

# Fe ナノドットにおける スピン依存単電子伝導評価に関する研究

## 学位論文内容の要旨

強磁性トンネル接合において室温で大きなトンネル磁気抵抗 (tunnel magnetoresistance : TMR) 効果が報告されて以来、TMR に関する研究が盛んに行われるようになった。TMR 効果とは、トンネル障壁を介して接続された2つの強磁性体電極の相対的な磁化の向きにより電気抵抗が変化する現象である。現在では、不揮発性メモリや磁気ヘッドなどへ応用され、その応用研究が活発に行われている。

近年、超微細化技術の発展により、これらの強磁性トンネル接合をナノメートルサイズに加工及び、自己組織化によるナノドットの作製が容易になりつつある。この様な微細化プロセスによって作製されたデバイスには、単電子トンネル (single electron tunneling : SET) と呼ばれる現象が観測されるようになった。SET とは、トンネルする電極間の容量が小さくなり、熱エネルギーより電荷の蓄積による静電エネルギーが大きくなった時に、電子のトンネルを抑制するクーロンブロッケイドが起こった結果、電子が時系列的に離散的にトンネル接合を透過する現象である。

強磁性体を用いた微小2重トンネル接合やナノドットを介した多重トンネル接合では、スピン依存伝導が SET の影響を受け、TMR 比の増大や、振動、反転と言った現象が起こることが報告されており、これらの物性の解明のため理論的な議論が活発に行われている。これらの実験は主に、磁性ナノドットを強磁性電極間にサンドイッチしたものと、カーボンナノチューブや半導体技術を利用して強磁性電極間に非磁性ドットを配置したものとに大別できる。前者は、単一ドットを配置するために薄膜に対して垂直に電極が配置している2端子構造をしており、ドットのエネルギー準位を変化させ SET 効果を制御するためのゲート端子の導入が難しいと言う点があげられる。一方、後者は3端子のトランジスタ構造ではあるが微細構造の作製が難しい。そのため、本論文においてナノメートルサイズの粒子の作成が容易にできる磁性金属を用い、3端子構造であるスピン依存単電子トランジスタの作製を試みた。デバイスとしての応用も考え、電極間に多数のナノドットを配置した平面型アレイ構造を提案する。

磁性ナノドットを作製するには、ボトムアップ手法による自己組織化を利用したものがある。本論文では、薄膜成長初期の微粒子状態を利用した極薄膜によるナノドットの作製と、磁性金属と絶縁体を同時蒸着することによって作製できるグラニューラー型のナノドットの2種類の方法で行った。材料には強磁性体に Fe、絶縁体に  $\text{SrF}_2$  を選択した。フッ化物である  $\text{SrF}_2$  は、単電子効果で重要になってくる誘電率も  $\text{SiO}_2$  や  $\text{MgO}$  と異なり、特にグラニューラー薄膜では研究報告例のない材料であるので、材料選択の知見を与えることができる。また、Fe の倍の格子定数を持ち、Si などの半導体と格子整合し、エピタキシャル成長といった可能性があり、応用の面からも興味深い。

以下に本論文の各章の概要を述べる。

第1章は、本研究の序論である。磁気抵抗効果に関する研究の経緯を述べ、現状における TMR と SET の両者の特性を融合したデバイスの研究状況と期待される特性についてまとめた。そして、このスピン依存単電子トランジスタ作製する目的を明確にした。

第2章では、ナノドット作製手法の1つである Fe 層の極薄膜を SrF<sub>2</sub> 上に作製し、エピタキシャル成長ナノドットの可能性について述べる。結晶方位として (001) と (111) の Fe エピタキシャル成長を、それぞれ MgO(001) と Si(111) 基板を用いて MBE 装置を使用し試行した。結晶解析には RHEED を使用し、粒子の形状及び数は AFM を用いて測定した。結果として SrF<sub>2</sub>(001) 上に Fe は多結晶化してしまうが、SrF<sub>2</sub>(111) 上では特定条件下において Fe(111) のエピタキシャル成長を確認できた。

第3章では、もう1つのナノドット作製法として Fe-SrF<sub>2</sub> グラニューラー膜を作製し、その膜構造と、基本的な磁気、電気的特性について述べる。薄膜の作製には、成膜条件を変えずに、Fe 組成を系統的に変化できる自作の超高真空装置を用いた。作製したサンプルのサイズは 5mm × 10mm の MgO(001) 基板上に成膜した。EPMA による組成分析、TEM、STM による構造評価、VSM による磁化測定、直流4端子法による磁気抵抗測定を行った。結果として、MR 比が室温で最大になる組成 34vol. % Fe において、Fe 粒子の粒径は平均 3nm であり、磁化曲線から求めた粒径とほぼ一致している。その時の MR 比は 3.5 % であり、Fe-SrF<sub>2</sub> 系は他の酸化物グラニューラー膜に比べ抵抗が高いことがわかった。以上、未報告の系である Fe-SrF<sub>2</sub> グラニューラー膜の基本特性を示した。

第4章では、第3章で述べたグラニューラー膜を使用し、微細加工した Si 基板をゲート端子に持つスピン依存単電子トランジスタの作成法と、その単電子特性と TMR 特性について述べる。素子微細化には EB リソグラフィとリフトオフプロセスを行い、電極間のギャップ長を 50nm-2000nm まで狭め、グラニューラーのパターン幅を 400nm とした。測定の結果、5 K において SET にみられるような非線形な IV 曲線とクーロンブロッケイド領域が観察された。またクーロンブロッケイド領域近傍において MR 比の増大及び反転が観られ、これらは MR 曲線からも確認できた。またゲート電圧を変化させることにより、クーロン振動と呼ばれるドレイン電流の振動が観られ、基本的な SET 特性を得ることができた。また、理論の論文にあるようなゲート電圧による MR の振動も観られ、本手法によるスピン依存単電子トランジスタ素子の可能性を示した。

第5章では、本論文の総括について述べる。

# 学位論文審査の要旨

主 査 教 授 高 橋 庸 夫  
副 査 教 授 山 本 眞 史  
副 査 教 授 末 岡 和 久  
副 査 助 教 授 有 田 正 志

学 位 論 文 題 名

## Fe ナノドットにおける スピン依存単電子伝導評価に関する研究

強磁性トンネル接合において室温で大きなトンネル磁気抵抗 (tunnel magnetoresistance : TMR) 効果が報告されて以来、TMR に関する研究が盛んに行われるようになった。TMR 効果とは、トンネル障壁を介して接続された 2 つの強磁性体電極の相対的な磁化の向きにより電気抵抗が変化する現象である。現在では、不揮発性メモリや磁気ヘッドなどへ応用され、その応用研究が活発に行われている。

近年、超微細化技術の発展により、これらの強磁性トンネル接合をナノメートルサイズに加工及び、自己組織化によるナノドットの作製が容易になりつつある。この様な微細化プロセスによって作製されたデバイスには、単電子トンネル (single electron tunneling: SET) と呼ばれる現象が観測されるようになった。SET とは、トンネルする電極間の容量が小さくなり、熱エネルギーより電荷の蓄積による静電エネルギーが大きくなった時に、電子のトンネルを抑制するクーロンブロッケイドが起こった結果、電子が時系列的に離散的にトンネル接合を透過する現象である。

強磁性体を用いた微小 2 重トンネル接合やナノドットを介した多重トンネル接合では、スピン依存伝導が SET の影響を受け、TMR 比の増大や、振動、反転と言った現象が起こることが報告されており、これらの物性の解明のため理論的な議論が活発に行われている。これらの実験は主に、磁性ナノドットを強磁性電極間にサンドイッチしたものと、カーボンナノチューブや半導体技術を利用して強磁性電極間に非磁性ドットを配置したものとに大別できる。前者は、単一ドットを配置するために薄膜に対して垂直に電極が配置している 2 端子構造をしており、ドットのエネルギー準位を変化させ SET 効果を制御するためのゲート端子の導入が難しいと言う点があげられる。一方、後者は 3 端子のトランジスタ構造ではあるが微細構造の作製が難しい。これらの事実を踏まえ、本論文においてナノメートルサイズの粒子の作成が容易にできる磁性金属を用い、3 端子構造であるスピン依存単電子トランジスタの作製を試みている。さらに、デバイスとしての応用も考え、電極間に多数のナノドットを配置した平面型アレイ構造を提案している。

磁性ナノドットを作製するには、ボトムアップ手法による自己組織化を利用したものがある。本論文では、薄膜成長初期の微粒子状態を利用した極薄膜によるナノドットの作製と、磁性金属と絶

縁体を同時蒸着することによって作製できるグラニューラー型のナノドットの2種類の方法で行っている。材料には強磁性体に Fe、絶縁体に  $\text{SrF}_2$  を選択している。フッ化物である  $\text{SrF}_2$  は、単電子効果で重要になってくる誘電率も  $\text{SiO}_2$  や  $\text{MgO}$  と異なり、特にグラニューラー薄膜では研究報告例のない材料であるので、材料選択の知見を与えることができるという特徴もある。また、Fe の倍の格子定数を持ち、Si などの半導体と格子整合し、エピタキシャル成長といった可能性があり、応用の面からも興味深い。以下に本論文の各章の概要を述べる。

第1章は、本研究の序論である。磁気抵抗効果に関する研究の経緯を述べ、現状における TMR と SET の両者の特性を融合したデバイスの研究状況と期待される特性についてまとめている。加えて、このスピン依存単電子トランジスタ作製する目的を明確にしている。

第2章では、ナノドット作製手法の1つである Fe 層の極薄膜を  $\text{SrF}_2$  上に作製し、エピタキシャル成長ナノドットの可能性について述べている。結晶方位として (001) と (111) の Fe エピタキシャル成長を、それぞれ  $\text{MgO}(001)$  と  $\text{Si}(111)$  基板を用いて MBE 装置を使用し試行した。結晶解析には RHEED を使用し、粒子の形状及び数は AFM を用いて測定し、その結果として、 $\text{SrF}_2(001)$  上に Fe は多結晶化してしまうが、 $\text{SrF}_2(111)$  上では特定条件下において Fe(111) のエピタキシャル成長を確認している。

第3章では、もう1つのナノドット作製法として Fe- $\text{SrF}_2$  グラニューラー膜を作製し、その膜構造と、基本的な磁気、電気的特性について述べている。薄膜の作製には、成膜条件を変えずに、Fe 組成を系統的に変化できる自作の超高真空装置が用いられている。作製したサンプルは、サイズは  $5\text{mm} \times 10\text{mm}$  の  $\text{MgO}(001)$  基板上に成膜されたものであり、EPMA による組成分析、TEM、STM による構造評価、VSM による磁化測定、直流4端子法による磁気抵抗測定を行っている。結果として、MR 比が室温で最大になる組成 34vol. % Fe において、Fe 粒子の粒径は平均 3nm であることを示し、この結果は、磁化曲線から求めた粒径とほぼ一致していることを示している。その時の MR 比は 3.5 % であり、Fe- $\text{SrF}_2$  系は他の酸化物グラニューラー膜に比べ抵抗が高いことを明らかにしている。以上、未報告の系である Fe- $\text{SrF}_2$  グラニューラー膜の基本特性を示されている。

第4章では、第3章で述べたグラニューラー膜を使用し、微細加工した Si 基板をゲート端子に持つスピン依存単電子トランジスタの作成法と、その単電子特性と TMR 特性について述べられている。素子微細化には EB リソグラフィとリフトオフプロセスを行い、電極間のギャップ長を 50nm-2000nm まで狭め、グラニューラーのパターン幅を 400nm としている。測定の結果として、5 K において SET にみられるような非線形な IV 曲線とクーロンブロッケイド領域を観察している。またクーロンブロッケイド領域近傍において MR 比の増大及び負への反転をも観測し、これらは MR 曲線からも確認できている。またゲート電圧を変化させることにより、クーロン振動と呼ばれるドレイン電流の振動を観測し、基本的な SET 特性を得ている。また、このクーロン振動の磁場による振動秋季の局所的な変調を実験的に捉え、理論の論文にあるようなゲート電圧による MR の振動も観測した。これらの結果として、本手法によるスピン依存単電子トランジスタ素子の可能性を示した。

第5章では、本論文の総括について述べている。

これを要するに、著者は、新しい材料系を用いたスピン依存単電子トランジスタの開拓に向けて、材料物性の立場から磁性ナノドットの作成法の構築に取り組み、また微細加工技術を修得して工夫を凝らしてデバイスを作成し、単電子効果と MR 効果の双方を同時に発現させることに成功し、磁場によるクーロン振動の変化を捉えることに成功したものである。

よって著者は、北海道大学博士(工学)の学位を授与される資格があるものと認める。