

サファイア基板上における Fe_2O_3 薄膜の作製 Production of the Fe_2O_3 thin films on Al_2O_3 Substrates

○ 隅田貴士¹, 黒田卓司², 中村拓未², 林佑太郎¹, 岩田展幸³, 山本寛³

*Takashi Sumida¹, Takuji Kuroda², Takumi Nakamura², Yutaro Hayashi¹, Nobuyuki Iwata³, Hiroshi Yamamoto³

Abstract: *r*-cut sapphire substrate washed with ethanol and acetone. Heat treatment was carried out in air for 12 hour at 1050°C. Fe_2O_3 thin films were deposited by DC-RF magnetron sputtering method. Substrate temperature 580°C, Introduced gas O_2/Ar rate 0.25 (2/8ccm). Deposition time is 2 hours. Average surface roughness(Ra) was about 0.22 [nm]. Depth of the groove was 0.97 [nm]. It was confirmed thin film peak in the low angle side is a substrate peak and (1-102) plane of the (2-204) plane in the XRD pattern of Fe_2O_3 thin film.

1. 背景

強磁性 (Ferromagnetism : FM) / 反強磁性 (Antiferromagnetic : AFM) 積層膜界面における磁氣的交換相互作用によって, FM の磁化曲線がシフトすることが知られている. このシフトする磁場を交換バイアス磁場 (H_{EB}) と呼ぶ. Meiklejohn-Bean によると, H_{EB} は AFM 表面のスピンの大きさに比例する^[1]. 単結晶と同等な薄膜を作製すると必ず表面はステップ-テラス構造を示す. ほとんどの AFM 材料ではステップによって高さの異なったテラスのスピンは反強磁性的に配列している. 一方, Cr_2O_3 薄膜の *r* 面は, その表面がステップ-テラス構造を示したとしても, すべての面でスピンは強磁性的に配列しており, 大きな H_{EB} を得る可能性がある. そのためには, Cr_2O_3 薄膜表面が原子レベルで平坦である必要がある.

これまで, DC-RF マグネトロンスパッタ法を用いて *r* 面サファイア基板上に, 基板温度 580~840[°C], $\text{O}_2/\text{Ar}=2/8[\text{ccm}] \sim 30/3[\text{ccm}]$, 内圧 0.3 ~ 0.4[Pa], 成膜時間 2 時間で Cr_2O_3 薄膜を作製し, それぞれの結晶成長の違いについて解析を行ってきた. *r* 面配向 Cr_2O_3 薄膜表面は深さ 15-30nm の深い溝が発生し, +4%の格子ミスマッチを緩和したことが分かった. よって格子ミスマッチを小さくして溝の発生を抑える必要がある. そこで $(\text{CrFe})_2\text{O}_3$ 薄膜をサファイア基板上に成膜する. サファイア基板上にイオン半径が Cr^{3+} よりも大きい Fe^{3+} を初期成膜時にドーピングする. Fe^{3+} が Cr^{3+} より酸素と反応することより, 酸素によるクーロン反発力を抑制することができる. よって Cr 原子が核形成しやすくなるためステップフロー成長が期待でき, 原子レベルで平坦な表面にできる可能性がある. これは, OFF-axis による Cr_2O_3 堆積, ON-axis による Fe_2O_3 成膜を同時に行うことで実現する. よって Fe_2O_3 が成長する条件を明らかにする必要がある.

2. 目的

本研究の目的は $(\text{CrFe})_2\text{O}_3$ 薄膜作製することである. その準備として Fe_2O_3 薄膜の最適な成膜条件を模索することである.

3. 実験方法

r 面サファイア基板をアセトン 5 分, 15 分, エタノール 5 分で超音波洗浄を行った. アニール条件として, 温度 1050 °C, 12 時間大気中で熱処理を行った. DC-RF マグネトロンスパッタ法を用いて, Fe_2O_3 薄膜を作製した. 条件を表 1 に示す. *r* 面サファイア基板上に, 基板温度 580 °C $\text{O}_2/\text{Ar}=2/8[\text{ccm}]$, 内圧 0.2 ~ 0.3[Pa], 成膜時間 2 時間, 自己バイアス 170[V], RF 電源 80[W] で Fe_2O_3 薄膜を作製した. 原子間力顕微鏡 (SPM) により薄膜表面の評価を行った.

表 1. 成膜条件

基板温度[°C]	580
Ar: O_2 [ccm]	8:2
成膜時間[min]	120
Fe ターゲット[inch]	2
内圧[Pa]	0.2~0.3
自己バイアス[V]	170
RF[W]	80

4. 結果

図 1 に, Fe_2O_3 薄膜の表面像とラインプロファイルを示す. 平均面粗さ (Ra) は約 0.22[nm] となった. 溝の深さは 0.97[nm] であった.

図 2 に, Fe_2O_3 薄膜の XRD (2 θ) パターンを示す. 基板ピークである (1-102) 面と (2-204) 面の低角側に薄膜ピークを確認した.

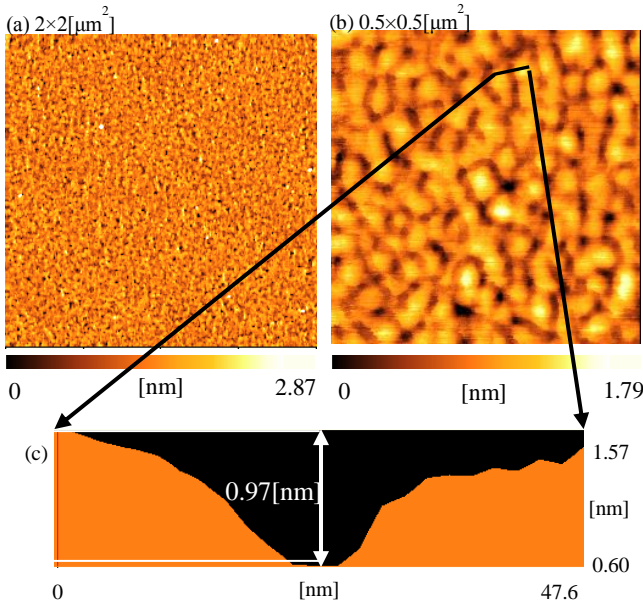


図 1 Fe₂O₃ 薄膜の表面像

ラインプロファイルで確認したところ、平均面粗さは約 0.2[nm] となった。溝の深さは、0.97[nm]だった。

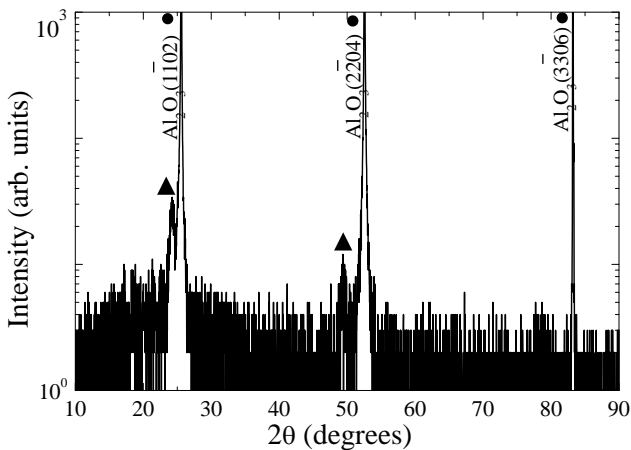


図 2 Fe₂O₃ 薄膜の XRD(2θ-θ)パターン

●部分は Al₂O₃ 基板で▲は薄膜ピークを示す。基板ピークである (1-102)面と(2-204)面の低角側に薄膜ピークを確認した。

5. 考察

成膜した基板の表面像(図 1)を確認したところ、溝の深さは 0.97[nm]となった。同様の条件で成膜した *r* 面配向 Cr₂O₃ の溝の深さは 15-30nm であった。本来最適な成膜条件であれば Cr₂O₃ 薄膜と同等の溝が発生すると考えられる。しかし Fe₂O₃ 薄膜の溝の深さは 0.97[nm]であった XRD(2θ-θ)パターン(図 2)より基板ピークである(3-306)面の低角側の薄膜ピークが見えなかった。これは膜厚が薄いために薄膜ピークの強度が見えなかったと考える。

今回成膜した Fe₂O₃ 薄膜は XRD(2θ-θ)パターンで(3-306)面付近に薄膜ピークが現れなかったため膜厚が薄いと考えている。よって 成膜条件を見直す必要がある。変更点は成膜温度、成膜時の内圧となる。これにより、膜厚を厚くできると考えている。

は成膜温度、成膜時の内圧となる。これにより、膜厚を厚くできると考えている。

6. まとめ

Cr₂O₃ 薄膜を作製し、それぞれの結晶成長の違いについて解析を行ってきた。*r* 面配向 Cr₂O₃ 薄膜表面は深さ 15-30nm の深い溝が発生し格子ミスマッチを緩和したことが分かった。本研究の目的は(CrFe)₂O₃ 薄膜をサファイア基板上に成膜することである。サファイア基板上にイオン半径が Cr³⁺ よりも大きい Fe³⁺ を初期成膜時にドーピングする。Fe³⁺ が Cr³⁺ より酸素と反応することにより、酸素によるクーロン反発力を抑制することができる。よって Cr 原子が核形成しやすくなるためステップフロー成長が期待でき、原子レベルで平坦な表面にできる可能性がある。*r* 面サファイア基板をアセトン 5 分、15 分、エタノール 5 分で超音波洗浄を行った。アニール条件として、温度 1050 °C、12 時間大気中で熱処理を行った。DC-RF マグネトロンスパッタ法を用いて、Fe₂O₃ 薄膜を作製した。条件を表 1 に示す。*r* 面サファイア基板上に、基板温度 580 °C O₂/Ar=2/8(ccm)、内圧 0.2 ~ 0.3[Pa]、成膜時間 2 時間、直流電流 0[A]、自己バイアス 170[V]、RF 電源 80[W]で Fe₂O₃ 薄膜を作製した。図 1 に、Fe₂O₃ 薄膜の表面像とラインプロファイルを示す、平均面粗さ(Ra)は約 0.22[nm] となった。溝の深さは 0.97[nm]であった。図 2 に、Fe₂O₃ 薄膜の XRD(2θ-θ)パターンを示す。基板ピークである(1-102)面と(2-204)面の低角側に薄膜ピークを確認した。Fe₂O₃ と *r* 面サファイア基板との格子ミスマッチは約+6%である。成膜した基板の表面像(図 1)を確認したところ、溝の深さは 0.97[nm]となった。同様の条件で成膜した *r* 面配向 Cr₂O₃ の溝の深さは 15-30nm であった。本来最適な成膜条件であれば Cr₂O₃ 薄膜と同等の溝が発生すると考えられる。しかし Fe₂O₃ 薄膜の溝の深さは 0.97[nm]であった XRD(2θ-θ)パターン(図 2)より基板ピークである(3-306)面の低角側の薄膜ピークが見えなかった。これは膜厚が薄いために薄膜ピークの強度が見えなかったと考える。今回成膜した Fe₂O₃ 薄膜は XRD(2θ-θ)パターンで(3-306)面付近に薄膜ピークが現れなかったため膜厚が薄いと考えている。よって 成膜条件を見直す必要がある。変更点は成膜温度、成膜時の内圧となる。これにより、膜厚を厚くできると考えている。

7. 参考文献

- [1] W. H. Meiklejohn and C. P. Bean, Phys. Rev. 5 (1956) 1413-1414.
- [2] N. Iwata, et al., Mater. Res. Soc. 2007 Fall Proc. 1034-K10-67.
- [3] N. Iwata, et al., Physica C 463-465 (2007) 1005.