

# フェルミ準位制御による鉄スズ薄膜フレキシブル 磁気センサーの特性向上

所属：東北大学金属材料研究所

助成対象者：藤原宏平

## 概要

モノのインターネット化に向けた技術開発の中で、磁気センサーの重要性が増している。代表者は、Fe-Sn 強磁性合金の異常ホール効果を用いたホール素子を考案し、ポリマー基板上でのフレキシブル素子動作を報告してきた。本研究では、Fe-Sn 合金とワイル半金属  $\text{Fe}_3\text{Sn}_2$  の類似性に関する考察に基づき、フェルミ準位制御の観点から、Fe-Sn 薄膜への i) 共スパッタリング法を用いた不純物ドーピングと ii) 電界効果トランジスタ構造を用いた静電キャリアドーピングにより、異常ホール効果特性の変調・向上を試みた。さらに、iii) より高度な磁場検出技術への原理応用を検討した。これらの実験を通して、Ta と In をドーピングすることによりホール素子としての感度係数を向上すると共に、Fe-Sn 薄膜の素子加工プロセスを確立することに成功した。

## abstract

Magnetic-field sensing using a Hall sensor based on the anomalous Hall effect is promising technology towards Internet-of-Things. In particular, Fe-Sn films that satisfy not only large anomalous Hall effect but also mechanical flexibility allow for the development of a flexible Hall sensor, which can open new applications in electronics. In this study, with the aim of upgrading the Hall sensor characteristics of Fe-Sn films in terms of the Fermi-level control, i) impurity doping by co-sputtering and ii) electrostatic carrier doping using a field-effect transistor structure have been attempted. Additionally, iii) other potential applications beyond the conventional Hall-sensor operation have been tested. Through the

experiments, the device fabrication process was established, and enhanced magnetic sensitivity as a Hall sensor was demonstrated at certain doping levels of Ta and In.

## 研究内容

### 背景

モノのインターネット化に向けた動きが加速する中で、安価かつ高機能な磁気センサー開発への要請が高まっている。代表的な磁気センサーであるホール素子は、半導体のホール効果を利用することで、外部磁場をホール電圧（起電力）として検出している。しかしながら、この原理では、ホール電圧が移動度に比例するため、超高純度かつ高結晶性の薄膜を高温プロセスで作製する必要がある。さらに、半導体は脆く、応力印加に弱い。そのため、フレキシブルエレクトロニクスへの融合が期待されながらもあまり進んでいない。同様の素子機能は、磁性体で生じる異常ホール効果でも実現することができる。この原理では、ホール電圧がホール角（電子軌道のねじ曲げの強さに相当）に比例するため、移動度に縛られない材料設計が可能になる。ところが、素子応用に必要な、A) 大きなホール角、B) 印加磁場に対して線形のホール電圧出力特性、C) 室温動作、D) 低温プロセス、を同時に満たす材料はこれまでに知られていなかった。代表者は、室温スパッタリング成長により作製した強磁性 Fe-Sn 合金の微結晶薄膜がこれらを満たすことを見出し（図 1）、ポリマー基板上において曲げ状態でのホール素子動作に成功した[参考文献 1, 2]。

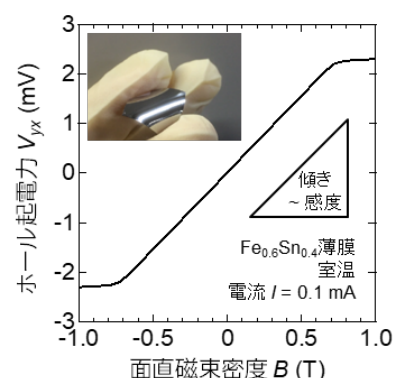


図 1. Fe-Sn 薄膜の異常ホール効果特性。0.5 T を超える高磁場まで線形応答を示す。挿入図：ポリマー基板上に形成した Fe-Sn 薄膜。

さらなる素子特性の向上を目指す上で、フェルミ準位制御に着目した。Fe-Sn 合金薄膜は、数 $\sim$ 10 nm スケールの微結晶がアモルファス中に分散した形態をもつが、種々の物性において、大きな異常ホール効果を示す  $\text{Fe}_3\text{Sn}_2$  との類似性を有する[引用文献 3]。 $\text{Fe}_3\text{Sn}_2$  の大きな異常ホール効果の起源として、Fe カゴメ格子が形成する線形分散バンドが議論されており、バンドが交差するエネルギー付近では、ベリー曲率の増大により異常ホール効果が量子化するほどに大きくなることが理論予測されている。本研究では、Fe-Sn 合金薄膜が同様のバンド構造を有するという仮説の下、i) 共スパッタリング法による不純物ドー

ピングと ii) 電界効果トランジスタ構造を用いた静電キャリアドーピングによりフェルミ準位を制御することで、異常ホール効果特性の変調・向上を試みた。さらに、iii) Fe-Sn 薄膜の特性を利用して、新たな磁場検出素子への応用を試みた。

### 1) Ta および In ドーピングによる電子状態制御

これまでの研究において、Fe-Sn 薄膜に Ta をドーピングすることで、ホール素子としての感度係数（単位磁場当たりのホール抵抗率の変化）が向上することを報告している[引用文献 2]。同様の効果は、Mo や W でも観測されたことから、これら 5*d* および 4*d* 遷移金属に共通の強いスピン軌道相互作用が電子状態に影響を与えているものと推察される。また、Sn より価電子の一つ少ない In をドーピングすると、感度係数は向上しないものの、異常ホール効果の本質的な強さを表すホール角が増大することを明らかにしていた。本研究では、Ta ドープした試料を多数作製することで、Ta ドーピング効果の理解向上に取り組むと共に、Ta と In の共ドーピングによる特性向上の可能性について検証した。図 2(a) に様々な Ta ドーピングレベル  $x = \frac{\text{Ta}}{\text{Ta}+\text{Fe}}$ （エネルギー分散型 X 線分光から求めた原子比を採用）に対して、感度係数をプロットした結果を示す。 $x=0.3-0.4$  付近における最大値の出現がより明瞭になった。一方で、キャリア密度の関連するホール係数に対しても一定の傾向が認められた（図 2(b)）。この結果は、Ta ドーピングがスピン軌道相互作用に加え、キャリア密度（フェルミ準位）にも影響を与えていることを示唆している。作製した Fe-Sn-Ta 薄膜を用いて、異常ホール効果特性およびホール素子特性を評価し、学会発表した[研究成果 1, 2]。

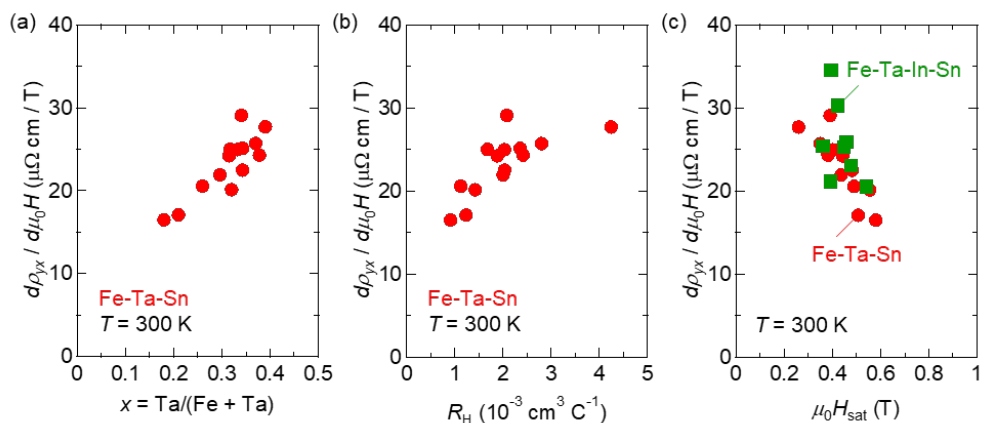


図 2. Fe-Ta-Sn 薄膜における感度係数の (a)  $x$  依存性および (b) ホール係数  $R_H$  依存性。 $R_H$  はホール抵抗の高磁場領域 2-3 T から求めた。(c) Fe-Ta-Sn 薄膜および Fe-Ta-In-Sn 薄膜における感度係数と飽和磁場  $\mu_0H_{\text{sat}}$  の関係。

本研究で使用したスパッタリング装置はカソードを一台しか保有していないため、複数の元素供給は、ベースとなる Sn ターゲット上に Fe や不純物となる元素のチップを配置することで対応した。そのため、三元系以上の精密な組成制御は困難であったものの、Ta と In を共ドーピングした試料において、これまでで最高の感度係数である  $34.4 \mu\Omega \text{ cm/T}$  と比較的高い飽和磁場を両立することに成功した (図 2(c))。これらの実験を通して、不純物ドーピングによる電子状態制御がホール素子特性の向上に有効であることを実証した。

## 2) 電界効果トランジスタ構造を用いた Fe-Sn 極薄膜への静電キャリアドーピング

Fe-Sn 薄膜を一種の半金属と考え、金属よりも低いキャリア密度を有することから [参考文献 2]、電界効果トランジスタを用いた静電キャリアドーピングによるフェルミ準位制御が期待できる。薄膜トランジスタの標準的基板である  $\text{SiO}_2/\text{Si}$  上にフォトリソグラフィを用いて Fe-Sn 極薄膜チャンネル (膜厚 4 nm) を形成し、ボトムゲート型の電界効果トランジスタ構造を作製した (図 3(a))。明瞭な異常ホール効果は観測されたものの、図 3(b) に示す様に、ゲート電圧印加に伴う特性変調は認められなかった。 $\text{SiO}_2$  よりも比誘電率の高いゲート絶縁層 (例: 原子層堆積法で作製した  $\text{Al}_2\text{O}_3$  や  $\text{HfO}_2$ ) やトップゲート構造との併用により誘起キャリア密度を向上し、フェルミ準位を制御することができれば、異常ホール効果を変調できるものと期待される。本項目に関する成果発表は、現時点では予定していないが、確立したプロセスは汎用的であるため、今後 Fe-Sn を含むワイル半金属関連物質の薄膜物性・素子化研究への活用が見込まれる。

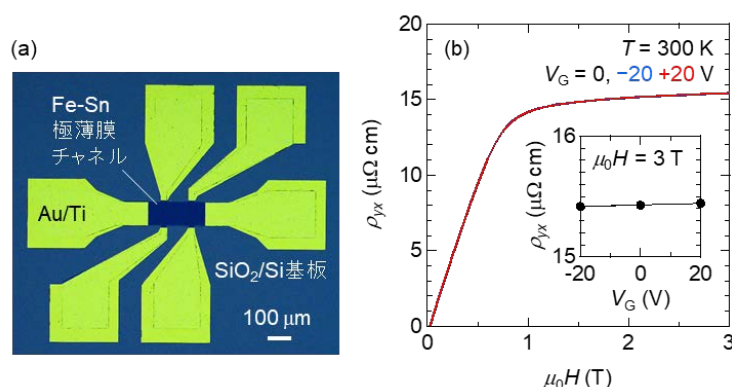


図 3. (a)  $\text{SiO}_2/\text{Si}$  基板上に作製した Fe-Sn 極薄膜チャンネルの光学顕微鏡像。基板がボトムゲート構造として機能する。(b) 各ゲート電圧  $V_G$  印加状態における異常ホール効果特性。三つの曲線がほぼ重なっている。挿入図: 面直磁場 3 T におけるホール抵抗の  $V_G$  依存性。

### 3) 三次元磁場検出デバイスの動作実証

Fe-Sn 薄膜が異常ホール効果だけでなく磁気抵抗効果を示すことに着目し、磁場検出の新たな自由度として活用することを試みた。共同研究者に Fe-Sn 薄膜を提供し、磁場ベクトルの三次元検出に向けた素子特性評価を行った[論文投稿中]。

### 展望

それぞれの項目において、当初計画に沿った技術的進展が得られた。Ta と In の共ドーピングによる感度係数の向上は大変興味深く、ワイル半金属の電子状態制御につながる成果と言える。より精密かつ系統的な組成制御を行うことで、さらなる特性向上が得られるものと期待される。また、フォトリソグラフィーを用いた素子構造化は、重要な基盤技術として今後の研究に役立つ。不純物ドーピングした Fe-Sn-X-Y 極薄膜チャネルへの静電キャリアドーピングなど発展研究への活用も期待できる。引き続き、ホール素子としての特性評価とワイル半金属としての物性評価を相補的に進めることで、ワイル半金属のエレクトロニクス応用に貢献したい。

### 引用文献

- [1] Y. Satake *et al.*, *Sci. Rep.* **9**, 3282 (2019).
- [2] K. Fujiwara *et al.*, *APL Mater.* **7**, 111103 (2019).
- [3] L. Ye *et al.*, *Nature* **555**, 638 (2018).

### 本助成に関わる成果物

[口頭発表]

1) Flexible Hall sensor using the anomalous Hall effect of nanocrystalline Fe-Sn films

K. Fujiwara, Y. Satake, J. Shiogai, T. Seki, and A. Tsukazaki

Materials Research Meeting 2019, B4-11-008 (横浜シンポジア、横浜 2019 年 12 月)

2) Fe-Sn 合金薄膜の異常ホール効果を用いた磁場センサ (招待講演)

藤原 宏平、塚崎 敦

日本磁気学会第 226 回研究会 / 第 74 回スピントロニクス専門研究会 (キャンパス・イノベーションセンター東京、東京 2020 年 1 月) 研究会資料として出版