

平成 21 年 5 月 12 日現在

研究種目：若手研究（B）

研究期間：2007～2008

課題番号：19710088

研究課題名（和文）Fe<sub>3</sub>Si 強磁性体ナノドットの形成とその磁性測定研究課題名（英文）Formation and magnetic properties of ferromagnetic Fe<sub>3</sub>Si nanodots

研究代表者

中村 芳明（NAKAMURA YOSHIAKI）

大阪大学・大学院基礎工学研究科・准教授

研究者番号：60345105

研究成果の概要：極薄 Si 酸化膜を用いて、数 nm 程度のエピタキシャル Fe<sub>3</sub>Si ナノドットを超高密度（ $> 10^{12} \text{cm}^{-2}$ ）に形成する技術を開発した。鉄と Si の組成比を微小変化させることで、ナノドット形状が制御できることがわかった。数 nm サイズの半球状 Fe<sub>3</sub>Si ナノドットは、室温では超常磁性を示すが、ナノドットを扁平化すると、強磁性-超常磁性転位温度が室温まで増加することを発見した。このナノドット形状と磁性の強い相関を詳細に調べることで、デバイス応用で必要とされる“室温動作”のためのナノドット形成条件を見出した。

交付額

（金額単位：円）

	直接経費	間接経費	合計
2007 年度	2,200,000	0	2,200,000
2008 年度	1,000,000	300,000	1,300,000
総計	3,200,000	300,000	3,500,000

研究分野：複合領域

科研費の分科・細目：ナノマクロ科学 ・ ナノ材料・ナノバイオサイエンス

キーワード：ナノ構造形成・制御、ナノ磁性

## 1. 研究開始当初の背景

電子のもつ電荷とスピンを制御し、新しいエレクトロニクスの創成を目指す、スピンエレクトロニクス研究が盛んに行われている。このようなスピンエレクトロニクスデバイスの性能の向上のためには、高いスピン分極率を有する強磁性材料を用いる必要がある。そこで、スピン分極率が理論上ほぼ 100%であるハーフメタル薄膜の探索が精力的に行われている。一方、エレクトロニクスの分野において、Si、Ge 系半導体を用いた電子デバイスの進歩は著しく、電子、磁性デバイス

の融合のためには Si 基板上に成長可能な強磁性体材料が必要となってくる。

上述の条件を満たす材料として、Fe<sub>3</sub>Si が挙げられる。シリサイド系強磁性体である Fe<sub>3</sub>Si は D0<sub>3</sub> 構造をもつホイスラー合金で、ハーフメタルになり得る可能性が示唆されている。ホイスラー合金は、原子配列の乱れ、界面の影響等により、スピン分極率が激減することが知られており、急峻な界面を持ち且つ、欠陥の少ない Fe<sub>3</sub>Si 薄膜を Si 基板上に成長することが必要となってくる。しかし、格子不整合のため、欠陥のない良質な Fe<sub>3</sub>Si 薄

膜を得ることは極めて困難である。

私はこの問題を克服するため、Si 基板上極薄 Si 酸化膜技術を用いて、Fe<sub>3</sub>Si エピタキシャルナノドットを形成することを考案した。この手法で形成したドットは、無転位で弾性歪緩和しており、また、極薄 Si 酸化膜による鉄原子拡散の抑制が期待できる。さらに、ナノドットを超高密度形成できれば、超高密度磁性メモリへの応用が可能となる。しかしながら、現在、Si 基板上に超高密度 Fe<sub>3</sub>Si ナノドットをエピタキシャル成長する技術は未だ存在しない。

## 2. 研究の目的

Si 基板上に形成した極薄 Si 酸化膜上に Si を少量蒸着すると、酸化膜と化学反応が起こり、酸化膜上に超高密度の(10<sup>12</sup>cm<sup>-2</sup>以上)ポイドが形成される。私は、この基板に、Si と鉄を同時蒸着することで酸化膜上のポイドを核として 5nm 程度の半球状の超高密度  $\epsilon$ -FeSi<sub>2</sub> ナノドットをエピタキシャル成長することができることを見出した (Phys. Rev. B **72**, 075404 (2005).; J. Appl. Phys. **100**, 044313, (2006).)。本研究では、上述の極薄 Si 酸化膜技術を応用・発展させることで、良質な超高密度 Fe<sub>3</sub>Si 強磁性体ナノドットを Si 基板上にエピタキシャル成長する手法を開発し、形成した強磁性体ナノドットの磁性評価を行うことを目的とする。

## 3. 研究の方法

### (1) Fe<sub>3</sub>Si ナノドット形成法の開発

超高真空中で (~1×10<sup>-8</sup>Pa) Si(111)基板上極薄 Si 酸化膜に Si を 1 原子層 (ML) 蒸着することで、極薄 Si 酸化膜上にポイドを超高密度に形成した。その後、鉄と Si を 3:1 のフラックス比で同時に蒸着し、Fe<sub>3</sub>Si ナノドットを形成した。組成比は、フラックス比で制御した。鉄シリサイドは多様な結晶構造をとりうるため、様々な条件(基板温度、蒸着速度など)で実験を行い、Fe<sub>3</sub>Si ナノドットの形成条件を調べた。形状、結晶構造の評価は走査型トンネル顕微鏡、高速電子回折法を用いて行った。

### (2) Fe<sub>3</sub>Si ナノドットの磁性測定

磁化測定を行うため、形成した Fe<sub>3</sub>Si ナノドットに Si キャップ層を形成し、試料を大気中に取り出した。その後 SQID 測定を行い、磁化 磁場曲線、磁化 温度曲線等を調べた。そこから、飽和磁化、保磁力、相転移温度等を読み取り、ナノドット形状と磁性の関係を明らかにした。

## 4. 研究成果

### (1) Fe<sub>3</sub>Si ナノドット形成技術開発

極薄 Si 酸化膜に超高密度ナノ開口を形成

した後、様々な温度で鉄と Si の同時蒸着を行った。その結果、図 1 のような形成図を求めた。

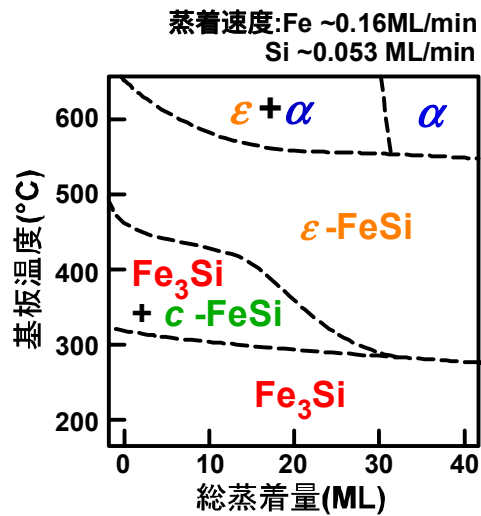


図 1 鉄シリサイドナノドットの形成図

この結果から、300 程度の温度で鉄と Si を同時蒸着すると、Fe<sub>3</sub>Si 結晶構造が形成可能となることが明らかになった。12ML の Fe<sub>3</sub>Si ナノドットの高速反射電子回折 (RHEED) 図形と STM 像を図 2 に示す。RHEED 図形は、Fe<sub>3</sub>Si 結晶構造を有するナノドットが Si 基板上にエピタキシャル成長していることを示している。また STM 像から大きさ 2nm、面内密度 6×10<sup>12</sup>cm<sup>-2</sup>の半球状のナノドットが形成していることがわかった。

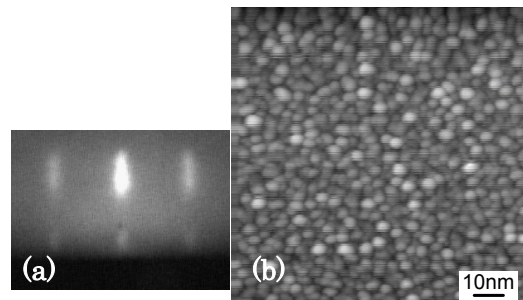


図 2 12-ML Fe<sub>3</sub>Si ナノドットの RHEED 図形 (a) と STM 像 (b)

蒸着量を変化させたとき、それに対応してドットサイズが変化した。また、Fe と Si の組成比を 3:(1+ )として を 0 から 0.03 の微小範囲で変化させた。その結果、Fe の組成比が大きくなると、ドット形状は、半球状から扁平化した。このことは、蒸着量、微小な組成比制御により、ドットサイズ、ドット形

状の制御が各々可能であることを意味している。

このナノドットの透過型電子顕微鏡 (TEM) 観察を行った。高分解能 TEM 像の詳細な解析から、このナノドットは、Si 基板との界面付近に、不整合転位が導入されることなく、ヘテロエピタキシャル成長していることがわかった。また、走査 TEM 観察 (STEM) を行った結果、ナノドット内のみ明るいコントラストが、観察された。STEM では、明るいコントラストは、重い原子 (現在の場合 Fe 原子) の存在を示している。このため、Fe 原子は Si 基板に拡散することなく、ナノドット内のみ存在していることがわかる。これは、極薄 Si 酸化膜の存在が、Fe 原子拡散を抑制したものと考えられる。

## (2) Fe<sub>3</sub>Si ナノドットの磁性測定

60ML の半球状 Fe<sub>3</sub>Si ナノドット ( $\delta = 0.015$ ) の SQUID 測定をした結果、を図 3 に示す。

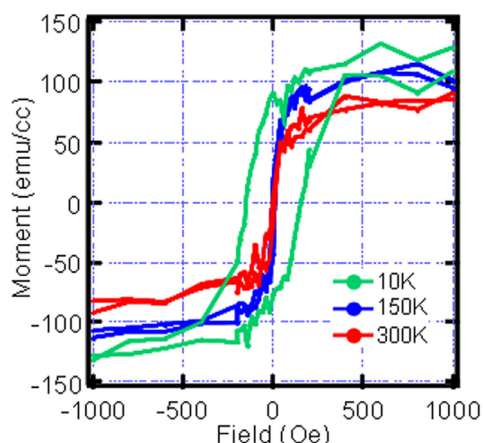


図 3 60-ML の半球状 Fe<sub>3</sub>Si ナノドット ( $\delta = 0.015$ ) の磁化-磁場曲線

低温 (<100 K) では、強磁性を示すが、室温では、超常磁性を示した。この試料の相転移温度を測定すると、150K 程度であった。

組成比を変化させて、扁平化した 60ML の Fe<sub>3</sub>Si ( $\delta = 0$ ) を形成し、磁性測定を行った。図 4 に示すように室温でも強磁性を示すことがわかった。

バルクの Fe<sub>3</sub>Si では、この微小组成変化では、相転移温度はほとんど変化しないことがわかっている。したがって、この相転位温度変化は、組成比によるものではなく、ドット形状に由来したものであると考えることができる。

これは、以下のようなモデルで説明できる。

ドット形状が扁平化すると、薄膜に近い状態になるため、室温でも強磁性を示すと考えられる。一方、ナノドットが半球状の場合は、ナノドットサイズが、ナノメートル程度と十分小さく、その中に磁区がたった一つしか存在していない状態となる (単磁区構造)。そのため、磁場印加時には、単磁区回転磁化過程をとるため、超常磁性的振る舞いを示す。しかし、現在のナノドットは、超高密度に形成しているため、低温では、ドット間の磁気双極子相互作用が無視できず、強磁性体的振る舞いを示す。単純化したモデル計算を行った結果、2 個の 60ML ナノドットの磁気双極子相互作用エネルギーは、200K 程度となり、実験値の相転移温度 150K とおおよその一致を示した。

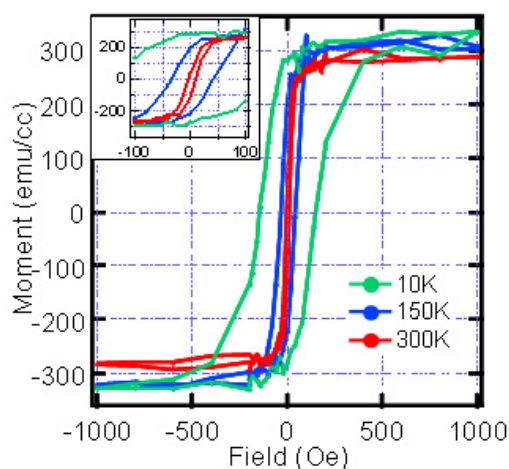


図 4 60-ML の扁平化した Fe<sub>3</sub>Si ( $\delta = 0$ ) の磁化-磁場曲線

本研究で、極薄 Si 酸化膜を用いて超高密度 Fe<sub>3</sub>Si ナノドットを Si 基板上にエピタキシャル成長する技術を開発した。また、ナノドット形状と磁性の強い相関を詳細に調べ、デバイス応用で必要とされる“室温動作”のためのナノドット形成条件を見出した。

## 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 4 件)

Y. Nakamura, T. Sugimoto, and M. Ichikawa, “Formation and optical properties of GaSb quantum dots epitaxially grown on Si substrates using an ultrathin SiO<sub>2</sub> film technique”, J. Appl. Phys. **105**, 014308-1 - 014308-4 (2009). 査読有

Y. Nakamura, S. Amari, N. Naruse, Y. Mera, K. Maeda, and M. Ichikawa, "Self-assembled epitaxial growth of high density  $\text{-FeSi}_2$  nanodots on Si (001) and their spatially resolved optical absorption properties", Cryst. growth & Des. **8**, 3019 - 3023 (2008). 査読有

K. Watanabe, Y. Nakamura, and M. Ichikawa, "Measurements of local optical properties of Si-doped GaAs (110) surfaces using modulation scanning tunneling microscope cathodoluminescence spectroscopy", J. Vacuum Sci. and Technol. B **26**, 195-200 (2008). 査読有

K. Watanabe, Y. Nakamura, and M. Ichikawa, "Local optical characterization related to Si cluster concentration in GaAs using scanning tunneling microscope cathodoluminescence spectroscopy", Jpn. J. App. Phys. **47**, 6109 - 6113 (2008). 査読有

[学会発表](計11件)

中村芳明、市川昌和、「Si基板上 $\text{-FeSi}_2$ 、 $\text{Fe}_3\text{Si}$  ナノドットの自己形成とその光学及び磁気特性」、第69回応用物理学会学術講演会、愛知県春日井市中部大学 (2008年9月4日)(招待講演)。

甘利彰悟、福田憲二郎、中村芳明、市川昌和、「Si(111)基板上への超高密度エピタキシャル $\text{Fe}_3\text{Si}$  ナノドットの形成とその磁気特性」、第69回応用物理学会学術講演会、愛知県春日井市中部大学 (2008年9月4日)。

中村芳明、杉本智洋、市川昌和、「極薄 $\text{SiO}_2$ 基板上に形成したエピタキシャルGaSb量子ドットの発光特性」、第69回応用物理学会学術講演会、愛知県春日井市中部大学 (2008年9月3日)。

藤ノ木紀仁、中村芳明、市川昌和、「1.5  $\mu\text{m}$  帯項発光効率を有する $\text{Si/Ge}_{1-x}\text{Sn}_x$  ドット/Si構造の作製」、第69回応用物理学会学術講演会、愛知県春日井市中部大学 (2008年9月3日)。

中村芳明、甘利彰悟、成瀬延康、目良裕、前田康二、市川昌和、「Si(001)基板上の高密度 $\text{b-FeSi}_2$ ナノドットのエピタキシャル成長とその空間分解光吸収特性」、第55回応用物理学関係連合講演会、千葉県舟橋市日本大

学理工学部舟橋キャンパス (2008年3月28日)。

金井龍一、杉本智洋、中村芳明、市川昌和、「極薄 $\text{Si}$ 酸化膜を用いたエピタキシャルGaSb薄膜のSi基板上への形成」、第55回応用物理学関係連合講演会、千葉県舟橋市日本大学理工学部舟橋キャンパス (2008年3月28日)。

渡辺健太郎、中村芳明、窪谷茂幸、片山竜二、尾鍋研太郎、市川昌和、「AlGaAs/GaAs多層構造断面のSTM-CLイメージング」、第55回応用物理学関係連合講演会、千葉県舟橋市日本大学理工学部舟橋キャンパス (2008年3月28日)。

渡辺健太郎、中村芳明、市川昌和、「STMカソードルミネッセンス分光法の空間分解能評価」、第68回応用物理学会秋季学術講演会、北海道札幌市北海道工業大学 (2007年9月7日)。

中村芳明、正田明子、趙星彪、田中信夫、市川昌和、「超高密度に形成した $\text{Ge}_{1-x}\text{Sn}_x$ 量子ドットの電子状態と発光特性」、第68回応用物理学会秋季学術講演会、北海道札幌市北海道工業大学 (2007年9月5日)。

杉本智洋、中村芳明、笠井秀隆、市川昌和、「極薄 $\text{Si}$ 酸化膜を用いた超高密度GaSbナノドットのSi基板上への形成」、第68回応用物理学会秋季学術講演会、北海道札幌市北海道工業大学 (2007年9月5日)。

福田憲二郎、中村芳明、甘利彰悟、市川昌和、「極薄 $\text{SiO}_2$ 膜を用いたSi(111)基板上の超高密度エピタキシャル $\text{Fe}_3\text{Si}$ ナノドットの形成」、第68回応用物理学会秋季学術講演会、北海道札幌市北海道工業大学 (2007年9月5日)。

[産業財産権]  
出願状況(計1件)

名称: 鉄シリサイド強磁性体デバイスの製造方法

発明者: 中村芳明、市川昌和、福田憲二郎

権利者: 独立行政法人科学技術振興機構

種類: 特許権

番号: 特願 2007 - 186686

出願年月日: 2007年7月18日

国内外の別: 国内

6 . 研究組織

(1)研究代表者

中村 芳明 (NAKAMURA YOSHIAKI)

大阪大学・大学院基礎工学研究科・准教授

研究者番号：60345105