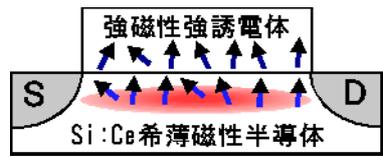


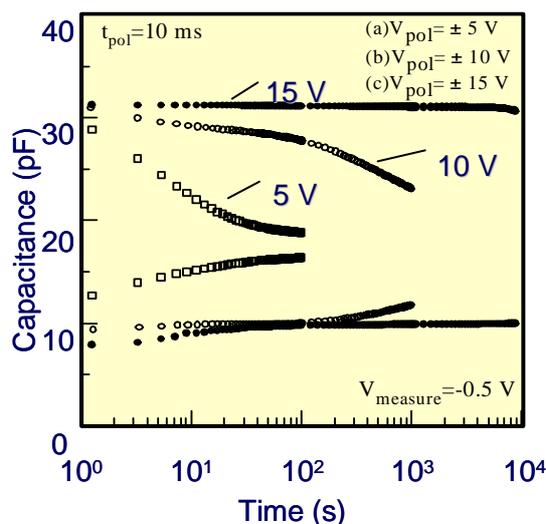
平成 16 年度科学研究費補助金 (基盤研究 (S)) 研究状況報告書

ふりがな		ふじむら のりふみ		所属研究機関・部局・職		大阪府立大学・大学院工学研究科・教授	
研究代表者氏名		藤村 紀文					
研究課題名	和文	強磁性を有する強誘電体と Si 系希薄磁性半導体の接合を用いた新規な電界効果型素子					
	英文	Novel Field Effect Transistors using the Interface between Ferromagnetic-Ferroelectrics and Si based Magnetic Semiconductors					
研究経費	平成14年度	平成15年度	平成16年度	平成17年度	平成18年度	総合計	
16年度以降は内約額 金額単位：千円	12,500	36,900	15,400	7,100	5,800	77,700	
研究組織 (研究代表者及び研究分担者)							
氏名	所属研究機関・部局・職	現在の専門	役割分担 (研究実施計画に対する分担事項)				
藤村 紀文	大阪府立大学・大学院工学研究科・教授	固体物性	総括、界面バンド理論構築、誘電特性の解析、磁性と誘電性の相関、デバイス設計・試作 薄膜成長、磁気特性評価、構造解析、新規な磁性強誘電体の開発 誘電測定、磁気輸送特性評価、パルス電界測定法の確立、輸送測定、デバイス作成 トランジスタの作製と評価(強誘電体ゲートトランジスタの物性評価に関して経験豊かな研究者を加えることによって着実に研究を進めることができるため)				
松井 利之	大阪府立大学・大学院工学研究科・助教	材料物性、磁性					
芦田 淳	大阪府立大学・大学院工学研究科・助手	電子物性					
(吉村 武)	大阪府立大学・大学院工学研究科・日本学術振興会・特別研究員(PD)	強誘電体デバイス					
当初の研究目的 (交付申請書に記載した研究目的を簡潔に記入してください。)							
<p>磁性を有する強誘電体の電界効果スピン制御によって Si 系希薄磁性半導体のスピンを制御し、ソースドレイン間電流の変調や、メモリー効果が付加された新しい発想の Si トランジスタの基礎動作確認とそのデバイス化に向けた研究。</p>							
<p>研究代表者によって提唱された反強磁性強誘電体 YMnO_3 を用いた強誘電体ゲートトランジスタを基軸とし、同様に研究代表者によって開発された Si 系磁性半導体 Si:Ce をチャンネル層に用いた新規な電界効果型トランジスタを開発する。</p>							
<p>スピン FET と強誘電体 FET の特徴を併せ持ち、欠点を補い合う新規な素子が期待されるが、この素子に向けて最適な強誘電体物質や Si 系希薄磁性半導体の物質設計・開発が必要である。また、両者の接合界面の物理、磁性を有する強誘電体の電界効果やその半導体キャリア輸送に及ぼす影響などの基礎物性を把握することも重要な目的である。</p>						<p>本デバイスの特徴</p> <p>電界効果型 スピントランジスタ 非破壊読み出し不揮発性メモリー ビットを 1 トランジスタで形成 シナプス結合の重み付けを蓄積</p>	

これまでの研究経過（研究の進捗状況について、必要に応じて図表等を用いながら、具体的に記入してください。）

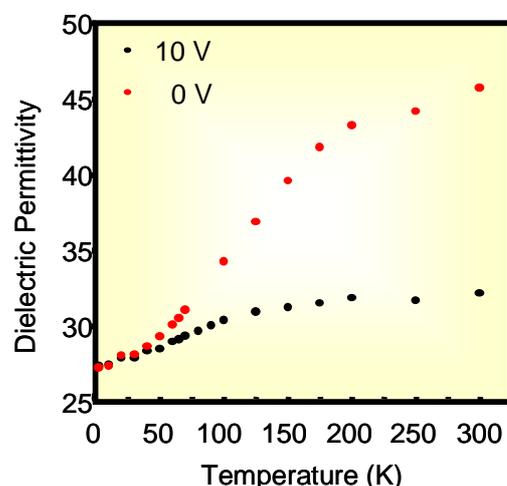
1) YMnO₃ を用いた強誘電体ゲートトランジスタの開発

磁性強誘電体 YMnO₃ を用いた強誘電体ゲートトランジスタの最大の問題点である記憶保持特性に関して、実験と計算を用いて様々な検討を行った。強誘電体に印可される電界と強誘電性分極によって生じる反電界との関係を計算によって明らかにし、我々が提唱している YMnO₃/Y₂O₃/Si が長い記憶保持特性を得るために有利な構造であることを明らかにした。また、強誘電体の分極の状態が記憶保持特性に及ぼす影響を実験的に明らかにするとともに、一万秒程度の保持特性を得ることに成功した。（右図上）さらにリーク電流は記憶消失に関して重要であることが指摘されていたものの、その機構が不明であったが長い保持特性を有する試料を用いて意図的にリーク電流を変化させ、メモリー保持時の分極電荷がリーク電流によって生じた固定電荷によって相殺されていることがわかった。これらの結果は、より長い記憶保持特性を得るための指針を与えた。



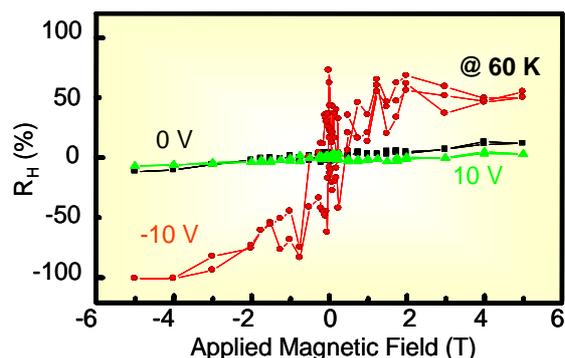
2) YMnO₃ の磁性 誘電性相関

反強磁性強誘電体である YMnO₃ の A サイトを Yb に置換することによって、強磁性強誘電体を得られることが明らかになった。強磁性強誘電体はこれまでに 2、3 例しか見いだされておらず興味深い。また、外部電場で磁気抵抗が変化する、外部磁場で誘電率が変化することも明らかになった。これらも非常に新規な現象であるが、デバイス上最も興味深い結果は、ネール点近傍で双極子分極反転が抑制されていることであろう。（右図中）これらはメモリー書き込み時に抗電界を小さくして書き込み電力を節約し、保持時に抗電界を大きくし保持時間を長くするデバイスが作成可能であることを示唆している。



3) Si:Ce 薄膜の磁気輸送特性

Si の固体ソースを用いた K-セルを独自に開発し、Si:Ce 薄膜を作製することに特化した MBE 装置を試作した。その結果 300°C においても Si:Ce 薄膜がエピタキシャル成長することを確認した。Ce 濃度を大きくすることが困難であるために明瞭なヒステリシスは得られないもののスピングラス的な挙動はほとんどすべての試料で得られる。また、ホールドーピングによって正の磁気相関が強められることも明らかになった。さらに、Si/SiO₂ を用いて MOS キャパシタを作製し、蓄積側（ホール誘起）においてのみ異常ホール効果が確認された。（右図下）



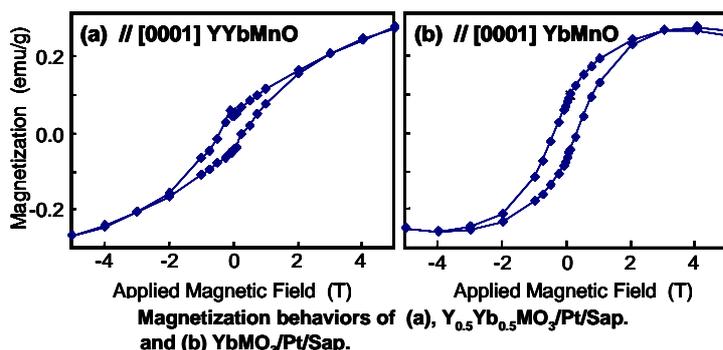
4) デバイス化への取り組み

YMnO₃/Y₂O₃/Si をゲートとするゲートラスタ FET の試作を行った。すべてのプロセス条件が明らかになってきて FET の作製は問題なく行うことができることがわかった。現状では YMnO₃ のエッチング条件にばらつきがあり良好な FET 特性を得るには至っていないものの、YMnO₃/Y₂O₃/Si ゲートであれば問題はなさそうである。SiO₂/Si:Ce/Si MOS キャパシタの作製に成功したが、最終目的である YMnO₃ をゲートとして用いるためには、エピタキシャルゲートが必要である。昨年度 Y₂O₃/Si:Ce/Si エピタキシャル MOS キャパシタの作製に成功し研究は大きく進んだ。

特記事項 (これまでの研究において得られた、独創性・新規性を格段に発展させる結果あるいは可能性、新たな知見、学問的・学術的なインパクト等特記すべき事項があれば記入してください。)

1) YbMnO₃ の強磁性強誘電性

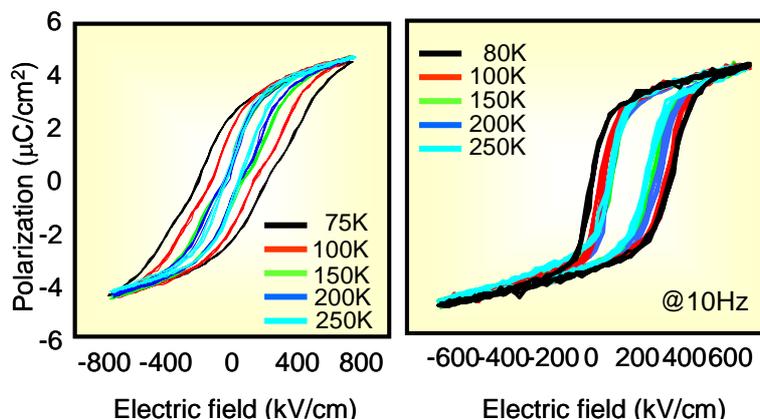
YMnO₃ の A サイトを Yb と一部置換することによって時期構造を変化させることを試みた。YMnO₃ と同じ成長条件で組成の異なる 4 種類の Y_{1-x}Yb_xMnO₃ を作成した。その結果右図のように 10K 以下ではあるものの強磁性へと変化することがわかった。強誘電性は YMnO₃ と同様室温でも観察されており、世界的にもほとんど例のない強磁性強誘電性が確認された。



2) YMnO₃ の磁性 誘電性相関

YMnO₃ の磁気抵抗が外部電場で変化すること、誘電率が外部磁場で変化することが明らかになった。これらの詳細は不明であるが現在のところ強誘電性に格子の影響が大きいこの物質の特徴であると考えている。転移点を室温近傍まで増加させる必要があるが、デバイス応用上非常に興味深い結果である。

さらに興味深い結果として強誘電性分極反転が磁気整列によって抑制されているという極めて新規な現象も確認された。右図左はこれまでに得られていた試料を用いて低温で分極反転挙動を観察した結果である。

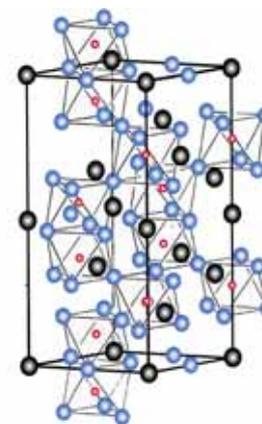


150K 以下で抗電界が大きく増加しはじめる。150K はネール点よりも 80K も高い温度である。磁気特性と合わせて考察した結果、室温近傍では完全にランダムな常磁性であるが、150K 近傍より Mn スピンが C 面内に寝た状態が形成し、C 面内では三角格子反強磁性を形成する前駆現象としてフラストレーションが生じているものと推測される。この状態のスピン相互作用によって強誘電体の分極反転が抑制され、抗電界が増加したものと考えられる。上図右は昨年度本研究助成によって独自に開発された PLD 装置を用いて作成した試料の P-E ヒステリシスである。成長温度が 60°C も低いにもかかわらず角形性が大幅に向上している。ネール点近傍の抗電界の変化は同様である。

これらの結果はメモリー書き込み時に抗電界を小さくして書き込み電力を節約し、保持時に抗電界を大きくし保持時間を長くするデバイスが作成可能であることを示唆している。

3) 新奇な強磁性誘電体の開発

BaFeO₃ は SrFeO₃ と同じく Fe の価数によって六方晶と立方晶の結晶構造が確認されている。しかしながら BaFeO₃ の誘電特性に関する報告例はない。これは Fe³⁺ に起因する酸素欠損によって誘電特性の評価が困難であることが大きな要因であると思われる。一方、その磁性に関しては、フェリ磁性を有することが確認されている。この BaFeO₃ をオゾン雰囲気下で PLD 成長させたところ、(111)および(100)SrTiO₃ 基板上にエピタキシャル成長することに成功した。(Fig. 6) TED 観察の結果、(111)BFO は六方晶、(001)BFO は立方晶であることが示唆された。その室温における磁化特性を Fig.7 に示す。(111)、(001)どちらのエピタキシャル膜も室温で強磁性的であることが確認された。



Crystal Structure for hexagonal BaFeO₃

4) Si:Ce 薄膜の磁気輸送特性

SiO₂/Si を用いて MOS キャパシタを作製し、蓄積側 (ホール誘起) においてのみ異常ホール効果が確認された。さらに Y₂O₃/Si エピタキシャルキャパシタの作製にも成功した。

研究成果の発表状況 (この研究費による成果の発表に限り、学術誌等に発表した論文(発表予定のものを記入することも可能。)の全著者名、論文名、学協会誌名、巻(号)、最初と最後のページ、発表年(西暦)、及び国際会議、学会等における発表状況について記入してください。)

- 1) N. Fujimura, A. Ashida, T. Yoshimura and H. Sakata, Anomaly in Ferroelectric Properties of YMnO_3 at around Neel Temperature. *Phys. Rev. Lett.* (in preparation)
- 2) N. Fujimura, A. Ashida, T. Yokota, S. Hamasaki and Y. Yoshimizu, Anomalous Hall Effect of Si:Ce thin Films in MOS Capacitor, *Applied Physics Lett.* (in preparation)
- 3) T. Matsui, E. Taketani, N. Fujimura and K. Morii, Effect of Oxygen Deficiencies on Magnetic Properties of Epitaxially Grown BaFeO_3 Thin Films on (100) SrTiO_3 Substrates. *IEEE Trans. Mag.*, in press, (2004)
- 4) T. Yoshimura and N. Fujimura, Polarization Hysteresis Loops of Ferroelectric Gate Capacitors and the Dependence of the Capacitance for the Insulator Layer, *Jpn J. Appl. Phys.* 42 6011-6014 (2003)
- 5) H. Sakata, D. Ito, T. Yoshimura, A. Ashida and N. Fujimura Improvement of Surface Morphology and the Dielectric Property of YMnO_3 Films, *Jpn J. Appl. Phys.* 42 6003-6006 (2003)
- 6) D. Ito, N. Fujimura, T. Yoshimura and T. Ito Influence of Schottky and Poole-Frenkel emission on the retention property of YMnO_3 based Metal/Ferroelectric/Insulator/Semiconductor capacitors *Journal of Applied Physics*, 94 4036-4041 (2003)
- 7) T. Yokota, N. Fujimura, T. Wada, S. Hamasaki, and T. Ito The Effect of Carrier for Magnetic and Magneto-transport Properties of Si:Ce Films, *Journal of Applied Physics*, 93 7679-7681 (2003)
- 8) T. Eda, N. Fujimura and T. Ito Formation of Two-Dimensional Electron Gas and the Magneto-Transport Behavior of ZnMnO/ZnO Heterostructure, *Journal of Applied Physics*, 93 7673-7675 (2003)
- 9) T. Matsui, E. Taketani, N. Fujimura, T. Ito and K. Morii, Magnetic Properties of Highly Resistive BaFeO_3 Thin Films Epitaxially Grown on SrTiO_3 Single Crystal Substrates, *Journal of Applied Physics*, 93 6993-6995 (2003)
- 10) N. Fujimura, D. Ito, H. Sakata, T. Yoshimura, T. Yokota, and T. Ito, Ferromagnetic and Ferroelectric Behaviors of A Site Substituted YMnO_3 Based Epitaxial Thin Films. *Journal of Applied Physics*, 93 6990-6992 (2003)
- 11) D. Ito, N. Fujimura, T. Yoshimura and T. Ito, Ferroelectric properties of YMnO_3 epitaxial films for ferroelectric-gate field effect transistors *Journal of Applied Physics*, 93 5563-5567 (2003)
- 12) T. Matsui, H. Tanaka, E. Taketani, N. Fujimura, T. Ito and K. Morii Magnetic and Dielectric Properties of Epitaxially Grown BaFeO_3 Thin Films on SrTiO_3 Single Crystal Substrates, *J. Korean Phys. Soc.* 42 S1378-S138 (2003)
- 13) T. Yokota, N. Fujimura and T. Ito Magnetic and Magneto-transport Properties of Solid Phase Epitaxially Grown Si:Ce Films. *Journal of Applied Physics*, 93 4045-4048 (2003)
- 14) D. Ito, N. Fujimura, T. Ito, The effect of leakage current on the retention property of YMnO_3 based MFIS capacitor, *Integrated Ferroelectrics*, 49 41-49 (2002)
- 15) T. Yokota, N. Fujimura, T. Wada, S. Hamasaki and T. Ito, Effect of Substitutionally Dissolved Ce in Si on the Magnetic and Electric Properties of Magnetic Semiconductor: $\text{Si}_{1-x}\text{Ce}_x$ Films *Applied Phys. Letters.*, 81 4023-4025 (2002)
- 16) T. Nagata, A. Ashida, Y. Takagi, N. Fujimura and T. Ito, Electro-optic Effect in Epitaxial $\text{ZnO}:\text{Mn}$ Thin Films, *Japanese Journal of Applied Physics*, 6916-6918 41(2002)
- 17) T. Matsui, Y. Kitano, N. Fujimura, K. Morii and T. Ito, Crystal Growth and Interface Characterization of Dielectric BaZrO_3 Thin Films on Si Substrates, *Japanese Journal of Applied Physics*, 41 6639-6642 (2002)
- 18) T. Matsui, H. Tanaka, N. Fujimura, T. Ito, H. Mabuchi and K. Morii. Structural, Dielectric and Magnetic Properties of Epitaxially Grown BaFeO_3 Thin Films on (100) SrTiO_3 Single-crystal Substrates, *Applied Physics Letters*, 81 2764-2766(2002)
- 19) T. Yokota, N. Fujimura, T. Wada, S. Hamasaki and T. Ito, Ce Concentration Dependence on the Magnetic and Transport Properties of Ce Doped Si Epitaxial Films Prepared by Molecular Beam Epitaxy, *Journal of Applied Physics*, 91 10 7905-7907 (2002)
- 20) Y. Kitano, T. Matsui, N. Fujimura, K. Morii and T. Ito Thin Film Crystal Growth of BaZrO_3 at Low Oxygen Partial Pressure, *Journal of Crystal Growth*, 243 (1), 164-169 (2002)
- 21) K. Kakuno, D. Ito, N. Fujimura, T. Matsui, T. Ito, Growth Process and Interfacial Structure of Epitaxial $\text{Y}_2\text{O}_3/\text{Si}$ Thin Films Deposited by Pulsed Laser Deposition, *Journal of Crystal Growth*, 237 487-491 (2002)
- 22) D. Ito, N. Fujimura, K. Kakuno and T. Ito, Retention Property Analysis of Epitaxially Grown $\text{YMnO}_3/\text{Y}_2\text{O}_3/\text{Si}$ Capacitor *Ferroelectrics*, 271 87-92 (2002)
- 23) T. Matsui, H. Tsuda, H. Mabuchi and K. Morii, Fabrication and Structural Control of Nano-structured Thin Films by Solid-state Reaction of Compositionally Modulated Multilayers, *Journal of Crystal Growth*, vol. 237-239p3, pp. 1946-1950, (2002)

藤村 紀文 (研究代表者) 講演分

2002年度 国内招待および依頼講演 8 件 国際会議講演 2 件 (招待講演 1件)

2003年度 国内招待および依頼講演 10 件 国際会議講演 8 件 (招待講演 2件)