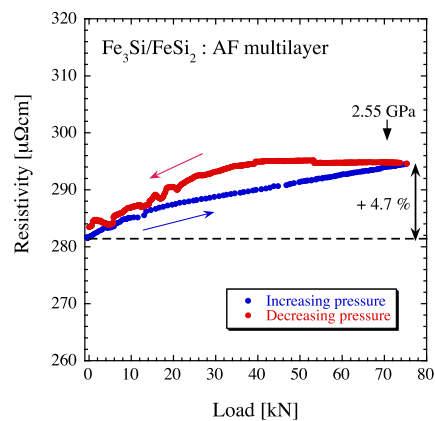


図 3. Fe₃Si/FeSi₂ 積層膜の電気抵抗率の圧力依存性

反強磁性結合の Fe₃Si/FeSi₂ 積層膜の電気抵抗率の荷重依存性の結果を図 3 に示す。常圧における電気抵抗率は 282 μΩ cm であった。圧力を加えていくと電気抵抗率は連続的に単調に増加し、荷重 75 kN 付近で常圧値から約 4.7% まで増加した。減圧していくと電気抵抗率は連続的に減少し完全に圧力を抜いた状態にすると、加圧前の常圧における値になった。この電気抵抗率の増加は圧力によるものと考えられる。加圧時と減圧時において、見かけ上ヒステリシスがみられるのは圧力装置のピストンが 40 kN 程度の荷重から戻りはじめそこで試料の圧力が減少しはじめたからである。

これらの結果から Fe₃Si 単層膜および反強磁性結合の Fe₃Si/FeSi₂ 積層膜について電気

抵抗率は圧力で増加した。Fe₃Si単層膜では1.5GPa付近から電気抵抗があまり変化しなくなったのに対して反強磁性結合Fe₃Si/FeSi₂積層膜は2.6GPa程度の圧力まで増加し続けた。現時点では抵抗率増加の変化を明確には議論できないが、少なくとも反強磁性結合の積層膜の方が電気抵抗率の変化が大きい。

圧力を印加することにより半導体層の膜厚が減少し反強磁性結合から強磁性結合へと変化することが期待される。電気抵抗を4端子法で測定すれば、磁気抵抗効果と同様に電気抵抗が小さくなるはずである。したがって、圧力を変えることによって電気抵抗がこれまでに2.6GPaまでの静水圧下でFe₃Si単層膜、FeSi₂単層膜、Fe₃Si/FeSi₂積層膜(AF結合、F結合)の電気抵抗を測定した結果、Fe₃Si単層膜に対する電気抵抗の圧力効果は+0.6%/GPa以下、FeSi₂単層膜の圧力効果は+1.0%/GPa以下変化した。Fe₃Si/FeSi₂積層膜ではAF結合膜では+2%/GPa以下であり、F結合では+1.0%/GPa以下であることがわかっている。反強磁性結合の変化の方が、強磁性結合の変化より大きいので、結果として望ましいが、変化率の値が小さいので、明確な議論はできない。これらの測定は面内方向に測定電流を流すCIP構造であるので、変化率が小さいと考えられる。面直方向(CPP方向)での電気抵抗率を測定することが必要である。これを実現するために、試料の電極構造を変えるために、マスク法、ドライエッチング法、電子線リソグラフィ法などを試みてきた。最近、電子線リソグラフィ法を使用することによって、面直方向測定用試料作製の可能性がでてきた。

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6件)

- ① 中西 剛司、高崎 理一、武田 薫、堀 研一郎、平川 信一、園田 貴之、吉武 剛: Fe₃Si/FeSi₂ 人工格子の高圧下における電気抵抗率測定、福岡工業大学エレクトロニクス研究所所報、査読無、第28巻 (2011) p.1-p.4

[学会発表] (計2件)

- ① 高崎 理一: Fe-Si系人工格子の高圧下における電気抵抗測定、第116回日本物理学会九州支部例会、2010.12.4、長崎大学
- ② 高崎 理一: Fe₃Si/FeSi₂人工格子の電気特性に及ぼす圧力効果、平成22年度応用物理学会九州支部学術講演会

2010.11.27、九州大学

6. 研究組織

(1) 研究代表者

武田 薫 (TAKEDA KAORU)
福岡工業大学・工学部・講師
研究者番号: 90236464

(2) 研究分担者

中西 剛司 (NAKANISHI TAKESHI)
福岡工業大学・工学部・准教授
研究者番号: 70297761

(3) 連携研究者

吉武 剛 (YOSHITAKE TSUYOSHI)
九州大学・総合理工学研究科(研究院)・准教授
研究者番号: 40284541