

原子レベルで平坦な  $r$  面配向  $\text{Cr}_2\text{O}_3$  薄膜の作製条件探索Investigation of Growth Condition for atomically smooth  $r$ -plane oriented  $\text{Cr}_2\text{O}_3$  thin films黒田卓司<sup>1</sup>, 岩田展幸<sup>2</sup>, 高瀬浩一<sup>3</sup>, 山本寛<sup>2</sup>

Takuji Kuroda, Nobuyuki Iwata, Koichi Takase, Hiroshi Yamamoto

**Abstract:** Deposited on the sapphire substrate temperature (580 to 840 °C), oxygen and Ar ratio (0.25 to 10) was deposited  $\text{Cr}_2\text{O}_3$ . Average surface roughness of the image results for AFM ( $R_a$ ) was about 20 times coarser changing from 29nm to 840 °C and 1.577nm for the 580 °C in the deposition temperature. Changed to two to six hours deposition time. Surface is changed to two to six hours deposition time was smooth. Bragg diffraction peaks of  $\text{Cr}_2\text{O}_3$  was formed from the XRD measurements  $\text{Al}_2\text{O}_3$  (11 $\bar{0}$ 2),  $\text{Cr}_2\text{O}_3$  (11 $\bar{0}$ 2) confirmed that. Peak was confirmed substrate and film by reciprocal lattice map. had changed 6-axis from 3-axis from the after deposition So a normal growth pattern and are thought to have grown in different twin.

## 1. 背景

強磁性金属/ $\text{Cr}_2\text{O}_3$  積層膜において交換バイアス磁場( $H_{\text{EB}}$ )を用いたデバイス作製を目的としている。Meiklejohn-Bean によると、積層膜界面における反強磁性(AF)体表面のスピンの大きさに  $H_{\text{EB}}$  が比例する<sup>[1]</sup>。単結晶と同等な薄膜を作製しても必ず表面はステップ-テラス構造を持つ。ほとんどの AF 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、 $\text{Cr}_2\text{O}_3$  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  $H_{\text{EB}}$  を得る可能性をもっている。

これまで、サファイア基板上に  $r$ -,  $a$ -,  $c$ -面配向の  $\text{Cr}_2\text{O}_3$  薄膜の作製条件最適化を行ってきた。膜厚約 200nm では、580°C、 $\text{O}_2/\text{Ar}=8/2(\text{ccm})$ 、0.2-0.3Pa でエピタキシャル成長した<sup>[2,3]</sup>。 $r$ -面配向  $\text{Cr}_2\text{O}_3$  薄膜表面は、一つのグレイン内では unit 単位でステップ-テラス構造を示したが、グレイン同士がコアレスした箇所では大きな段差が、出来ていない箇所では深さ 20-30nm の深い溝が発生した。この表面では積層膜界面においてトータルの AF スピンは打ち消し合い、大きな  $H_{\text{EB}}$  を発生させることが出来ない。

本研究では、原子レベルで平坦な表面を持つ  $r$  面配向  $\text{Cr}_2\text{O}_3$  薄膜が得られる作製条件を更に追求したので報告する。

## 2. 実験方法・評価方法

$r$  面サファイア基板をアセトン、エタノールで洗浄し、12 時間アニール処理を行った。DC-RF マグネトロンスパッタ法を用いて成膜を行った。成膜条件は基板温度 580, 620, 660, 720, 840°C、導入ガス  $\text{O}_2/\text{Ar}$  比を 0.25 (2/8ccm), 1.0 (12/12ccm), 2.0(24/12ccm), 5.0(30/6ccm), 10(30/3ccm)とした。成膜時間は 2 時間とし、成膜時間 6 時間の場合でも成膜を行った。成膜後酸素 0.1MPa 中で温度を低下させた。評価は、原子間力顕微鏡(AFM)、X 線回折(XRD)を用いた。

## 3. 結果・考察

表面像を Fig.1 に示す。成膜条件(基板温度、成膜雰囲気)はそれぞれ、(a) 580°C、 $\text{O}_2/\text{Ar} = 2/8 (\text{ccm}) \cdot 0.31\text{Pa}$ 、(b) 660°C、 $\text{O}_2/\text{Ar} = 24/12 (\text{ccm}) \cdot 0.46\text{Pa}$  である。(a)500×500 nm<sup>2</sup> 程度のコアレス化したグレインが一面に分布していた。一つのグレイン内では約 0.3 nm の段差が、コアレス化しているグレイン間では 1-1.5 nm の段差が確認できた。平均面荒さ  $R_a$  は 1.6 nm であった。コアレス化出来なかったグレイン間には深い溝が発生し深さは 15-20 nm であった。(b)では溝が深く(40-60 nm)なり発生面積も増大した。グレイン表面では 1-2 nm の段差が発生した。

$r$  面配向  $\text{Cr}_2\text{O}_3$  薄膜の XRD 結果において、Fig.2 に成膜温度 580°C のときの XRD(20- $\theta$ )パターンを示す。(2204)から見積もった格子間隔は 0.1817 nm となってバルク値と一致した。次に成膜温度に対する半幅幅と平均面粗さ  $R_a$  のプロット図を Fig.3 に示す。(2204)Bragg 反射に関するロッキングカーブの半幅幅は基板温度 580 °C では 0.54°、660 °C では 0.35° であった。表面温度が高温になれば一つのグレインが大きくなりグレイン同士がコアレス化し表面は悪化するがその大きなグレインのみを考えたとき、表面温度が高くなるにしたがってグレイン自体は熱により粒成長し大きくなるため成膜温度を上げることで結晶性の向上に繋がったと考えている。

次に  $c$  面配向  $\text{Cr}_2\text{O}_3$  薄膜(01 $\bar{1}$ 10)面の逆格子マップを Fig.4、 $c$  面配向  $\text{Cr}_2\text{O}_3$  薄膜(10 $\bar{1}$ 10)面の逆格子マップを Fig.5 に示す。基板ピークの位置と薄膜ピークの位置がずれている。このことから格子定数が緩和し  $\text{Cr}_2\text{O}_3$  が基板の影響を受けずにバルクとして成長していると考えている。また測定面により基板ピークしか現れない面と基板ピークと薄膜ピークの両方が現れる面を周期的に確認した。このことから成膜前は 3 回軸であったが成膜後では 6 回軸に変化した。よってツインに配向していると考えている。

## 4. まとめ

基板温度を上昇させ、酸素欠損を補うために高酸素分圧下で成膜を行った。表面形状は荒れたものの結晶性が向上していることがわかった。 $\text{Cr}_2\text{O}_3$ はサファイアに対し+4.1%の格子ミスマッチがある。この大きなミスマッチが原因で1nm程度から膜は緩和しグレイン成長が開始している<sup>[1,2]</sup>。基板温度が高温になればその様子は顕著に表れグレイン間により大きな溝ができたと考えている。原子レベルで平坦なr面配向 $\text{Cr}_2\text{O}_3$ 薄膜を得るためには格子ミスマッチをどのように緩和させるかが重要である。

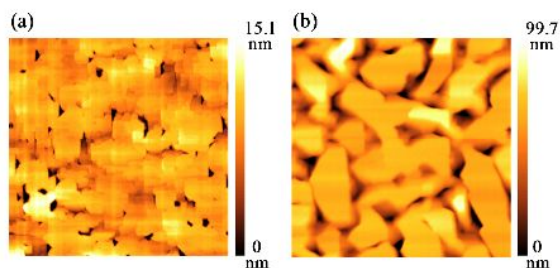


Fig.1 Substrate temperature(a)580 °C (b)660 °C surface image of  $\text{Cr}_2\text{O}_3$  thin films

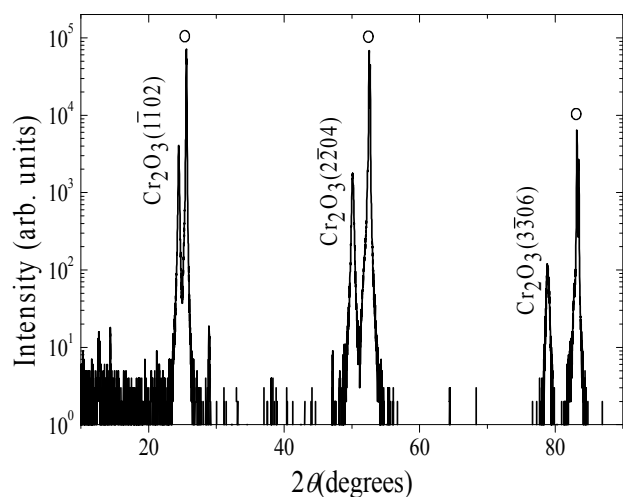


Fig.2 XRD(2θ-θ) of Substrate temperature 580 °C

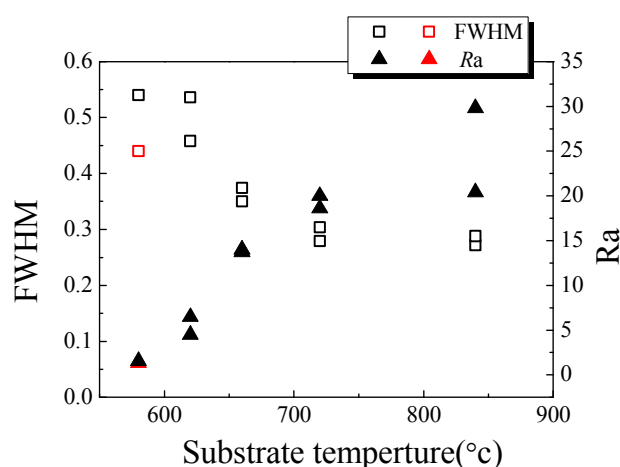


Fig.3 Plot of half-width and average surface roughness Ra on theSubstrate temperature

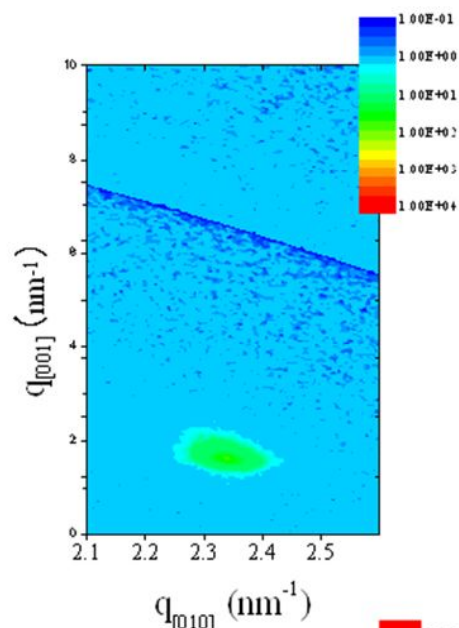


Fig.4  $q_0$ -plane  $\text{Cr}_2\text{O}_3$  (01110)

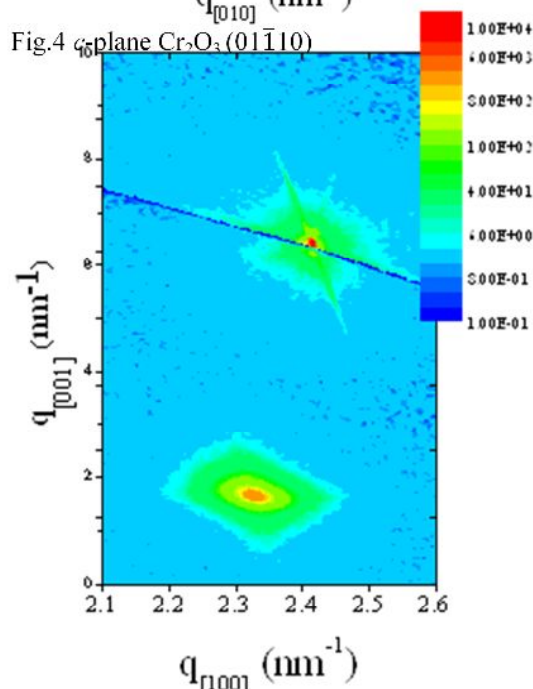


Fig.4 c-plane  $\text{Cr}_2\text{O}_3$  (10110)

#### 4. 参考文献

- [1] X.Chen et al., Appl. Phys. Lett. **89**(2006)202508.
- [2] T.Asada, et al., Jpn. J. Appl. Phys. **47**(2008) 546-549.
- [3] N.Iwata, et al., Mater. Res. Soc. 2007 Fall Proc. **1034** (2008) K10-67.

#### 謝辞

本研究は科研費・若手研究(B)(21760013)、日本大学 N.研究プロジェクト、及び日本大学理工学部プロジェクト研究の助成を受けたものである。