

■トピックス

MOEICへの一歩

一原子状水素の援用による高品質磁性薄膜のエピタキシャル成長—

東京農工大学工学部電子情報工学科 森下 義隆・佐藤 勝昭

半導体と強磁性体を組み合わせた磁気光電子集積回路 (Magneto-Opto-electronic Integrated Circuits, MOEIC) の開発を目指して、我々はこれまで MnAs や MnSb 薄膜の GaAs 基板上へのホットウォールエピタキシーおよび分子線エピタキシー成長を行ってきた。ここでは、これらのエピタキシャル成長法における原子状水素の援用効果について紹介する。

はじめに

半導体と磁性体はこれまで独自のものとして取り扱われ、それぞれトランジスタや半導体レーザなどの半導体デバイス、ハードディスクや光磁気ディスクなどの磁気デバイスに応用されてきた。しかし、磁性体／半導体から成る高品質のハイブリッド構造が作製されると、材料的に興味があるばかりでなく、材料設計の自由度が広がり、従来の半導体または磁性体のみで得られなかつた新しい機能を持つデバイスの実現が期待される。例えば、半導体電子回路に不揮発性磁気メモリを組み込んだデバイスや、半導体レーザとファラデー効果を利用した光アイソレータを集積化したデバイス、光スイッチ・変調器など、半導体と磁性体の 2 つの特徴を組み合わせた磁気光電子集積回路 (Magneto-Opto-electronic Integrated Circuits, MOEIC) に展開する可能性がある。

これまで、磁性体／半導体などの結晶構造、化学結合、電子状態の異なる材料を組み合わせたヘテロ構造の作製は極めて困難であった。しかし、分子線エピタキシ法 (Molecular Beam Epitaxy, MBE) や有機金属気相成長法 (Metalorganic Chemical Vapor Deposition, MOCVD) などの薄膜形成技術の著しい進展により、近年 MnGa, MnAs や MnSb などの Mn 族金属間化合物の GaAs 基板上へのエピタキシャル成長が可能となった。我々も、これまでに MnAs および MnSb 薄膜をホットウォールエピタキシー (Hot-Wall Epitaxy, HWE) 法や MBE 法により GaAs 基板上にエピタキシャル成長することに成功し、これらの薄膜について磁気光学スペクトルを測定してきた。しかしながら、得られた薄膜には 3 次元島が多く見られ、デバイス構造に要求される平坦性の点に問題があった。そこで我々は、この点の改善のために、格子不整合系 III-V 族化合物半導体の MBE 成長において表面平坦性の向上に著しい効果のあることが知られている原子状水素 ($H\cdot$) の導入を試みた。本稿では、それぞれのエピタキシャル成長法において、 $H\cdot$ 援用により成長膜の平坦性が著しく改善されたことと、これによって磁気光学スペクトルがどのように変化したかについて述べる。

原子状水素の生成^{[1]-[3]}

$H\cdot$ は、PBN または Al_2O_3 管内の $1600^{\circ}C$ に加熱された W フィラメントを反応触媒として用い、純 H_2 分子を流すことによって生成した。このときの H_2 から $H\cdot$ への解離効率は 2 % 程度と非常に少ないことが知られているが、それにもかかわらず基板清浄の低温化や 2 次元成長の促進など著しい効果があることが知られている。

MnSb 薄膜の原子状水素援用 HWE 成長^{[4]-[6]}

基板には GaAs(001) を用い、HWE 装置内において基板温度 $430^{\circ}C \pm 1 \times 10^{-5}$ Torr の $H\cdot$ を 15 分照射して酸化膜の除去を行った。成長は、原料に MnSb 多結晶粉末を用い、原料側温度 $700^{\circ}C$ 、基板側温度 $350^{\circ}C$ 、成長レート 0.1 \AA/s 一定として、①水素照射なし、② H_2 照射 (1×10^{-5} Torr)、③ $H\cdot$ 照射 (1×10^{-5} Torr) の 3 条件下で行った。

成長膜は水素の照射の有無にかかわらず約 1500 \AA の膜厚であった。また、X 線回折 (XRD) の測定の結果、いずれの条件下でも NiAs タイプの結晶構造を持つ MnSb(1101) がエピタキシャル成長していることが分かった。

次に $H\cdot$ 援用の効果を調べるために、原子間力顕微鏡 (Atomic Force Microscope, AFM) を用いて、それぞれの条件下で成長した薄膜の表面モルフォロジーを比較した。水素照射なしの場合には図 1(a) に示すように 3 次元島が観察され、走査範囲 $10 \times 10 \mu\text{m}$

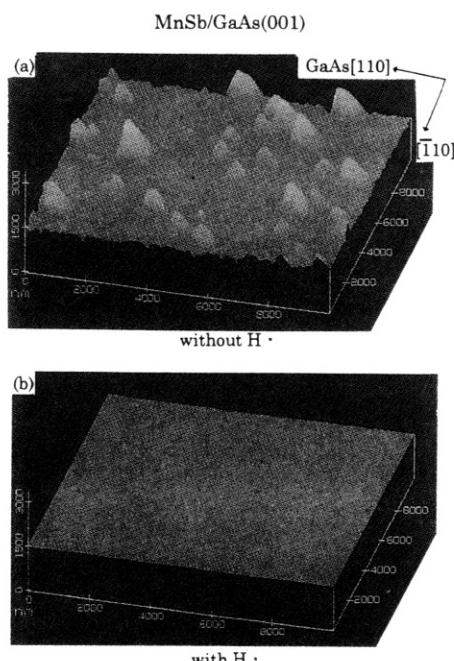


Fig. 1 : AFM images of MnSb films grown on GaAs(001) substrates by HWE (a) without the supply of $H\cdot$ and (b) with the supply of $H\cdot$.

μm^2 にわたる自乗平均平方根 (RMS) 粗さは1530 Åであることが分かった。成長時に H_2 を導入した薄膜も同様の表面モルフォロジーとRMS粗さの値が得られた。このことはHWE成長の場合、 H_2 分子は表面に何ら影響を与えないことを示している。

これとは対照的に、 $\text{H}\cdot$ を照射した場合(図1(b))、成長膜表面の平坦性が大幅に向かっていることが分かる。RMS粗さは44 Åとなり、約35倍もの改善が得られた。このような大幅な改善の原因として、詳細は省くが、格子不整合系III-V族化合物半導体のMBE成長の場合と同様に、水素がサーファクタントとして働いたと考えることができる。すなわち、原子状水素あるいは吸着原子と反応した原子状水素種が薄膜表面に吸着し、この物質が強い表面偏析を生じて成長膜表面を覆いサーファクタントとして機能し、3次元成長を抑制したと考えられる。

次に、薄膜の磁気光学特性におよぼす $\text{H}\cdot$ 接用効果を調べるために、極Kerr効果を測定した。その結果、極Kerr回転角、極Kerr権円率のスペクトルのどちらも、原子状水素の導入により構造が明瞭になった。また、スペクトルには明確な面方位依存性が見られた。これは、原子状水素の導入により結晶性が向上したことによるものである。

MnAs薄膜の原子状水素接用MBE成長^(6,7)

基板にはGaAs(001)を用い、MBE装置内において基板温度450°Cで 4×10^{-6} Torrの $\text{H}\cdot$ を10分照射して酸化膜の除去を行った後、GaAsバッファ層を基板温度600°C、Asフラックス 8×10^{-6} Torr、成長レート0.2ML/sの条件で約700 Å成長した。その後、基板温度250°C、Mnフラックス 8×10^{-8} Torr、Asフラックス 4×10^{-6} Torr一定として、①水素照射なし、② H_2 照射(2×10^{-6} Torr)、③ $\text{H}\cdot$ 照射(2×10^{-6} Torr)の3条件下でMnAsの成長を行った。成長膜の膜厚は5000~6000 Åで、 $\text{H}\cdot$ を照射した場合は膜厚が薄くなかった。

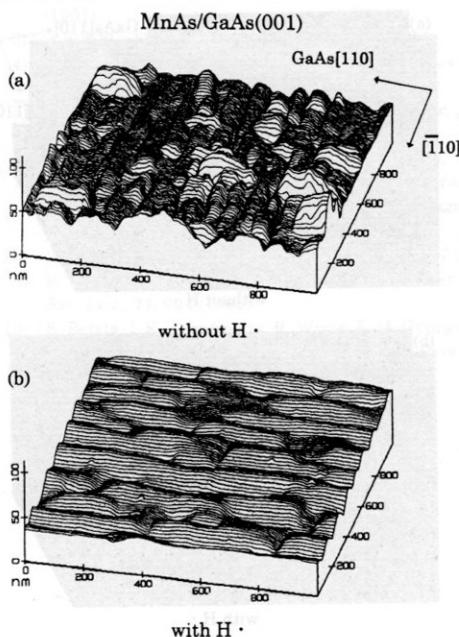


Fig. 2 : AFM images of MnAs films grown on GaAs(001) substrates by MBE (a) without the supply of $\text{H}\cdot$ and (b) with the supply of $\text{H}\cdot$.

成長中に水素の照射をしない薄膜、および H_2 を照射した薄膜のXRDスペクトルには、MnAs(I100)とMnAs(I101)のピークが観測されたが、成長中に $\text{H}\cdot$ を照射した薄膜にはMnAs(I100)のみが観測された。

成長中に水素の照射をしない薄膜のAFMは、図2(a)に示すように、GaAs[I10]方向に沿ったうねりと大きな3次元成長島が観察された。成長時に H_2 を導入した薄膜も同様の表面モルフォロジーが得られた。このことは、HWE成長の場合と同様に、 H_2 分子は表面に何ら影響を与えないことを示している。

一方、 $\text{H}\cdot$ を照射した場合は、大きな3次元成長島は見られず、成長膜表面の平坦性が大幅に向かっていることが分かる。また、うねりの方向が 90° 変化しGaAs[110]方向に沿い、かつこのうねりの斜面には(2201)のファセット面が現れていることが分かった。このような表面モルフォロジーの大幅な改善は、MnSbのHWE成長の場合と同様に、水素がサーファクタントとして働いたと考えることができる。また、原子状水素の導入によりうねりの方向が変化した原因も水素サーファクタントとして働いたと考えることができる。すなわち、原子状水素あるいは吸着原子と反応した原子状水素種がGaAs[I10]方向に垂直なステップエッジ(最表面にはAsが出ている)に吸着した場合はサーファクタントとして機能し成長を抑制し、GaAs[110]方向に垂直なステップエッジ(最表面にはGaが出ている)に吸着した場合は成長を抑制しないために、うねりの方向が 90° 変化したと考えることができる。

薄膜の磁気光学特性もHWE成長の場合と同様に、極Kerr回転角、極Kerr権円率のスペクトルのどちらも、原子状水素の導入により強度が強くなり、また構造が明瞭になり、原子状水素の導入により結晶性が向上した。

ま と め

材料の性質が大きく異なる磁性体/半導体ハイブリッド構造のエピタキシャル成長において、原子状水素の導入が品質の大幅な改善をもたらすことについて紹介した。当分野はまだ萌芽的な段階ではあるが、将来、半導体と磁性体の2つの特徴を組み合わせた磁気光電子集積回路に展開される可能性があり、今後の発展が楽しみである。

Reference

- (1) T. Sugaya and M. Kawabe: *Jpn. J. Appl. Phys.*, **30**, L402(1991).
- (2) Y. Morishita, S. Goto, Y. Nomura, T. Isu and Y. Katayama: *J. Cryst. Growth*, **150**, 110(1995).
- (3) S. Ohta, Y. Okada, and M. Kawabe: *J. Cryst. Growth*, **150**, 661(1995).
- (4) H. Ikekame, Y. Yanase, T. Ishibashi, Y. Morishita, T. Saitoh and K. Sato: *J. Cryst. Growth*, in press.
- (5) 池亀 弘、秋田正恵、中村知博、橋本淳一、佐藤勝昭: 日本応用磁気学会誌、in press.
- (6) K. Sato, H. Ikekame, M. Akita and Y. Morishita: Proc. Intern. Conf. on Magnetism, Cairns, 1997.
- (7) Y. Morishita, K. Iida, A. Tsuboi, H. Taniguchi and K. Sato: Proc. 4th IUMRS Intern. Conf. in Asia, Makuhari, 1997, in press.

連絡先 :	〒184 東京都小金井市中町2-24-16 東京農工大学工学部電子情報工学科 助教授 森下義隆 電話 0423-88-7121 ファックス 0423-85-5395 電子メール morisita@cc.tuat.ac.jp
-------	--