

研 究 報 告 書

「基本論理素子に向けたナノスピバルブ構造の選択形成」

研究期間：平成19年10月～平成23年3月

研究者：原 真二郎

1. 研究のねらい

半導体ナノテクノロジー研究の分野では、トップダウン型の微細加工技術が産業レベルで確立され ULSI などの高集積化を支えてきたが、加工寸法の限界から、結晶成長により原子を1つ1つ積み上げる、いわゆるビルドアップ(ボトムアップ)型技術が幅広い材料・デバイス研究の分野で必要不可欠となっている。また、希薄磁性半導体薄膜や強磁性体/半導体複合ナノ材料などにより近年具現化されつつある半導体スピントロニクス研究では、物質の磁性の起源である電子のスピンの物性を従来の半導体デバイスの機能に融合することを目指し、トンネル磁気抵抗素子・スピン LED・スピン FET などの高機能・新機能デバイスに関する研究が盛んに行われているが、極端な低温成長による薄膜成長と、やはり、従来のトップダウン型微細加工によりナノスピントロニクスデバイスが作製されており、ビルドアップ型形成手法に関する研究開発は皆無と言って良いのが現状である。

本研究では、独自に開発してきた強磁性体・半導体ナノ構造の有機金属気相成長技術、いわゆる MOVPE(Metal-Organic Vapor Phase Epitaxy)法を応用し、半導体材料(ウエハ)上で強磁性体/半導体ヘテロ接合ナノ構造をビルドアップにより形成する MOVPE 選択成長技術の確立を目指す。電子線(EB)リソグラフィにより作製したウエハ上の非晶質マスクパターンを用いて、ナノメートルの極微細領域に「結晶成長」自体を制限し、結晶構造の違いや大きな格子不整合の影響を抑制することにより、均一で結晶軸の揃った強磁性体/半導体ヘテロ接合ナノ構造を任意の位置に選択的に形成する、これまでに無い技術を実現する。プロトタイプデバイスとして、縦方向/横方向ナノ磁気抵抗素子から成る基本論理素子の試作を目指す。研究期間内では、以下のように3つの研究課題・目標を設定し、研究を推進した。

- (1) 論理素子構造の基本となる縦方向および横方向ナノスピバルブ(磁気抵抗)構造を、それぞれ単体で作製する選択形成技術を確立する。
- (2) 作製した単体素子の基礎物性評価(磁気異方性評価・磁気抵抗効果測定等)を行い、MOVPE 選択成長用マスクパターンの最適化、および論理素子構造の設計ヘフィードバックする。
- (3) 縦方向および横方向ナノスピバルブ(磁気抵抗)構造による基本論理素子として、XOR回路を試作し素子特性評価を行うと共に、ナノデバイスプロセス技術を確立する。

最終目標として定めた、「全く新しいビルドアップ(ボトムアップ)型ナノ作製技術」と、従来のトップダウン型微細加工技術では実現困難な「新規の磁気デバイス構造」の実現に向かって着実に研究を推進すると共に、その過程で明らかになった課題や新しい知見から、作製方法・材料・デバイス構造の改善や、デバイス応用・技術展開を新たに模索・検討することにより、半導体/磁性体ナノエレクトロニクスにおける「ナノ製造技術の探索と展開」に貢献する。

2. 研究成果

- (1) 論理素子構造の基本となる縦方向および横方向ナノスピバルブ(磁気抵抗)構造を、それぞれ単体で作製する選択形成技術を確立する：

実験には主に半絶縁性GaAs(111)Bおよびn型Si(111)ウエハを用いた。まず半導体ウエハ全面に非晶質のSiO₂誘電体膜(20～100nm)を形成するが、GaAs上ではプラズマスパッタもしくはプ

ラズマCVD法による堆積、Si上ではSiON_x膜と共に熱酸化を用いた。EBリソグラフィにより所望の位置に部分的に半導体ウェハ表面を露出させた「マスク開口パターン」を作製し、その後通常のMOVPE装置を用いて、H₂ガス希釈した20%-AsH₃(V族)および有機金属(CH₃C₅H₄)₂Mn原料により、強磁性体MnAsナノクラスタ(NC)を形成する。バッファ層として用いる通常の半導体ナノ構造の選択形成には、有機金属原料として(CH₃)₃Gaおよび(CH₃)₃Alを用いた。この際非晶質のSiO₂膜が「マスク」として働き、半導体ウェハ表面を露出させた所望の「開口部」にのみ選択的にナノ構造を結晶成長させる、いわゆる「選択成長法」が本技術の基本となっている。個々のMnAsナノクラスタを選択形成する「マスク開口部」の形状は円形もしくは長方形であり、研究を通じて用いた典型的な円形開口部で直径100～300nm、比較的大きいもので直径500～1,000nmとした。また通常のマスクパターンでは、この「マスク開口部」を0.05～0.1mm四方の非晶質膜領域内にのみ周期的に形成し、さらにその1つの非晶質膜領域を単位とした、同程度の0.05～0.1mm間隔の周期構造をウェハ上にいくつか作製した。マスク開口部を有する非晶質膜領域外は、通常、半導体ウェハ表面(GaAsあるいはSi)を露出させており、非晶質マスク表面の過剰な原料(反応種)の吸着サイトとして機能する。

(1-a) 横方向ナノ磁気抵抗素子に向けた高均一ナノクラスタ列の選択形成技術の確立

研究当初、GaAs(111)B基板に直接選択形成したMnAs NCsに関して、透過型電子顕微鏡(TEM)による断面観察を行った結果、Ga原料を一切供給していないにもかかわらずMnAs NCs直下に意図しないGaAs層が形成されており、これがMnAs NCsの均一性低下の要因となっていることを見出した。この問題を解決するため、熱的により安定なAlGaAsを用いたナノピラーバッファ層の導入を検討した結果、図1(a)の断面TEM像が示すように、極めてサイズ均一性の高い等方性NCs(MnAs NC底面の幅～160nm、上面の幅～80nm)を形成可能であることを確認した。またナノクラスタのサイズ均一性は、選択形成のマスクとなるSiO₂誘電体膜の堆積法にも依存し、従来主に用いていたプラズマスパッタと比べ、プラズマCVD法により堆積したSiO₂膜でより良好な結果が得られる。これは、プラズマスパッタにより室温で堆積した比較的「疎」なSiO₂膜に比べ、プラズマCVD法により300°Cの条件下で堆積した比較的「密」なSiO₂膜では、通常MnAsナノクラスタの選択形成に用いる800°C前後の高い結晶成長温度下で生じる「熱収縮」の度合いが小さいためと考えられる。

またTEMによる格子像観察と電子線回折測定の結果、MnAsナノクラスタはNiAs型六方晶の結晶構造を有し、そのc軸<00(0)1>(磁化困難軸)方向は下地であるGaAsウェハの<111>B方向と平行であった。作製したMnAsナノクラスタは原子レベルで平坦な結晶ファセット(上面:{00(0)1}、側面:{10(-1)1}(60°)および{10(-1)0}(90°))で構成される表面を有し、下地のGaAsもしくはAlGaAs層とのヘテロ接合界面も原子レベルで急峻である。(MnAs/AlGaAs NCsについては、図1(b)および(c))MnAsとGaAsは(111)B面上で6.8%程度の格子不整合度を有しているため、ヘテロ界面の極近傍で格子は歪んでいると考えられるが、そもそも結晶構造が異なる半導体と強磁性体の結晶成長をナノメートルの極微細領域に制限することにより、良質なヘテロ接合ナノ構造を作製することに初めて成功した。格子不整合度から、ヘテロ界面の面内でミスフィット転位が生じている可能性はあるが、構造評価により、これを確認することは現時点では極めて困難である。また、MOVPE成長条件で特に鍵となる「V/Mn供給ガス比」に対する成長方向制御を検討した結果、V/Mn比が比較的低い(～375)条件下では、成長時間に対し横方向成長が支配的であり、ナノクラスタの高さは180nm程度で飽和する。一方V/Mn比を増加すると(375→2,250)、c面への

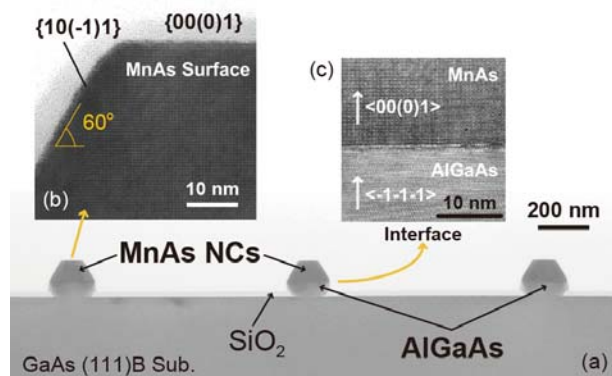


図1 AlGaAs ナノピラーバッファ層による高均一MnAs ナノクラスタ(NCs)の作製(断面TEM像)

十分な As 吸着からか、c 軸方向の成長が促進され、高さが増加する(180 → 300 nm)。

本研究では主として化合物半導体 GaAs (111)B 基板を用いた技術開発を行っているが、Si (111) 基板への展開も並行して検討した。Si (111) 基板に直接 MnAs NCs を選択形成する実験を行ったところ、図 2(a) に示す通り、NCs は全く作製されず、マスク開口部から Mn が基板結晶である Si と反応し、MnSi 化合物(可能性としては、Mn シリサイド等)が形成される、また SiO₂ 薄膜がマスク開口部端から侵食されることを確認した。さらに GaAs (111)B 基板と異なり、MnAs NCs の上部や、マスク開口部端近傍の AlGaAs ナノピラーバッファ層の結晶ファセットの劣化が確認され、Mn 原料のガスエッチング効果により基板表面から再脱離した Si や、依然として生じるマスク開口部からの Mn-Si 反応に起因している可能性が示唆された。選択形成用マスクパターン、およびマスク材質そのものの検討を行った結果、ナノクラスタの選択形成用マスク開口部以外、Si ウェハ全面を SiON_x 膜(～ 30 nm)により覆ったマスクパターンを用いることにより、明瞭な結晶ファセットを有する MnAs/AlGaAs NCs を作製することに成功した(図 2(b))。ただし、サイズ均一性に依然課題が残るため、今後さらに、マスクパターンおよび材質の最適化が必須である。

当初、BHF 溶液(HF:NH₄F = 1:10)を用いた SiO₂ 膜のウェットエッチングによりマスク開口パターンを作製し、開口部の GaAs (111)B ウェハに直接 MnAs ナノクラスタを選択形成したが、CF₄ ガス(@ 4 Pa)を用いたドライエッチング(反応性イオンエッチング: RIE)による選択成長ウェハの作製プロセスおよび、より熱的に安定な AlGaAs ナノピラーをバッファ層として導入することにより、MnAs ナノクラスタ列のサイズ均一性が著しく向上した。これは、開口部の直径が 300 nm 以上と比較的大きなパターンから、図 1 においても示したように、200 nm 以下に微細化する際にも非常に有効である。この技術により、均一性の高い横方向ナノ磁気抵抗素子構造を作製することに成功し(図 3)、ナノクラスタ間のギャップ ～ 10 nm の構造を比較的安定して作製可能となった。研究の当初計画では、引き続き in-situ で実施する MOVPE 選択成長により、ナノクラスタ間のギャップを非磁性層である半導体(AIAs 等)薄膜で埋め込む予定であったが、次の(1-b)節で述べる通り、現時点では更なる検討が必要のため、後工程のデバイスプロセスにより、絶縁膜(SiO₂ もしくは Al₂O₃)による埋め込みを実現し、トンネル障壁層を形成する。

(1-b) 縦方向ナノ磁気抵抗素子に向けた選択形成技術の確立

縦方向ナノ磁気抵抗素子の試作に向け、当初から計画していた通り、ワイドギャップの半導体材料である AIAs 薄膜を非磁性層として用いた、縦方向 MnAs/AIAs/MnAs 巨大磁気抵抗(GMR)素子構造の試作を目指し、GaAs (111)B 基板上的 AlGaAs ナノピラーバッファ層を用いた積層ナノクラスタ構造の作製を行った。SEM 観察の結果からは、極めて均一性の高い周期構造が確認されたが、図 4 に示した断面 TEM 観察と電子線回折

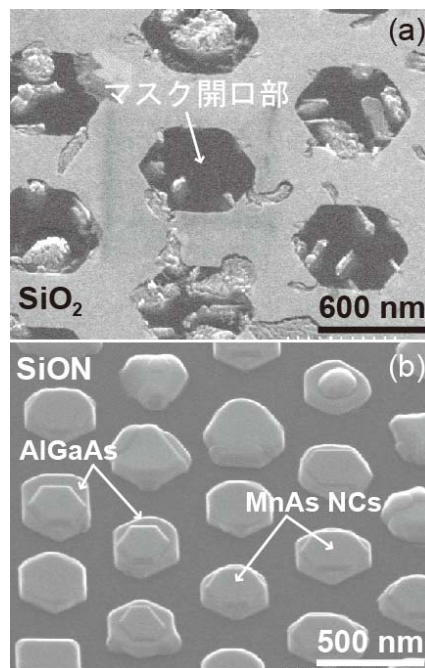


図 2 Si (111) 基板上的 MnAs NCs

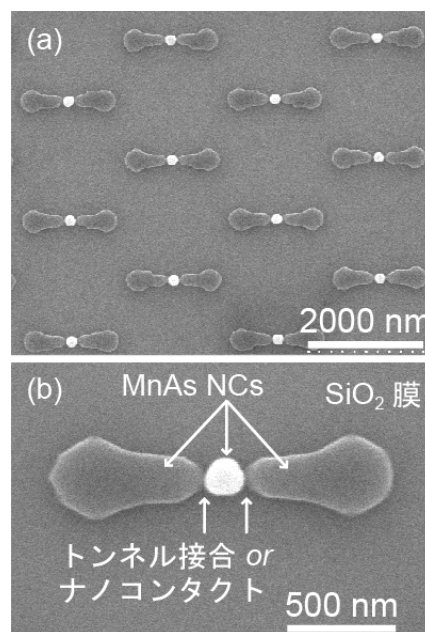


図 3 横方向磁気抵抗素子に向けた高均一 MnAs NC 列の選択形成

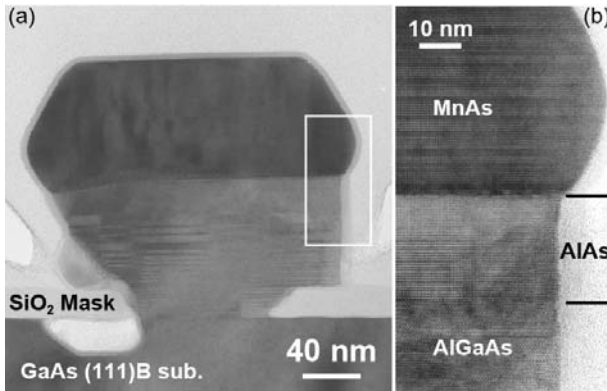


図4 縦方向磁気抵抗素子に向けた MnAs/AIAs/MnAs/AlGaAs 積層構造の試作

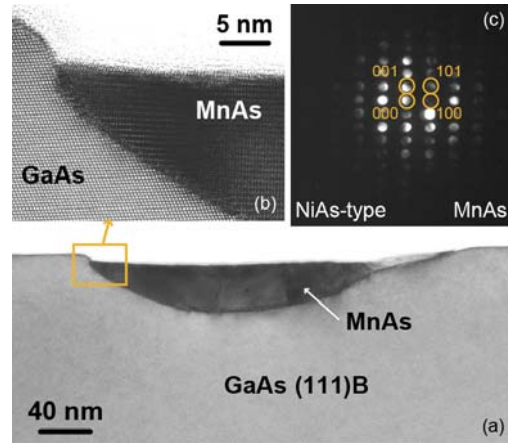


図5 「エンドタキシ」による下地 GaAs 薄膜中での MnAs 単結晶層の形成(TEM 像)

測定の結果、所望の積層構造ではなく、下部 MnAs 層のない MnAs/AIAs/AlGaAs 積層構造が確認された。研究期間当初に行った MnAs/GaAs/MnAs ダブルヘテロ接合 NCs の選択形成実験においても、同様に下部 MnAs 層のない MnAs/GaAs シングルヘテロ接合 NCs が形成されており、結晶成長中に MnAs は表面偏析しやすく、半導体ナノ構造上への MnAs NCs 積層が極めて困難であることを示唆している。

MnAs/半導体/MnAs積層NCsの作製が困難である一因として、Si (111)基板上の実験でも確認されたMnの反応性の高さが挙げられる。例えば、マスクパターン基板ではなく、通常のプレーナ GaAs (111)B基板を用いた実験では、GaAs薄膜を成長後、V族原料であるAsH₃ガスを流さず、H₂希釈したMn原料のみを温度 600°Cの条件下で流した結果、図 5 の断面TEM像で示す通り、As原料の供給が無いにもかかわらず、GaAs薄膜中でMnAsが単結晶化し、六角形のMnAs NCsを形成することが明らかとなった。ある面方位関係を有しながら、下地となる結晶中に単結晶を形成する現象は、これまで扱った「エピタキシ(Epitaxy)」に対し「エンドタキシ(Endotaxy)」と呼ばれ、これまで他の材料系で確認される例は散見されたものの、本材料系においても初めて確認された。当初計画した縦方向ナノ磁気抵抗素子の試作に向けて、解決が困難な難題であり、(i) AIAs等の半導体を用いた非磁性体中間層ではなく、酸化膜等の代替材料を検討する、または、(ii) 縦方向ナノ磁気抵抗素子構造そのものの利用を回避し、横方向構造のみで当初目標としたプロトタイプ素子を構成する、といった代替案を検討する必要性が生じた。

- (2) 作製した単体素子の基礎物性評価を行い、MOVPE 選択成長用マスクパターンの最適化、および論理素子構造の設計へフィードバックする:

MnAs ナノクラスタの基礎的な磁気物性評価として、原子間力顕微鏡をベースとした磁気力顕微鏡(MFM)による磁化方向評価および磁区構造観察を行い、形状異方性ナノクラスタによる磁化方向制御技術の開発を行った。図 6 は、(a)正六角形の等方的な形状を持つ MnAs NCs と、(b)MnAs の 3 つ磁化容易軸(a軸)のうちの 1 方向に長軸を持つ形状異方性 NCs に対して、2,500 Gauss の外部磁場を印加した後、MFM 観察を行った結果である。外部磁場を印加しない as-grown のサンプルでは、単磁区構造の他、多磁区および還流磁区構造を有する NCs が混在していることが確認されているが、外部磁場印加後、単磁区構

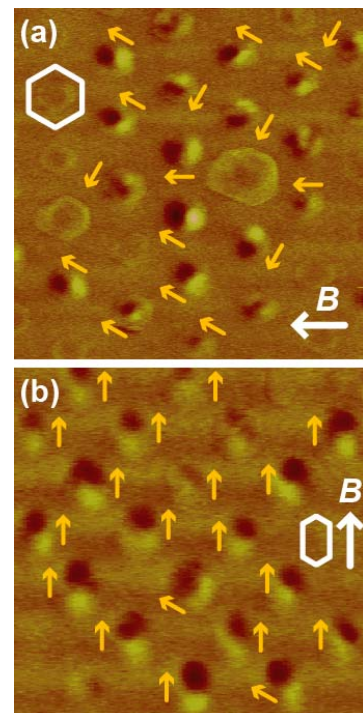


図6 (a)等方性・(b)形状異方性 NCs の磁化方向(MFM 像)

造を有する NCs 数が顕著に増加する。同程度のサイズを有する MnAs/AlGaAs NCs で比較したところ(等方性 NCs: 直径 650 nm、形状異方性 NCs: 長さ 630 nm・幅 300 nm)、単磁区化する割合は、等方性 NCs では 43%程度であるのに対し、形状異方性 NCs では 80%に達することを明らかにした。さらに、図 6 で比較して明らかなように、3つの等価な a 軸を有する等方性 NCs では、その磁化方向を制御することは困難であり、磁気抵抗素子の実現に向けては、磁化容易軸(a 軸)のうちの 1 方向に長軸を持つ形状異方性 NC 構造の導入が不可欠であるとの知見を得た。

また図 7 では、従来のウェットエッチングにより選択成長用マスクパターンを形成した GaAs (111)B ウェハ上に試作した横方向磁気抵抗素子構造に対し、外部磁場方向に依存した各ナノクラスタの磁化方向を MFM により観察した結果を示している。本構造では、MnAs の磁化容易軸である a 軸の 1 つに沿って形状異方性を有する 2 つのナノクラスタ間に、より等方的でサイズの小さいナノクラスタを配置しており、理想的には 3 つのナノクラスタの磁化方向(平行/反平行)を個別に制御することにより、磁気抵抗(MR)を制御する。またナノクラスタの多重連結により、MR の多値化やネットワーク構造の実現も可能となる。外部磁場強度の連続的な変化と印加方向の反転(将来はスピン注入磁化反転)に伴って、各ナノクラスタの磁化方向を順次反転させるには至っていないが、最初に印加した 3,500 Gauss の外部磁場と反対に 1,000 Gauss 印加した場合(図中、白色矢印)、3 つのナノクラスタ全ての磁化方向(図中、橙色矢印)が反転する様子を確認できた。

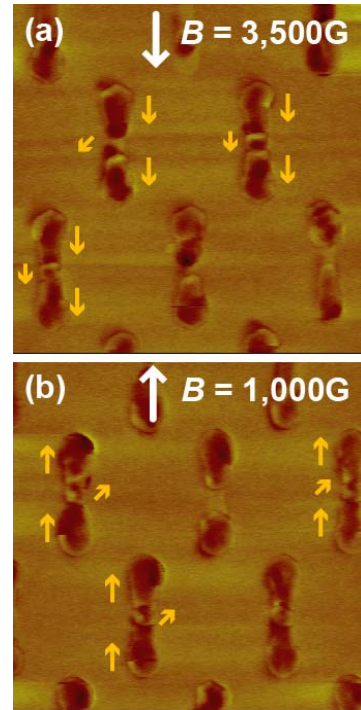


図 7 横方向磁気抵抗素子の磁化方向反転(MFM 像)

(3) 縦方向および横方向ナノスピバルブ(磁気抵抗)構造による基本論理素子として、XOR 回路を試作し素子特性評価を行うと共に、ナノデバイスプロセス技術確立する:

先の(1-b)節で述べたように、縦方向ナノ磁気抵抗素子構造の作製に向けては、未だ解決すべき課題が残るため、横方向磁気抵抗素子構造をベースとしたプロトタイプ素子を試作し、ナノデバイスプロセス技術の開発を行った。

ナノクラスタ間のギャップに SiO₂ 絶縁膜(~ 30 nm)をプラズマ CVD により堆積した、横方向 MnAs/SiO₂/MnAs トンネル磁気抵抗(TMR)素子構造を作製し、所望のナノクラスタ列に Ti/Au 電極を形成した試作素子に対して、I-V 特性を評価した。図 8 は、(a) 近接配置した 2 つの形状異方性 NCs で構成される横方向磁気抵抗素子構造の周期配列を作製した領域に、電極および配線を施した試作素子全体の様子と、(b) Ti/Au 電極を接触させた 1 組の NC 対の拡大 SEM 像である。いくつかのサンプルの I-V 特性評価を試みたが、絶縁膜を介した、電極あるいは配線から GaAs ウェハへのリーク電流のため、磁気抵抗素子自体の MR 効果測定には至っていない。リーク電流は、(i) 電極形成前に堆積した SiO₂ 絶縁膜が薄い、かつ、(ii) MnAs ナノクラスタの選択形成では比較的高い成長温度(~ 800°C)条件を用いるが、結晶成長中 AlGaAs ナノピラーバッファ層を介して半絶縁性 GaAs ウェハに Mn 原子が拡散し、p 型 GaAs 層(例えば、J. Appl. Phys. 107, 013701 (2010): p ~ 1.7 × 10¹⁸ cm⁻³ @ 280 K 程度)が形成されたことに起因している。このことは、先に述べた「エ

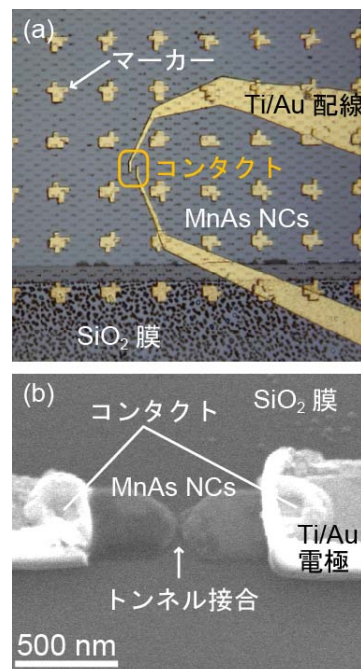


図 8 ナノデバイスプロセスによる横方向素子の試作: (a) 電極形成部の光学顕微鏡像・(b) NCs の SEM 像



ンドタキシ(図5)」に関する実験結果からも示唆されており、所望のプロトタイプ素子の試作に向け、Mn原子の基板への拡散を抑制する技術が必須となる。

3. 今後の展開

依然残る主要な課題として、次の3項目について、引き続き推進中である：

- (a) 縦方向ダブルヘテロ接合 NCs の作製技術
- (b) Mn 原子の拡散による基板へのリーク電流防止技術
- (c) 絶縁膜単結晶化技術の確立による TMR 素子動作の実証

課題(a)・(b)に対する代替案として、 Al_2O_3 絶縁膜を原子層堆積(ALD)後、ポストアニールによる単結晶膜化技術を検討中である。非晶質の Al_2O_3 絶縁膜を高温アニールすることにより単結晶化する技術が、SiおよびGaN系材料の研究分野で報告されている。本研究では図9に示す通り、(1)縦方向MnAs/ Al_2O_3 /MnAsトンネル磁気抵抗(TMR)素子構造の作製と、(2)基板へのMn原子の拡散防止膜としての利用を検討している。図10はその予備実験の結果である。アニール後の Al_2O_3 膜(~5nm)上では、明瞭な結晶ファセットを有するMnAs NCsが、ランダムではあるが形成されており、下地結晶(図10では、GaAs(111)B面)の結晶方位に対し、エピタキシャルに Al_2O_3 膜が単結晶化したことを示唆する現象が確認できる。ただ、NC作製前の Al_2O_3 膜の高温アニール(~950°C前後)と、表面処理(As終端等)が重要であるとの知見を得ており、さらに詳細に条件を検討する必要がある。課題解決後、さらにプロトタイプの横方向TMR素子を試作し、課題(c)を実施する予定である。

また一方で、縦方向ナノ磁気抵抗素子構造を用いることなく、新たな素子構造の可能性を模索する必要もある。NCsのギャップ間に非磁性膜あるいは絶縁膜を成長させることにより、横方向ナノGMR/TMR素子作製を目指す他(図11(a)・(b))、均一で結晶軸の揃った強磁性体/半導体ヘテロ接合ナノ構造を任意の位置に選択的に形成する本手法最大の利点を活かし、多段連結ナノクラスタによる論理素子の「多値化」やネットワーク化(図11(c))を実現する計画である。さらに、本研究後の将来に向けたさらなる技術展開として、(i) NiAs型六方晶に起因した明瞭な結晶ファセットの特長を活かし、六角形MnAsナノクラスタの頂点のナノメートル領域でポイント接合した構造を利用する、いわゆる「ナノコンタクトMR素子」(図11(d))への応用や、(ii) 強磁性体ナノ構造の周期

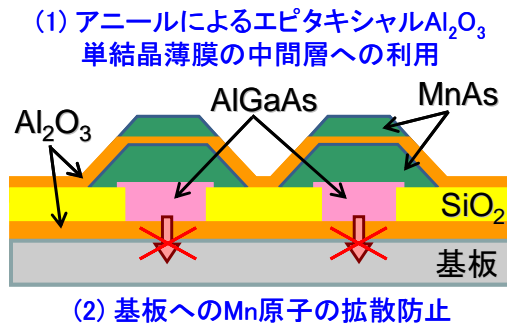


図9 Al_2O_3 絶縁膜を用いた代替案の検討

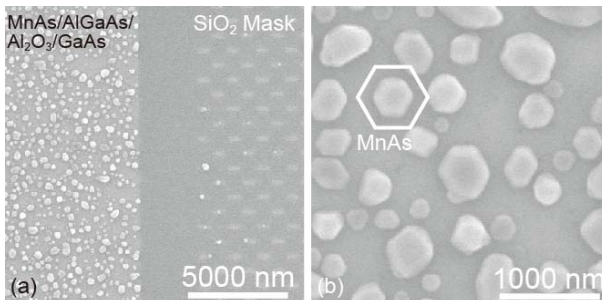


図10 熱処理した Al_2O_3 薄膜上のMnAs成長：(a) マスク境界付近・(b) マスク外領域の拡大SEM像

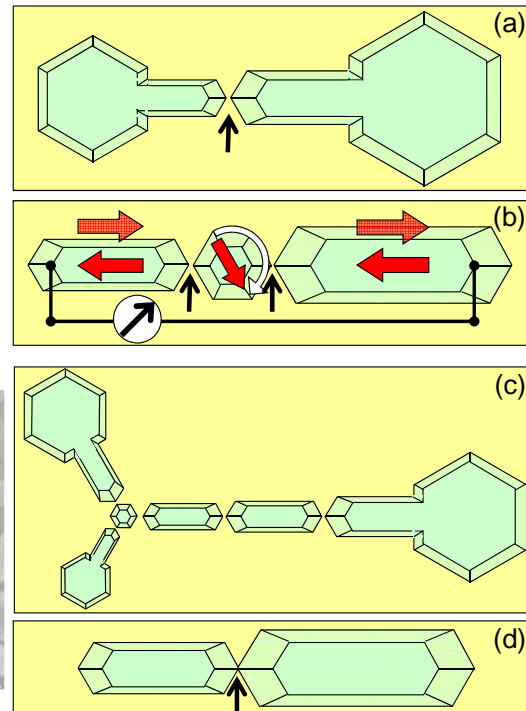


図11 横方向磁気抵抗素子構造の検討

配列の設計により磁気物性を制御する新しい平面型磁気ナノエレクトロニクスへ展開(研究協力先との共同研究提案)を計画している。

4. 自己評価

本研究では、(1) 作製技術の確立、(2) 基礎物性評価、さらに、(3) 基本論理素子応用の一例として XOR 素子の試作までを目標にしていたが、研究の当初計画という点では、目標を大きく下回ったと言わざるを得ない。その主な原因として、作製技術をゼロから確立する過程で様々な課題が生じ、解決策の探索・代替案の検討などに多くの時間を割かれたことが挙げられる。(a) As 原料ガスの供給が無い状況下でさえ、Mn 原子が下地の GaAs 層内で MnAs ナノクラスタとして単結晶化する「エンドタキシ」という現象に見られるように、極めて反応性の高い Mn 原子が GaAs (111)B ウェハに拡散し、磁気抵抗素子のリーク電流の原因となってしまうこと、また Si (111)と反応し MnSi 化合物(Mn シリサイド)を形成してしまうこと、(b) 実現した六方晶 MnAs ナノクラスタ表面が原子レベルで極めて平坦であることに起因しているかもしれないが、化合物半導体(GaAs, AlGaAs 等)ナノピラーバッファ上の MnAs ナノクラスタ作製は容易だが、その上にさらに化合物半導体(GaAs, AlGaAs, AlAs 等)中間層を積層し、縦方向強磁性体/半導体ダブルヘテロ接合ナノクラスタ(MnAs/AlAs/MnAs 等)を作製することが極めて困難であることは、未だ解決していない、あるいは、代替案による回避を未だ実現できていない課題であり、今後の素子試作にとって極めて重要な課題である。

また、さきがけ研究費の使途として、結晶構造や固相組成等の詳細な分析を専門とする外部業者に依頼する分析費や、原料ガス・半導体ウェハ等多くの消耗品を含め、キーとなる結晶成長装置関連の物品に多くの研究費を割かざるを得なかった。しかし例えば、研究期間全体を通じて研究実施を補助する非常勤技術者、あるいはポストクの雇用に人件費を割くことにより、所属研究室の「学生補助者」だけではなかなか立ち行かない課題解決について、もっと早い時期から継続して検討・対応することが、目標達成に有効だったのではないかと反省している。

最後に、領域アドバイザーの先生方からも折に触れて指摘された課題であるが、作製技術の課題を全てクリアして所望の素子を試作したとして、(1) それがどの程度、社会にインパクトのある素子なのか、(2) どのように現在の Si-CMOS 技術を置き換えることができるのか、という今後に向けた重要な研究の視点を十分検討できなかった。個人研究であるさきがけ研究としては手に余る難題ではあるが、常にこのような視点を持って研究を進めるべきだということをご指導頂いたことは、今後来るべき大型プロジェクトの研究提案に向け極めて有用であり、非常にありがたいと感じる。

以上挙げたような反省点はあるが、次の点で本研究テーマによる技術開発は評価できると感じている。

- (1) 横方向ナノ磁気抵抗素子の選択形成技術の開発: GaAs(111)B および Si(111)ウェハ上への形成位置・サイズ制御や、開口パターンのドライエッチング技術と AlGaAs ナノピラーバッファ層の導入による高均一 MnAs ナノクラスタの選択形成
- (2) ナノデバイスプロセス技術、主に、横方向磁気抵抗素子作製プロセス技術の開発: ナノ構造のサイズや位置を制御可能な新しいビルドアップ型手法や、格子不整合系や異なる結晶系の異種材料接合ナノ構造を半導体ウェハ上に集積可能な作製技術の提供
- (3) 当初計画とは異なるが、新たな磁気抵抗デバイス応用の提案: 半導体ウェハ上の選択形成技術と結晶ファセットの特長を活かした、ナノクラスタの横方向多段連結によるナノコンタクト構造・レーストラックメモリ構造等への応用や、研究協力先(次項(4))と検討中の共同研究・技術展開として、強磁性体ナノ構造の周期配列設計により磁気物性を制御する新しい平面型磁気ナノエレクトロニクスへの展開
- (4) 研究協力先との国際研究交流の発展: 研究期間を通じて、ドイツの研究機関(主に、ギーゼン大学・Peter J. Klar 教授ら)との研究協力をさらに発展させ成果を上げる共に(下記「7. (3)その他」の欄、参照)、所属研究センターにおけるドイツ人大学院学生の研究滞在(JSPS 外国人特別研究員(欧米短期)事業 2009年1月19日~4月18日)や、博士研究員の雇用(非常勤研究員 2011年3月7日~)といった国際研究交流を

積極的に展開

5. 研究総括の見解

独自に開発してきた強磁性体MnAs ナノ構造の有機金属気相選択成長法により、従来のトップダウン型微細加工技術では困難であった、結晶軸が揃った強磁性体/半導体ヘテロ接合構造を、リソグラフィ技術を駆使して、ナノメートル領域で任意の位置に形成できるビルドアップ型作製技術の確立を目指した。その結果、横方向ナノ磁気抵抗素子に向けた高均一ナノクラスタ列の形成技術では、熱的により安定なAlGaAsを用いたナノピラーバッファ層の導入を検討することで、サイズ均一性の高い等方性MnAs のナノクラスタ列が形成できることを確認した。しかし引き続きMOVPE選択成長により、ナノクラスタ間のギャップを非磁性層であるAlAs半導体薄膜の埋め込にはさらなる検討が必要なため、代替構造であるSiO₂絶縁膜によるトンネル障壁層による検討を進めプロトタイプ素子構造を試作できるレベルに至った。縦方向ナノ磁気抵抗素子への開発では、MnAs/AlAs/MnAs(GMR)素子構造の試作を目指し、AlGaAsナノピラーバッファ層を用いて積層ナノクラスタ構造の作製を行ったが、「エンドタキシ(Endotaxy)」なる下地結晶成長効果が発現することが判明し、下部MnAs層のないMnAs/AlAs/AlGaAs積層構造が形成されることで、目標構造の作製は現状困難となり、代替構造等のさらなる検討が必要となった。他方、MnAsナノクラスタの基礎的な磁化方向制御の検討を進め、単磁区化では、正六角形の等方的形状を持つMnAs ナノクラスタではなく、磁化容易軸(a軸)のうちの1方向に長軸を持つ形状異方性ナノクラスタ構造の導入が必要不可欠であることを明らかにし、さらに外部磁場方向に依存してナノクラスタが磁化方向に反転する基本動作を確認した。以上の結果は、当初目標の実現には到達しなかったものの、研究者の必死のさがけ研究努力により、ビルドアップ型結晶成長形成技術に関する課題や問題解明などの多くの要素が抽出され、本課題の難易度の大きさが改めて判明し、さらなる研究課題への果敢な挑戦や別手法による問題解決のアプローチなど、さがけ研究者に相応しい前向きな研究姿勢には一定の評価を与えたい。またMnAsナノクラスタの基礎的な磁気物性評価では、今後の展開に向けての有用な基礎的成果が得られたと考える。

6. 主要な研究成果リスト

(1)論文(原著論文)発表

1. T. Wakatsuki, S. Hara, S. Ito, D. Kawamura, and T. Fukui, "Growth Direction Control of Ferromagnetic MnAs Grown by Selective-Area Metal-Organic Vapor Phase Epitaxy", Japanese Journal of Applied Physics, Vol. 48, No. 4, pp. 04C137-1 - 04C137-5 (2009)
2. S. Ito, S. Hara, T. Wakatsuki, and T. Fukui, "Magnetic domain characterizations of anisotropic-shaped MnAs nanoclusters position-controlled by selective-area metal-organic vapor phase epitaxy", Applied Physics Letters, Vol. 94, No. 24, pp. 243117-1 - 243117-3 (2009)
3. K. Komagata, S. Hara, S. Ito, and T. Fukui, "Ferromagnetic MnAs Nanocluster Composites Position-Controlled on GaAs (111)B Substrates toward Lateral Magneto-Resistive Devices", Japanese Journal of Applied Physics, *in press* (2010)

(2)特許出願

研究期間累積件数: 0 件

(3)その他(主要な学会発表、受賞、著作物等)

主要な国際会議発表

1. S. Hara, H. Iguchi, and T. Fukui, “Endotaxial Nanoclustering of Ferromagnetic MnAs in Lattice-Mismatched Semiconductor Layers during Metal-Organic Vapor Phase Epitaxy”, The 2008 International Conference on Electronic Materials (ICEM 2008), 28 July – 1 August 2008, Sydney, Australia (2008.07.29 口頭発表)
2. S. Hara, S. Ito, T. Wakatsuki, and T. Fukui, “Magnetic Anisotropy in Position-Controllable MnAs Nanoclusters on Semiconductor Substrates by Selective-Area Metal-Organic Vapor Phase Epitaxy”, The 2009 International Conference on Magnetism (ICM 2009), 26 – 31 July 2009, Karlsruhe, Germany (2009.07.28 ポスター発表)
3. K. Morita, S. Hara, S. Ito, and T. Fukui, “Structural Characterizations of MnAs Nanoclusters Formed on Si (111) Substrates by Selective-Area MOVPE”, The 22nd International Microprocesses and Nanotechnology Conference (MNC 2009), 16 – 19 November 2009, Sapporo, Japan (2009.11.18 口頭発表)
4. S. Hara, S. Ito, K. Morita, K. Komagata, and T. Fukui, “Ordered Planar Arrangements of MnAs Nanoclusters by Selective-Area Metal-Organic Vapor Phase Epitaxy for Lateral Magneto-Resistive Devices”, The 15th International Conference on Metal-Organic Vapor Phase Epitaxy (ICMOVPE-XV), 23 – 28 May 2010, Incline Village, Nevada, USA (2010.05.27 口頭発表)
5. K. Komagata, S. Hara, S. Ito, and T. Fukui, “Selective-Area Growth and Characterization of MnAs Nanocluster Composites for Lateral Magneto-Resistive Device Applications”, The 2010 Materials Research Society (MRS) Fall Meeting, 29 November – 3 December 2010, Boston, Massachusetts, USA (2010.12.03 口頭発表)

本さきがけ研究に関連する原著論文

1. M. T. Elm, C. Michel, J. Stehr, D. M. Hofmann, P. J. Klar, S. Ito, S. Hara, and H.-A. Krug von Nidda, “Comparison of the magnetic properties of GaInAs/MnAs and GaAs/MnAs hybrids with random and ordered arrangements of MnAs nanoclusters”, Journal of Applied Physics, Vol. 107, No. 1, pp. 013701-1 – 013701-5 (2010)
2. C. Heiliger, M. Czerner, P. J. Klar, and S. Hara, “Magnetic Sensor Devices Based on Ordered Planar Arrangements of MnAs Nanocluster”, IEEE Transactions on Magnetics, Vol. 46, No. 6, pp. 1702 –1704 (2010)

以上