

LiNbO₃ 基板上における Cr₂O₃ 薄膜の作製 Production of the Cr₂O₃ thin films on LiNbO₃ Substrates

○ 中村拓未¹, 黒田卓司², 岩田展幸³, 山本寛³

*Takumi Nakamura¹, Takuji Kuroda², Nobuyuki Iwata³, Hiroshi Yamamoto³

Abstract: Undertake the annealing process to obtain step-terraces structure of *c*- and *r*-cut LiNbO₃(LNO). The bunching step appeared at 900°C on *c*-cut LNO. The single step lattice height (0.23nm) is observed at 800~850°C, however, the step-line is wavy. The linear groove is observed at 700°C, however, the step not appeared. Particulate tall have been deposited on the surface of the substrate. Annealing superimposed together two surfaces of the substrates. I similar results are obtained when no overlap. The single step lattice height (0.40nm) is observed at 700°C, however, the step such as fibers appear.

1. 背景

強磁性 (Ferromagnetism : FM)/ 反強磁性 (Antiferromagnetic : AFM)積層膜界面における磁気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, Cr₂O₃ 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, Cr₂O₃ 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* 面および *c* 面サファイア基板上に, 基板温度 580~840°C, O₂/Ar=2/8(ccm)~30/3(ccm), 内圧 0.3-0.4Pa, 成膜時間 2 時間で 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, 一つのグレイン内ではステップ-テラス構造およびバンチングステップを確認したが, それ以外の箇所では深さ 15-30nm の深い溝が発生した. *c* 面配向 Cr₂O₃ 薄膜表面は成膜温度を変化させても nm オーダーで平坦であった. 逆格子マップの結果から *c* 面配向膜は双晶を含み, *r* 面配向膜は双晶を含まず成長したことが解った. これは基板との格子ミスマッチによる結晶歪みの影響を受けたためであると考えた. そこで結晶構造, 格子ミスマッチの観点からより適切な基板として, LiNbO₃(LNO)基板を選択した. 格子ミスマッチは, *c* 面では, +4.01%(サファイア)から-3.77%(LNO), *r* 面では +4.01%, +4.34% (サファイア)から-3.77%, -2.52%(LNO)となり, 格子歪みの影響が緩和される可能性がある. よって *c* 面では双晶の成長, *r* 面では溝の発生が抑えられる可能性がある.

2. 目的

表面が原子レベルで平坦であり, 双晶を含まない Cr₂O₃ 薄膜を作製するには, LNO 基板上に成膜することで得られると考えた. よってその準備として LNO 基板の熱処理最適条件探索を行った.

3. 実験方法

c 面 LNO 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. 熱処理条件として, 温度 (a)900°C, (b)850°C, (c)800°C, (d)700°C, 12 時間大気中で熱処理処理を行った. また, 二枚の基板表面同士を重ねて温度 700°C, 12 時間大気中で熱処理を行った. *r* 面 LNO 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い, 温度 700°C, 3 時間大気中で熱処理を行った.

4. 結果

図 1 に熱処理後の, 温度ごとの *c* 面 LNO 基板表面像 (1×1μm²)を示す. 熱処理温度 900°C ではステップテラス構造及びバンチングステップを確認したが, ステップは直線状ではなかった. 800°C~850°C では 1 格子高さのステップ (高さ 0.23nm) が明瞭に確認できた. しかしステップは湾曲した形状となった. 700°C では直線状の溝を確認したが, ステップは確認できなかった.

また, 熱処理後の LNO 基板表面に背の高い粒子が現れていた. この微粒子が熱処理環境下周辺から飛来した微粒子であるのか, 熱処理することによって基板から析出した微粒子であるのか不明である. そこで二枚の LNO 基板の表面同士を重ねて熱処理することで確かめた.

図 2 に基板を重ねて温度 700°C で熱処理したときの *c* 面 LNO 基板表面像 (5×5μm²)を示す. 図 2 より, 重ねていない時の LNO 基板表面と同様の結果を得た.

図 3 に温度 700°C で熱処理した *r* 面 LNO 基板表面像

($1 \times 1 \mu\text{m}^2$)を示す. 図 3 より繊維状のステップを確認した. ラインプロファイルによりステップの高さを測定した結果, 約 0.40nm であった.

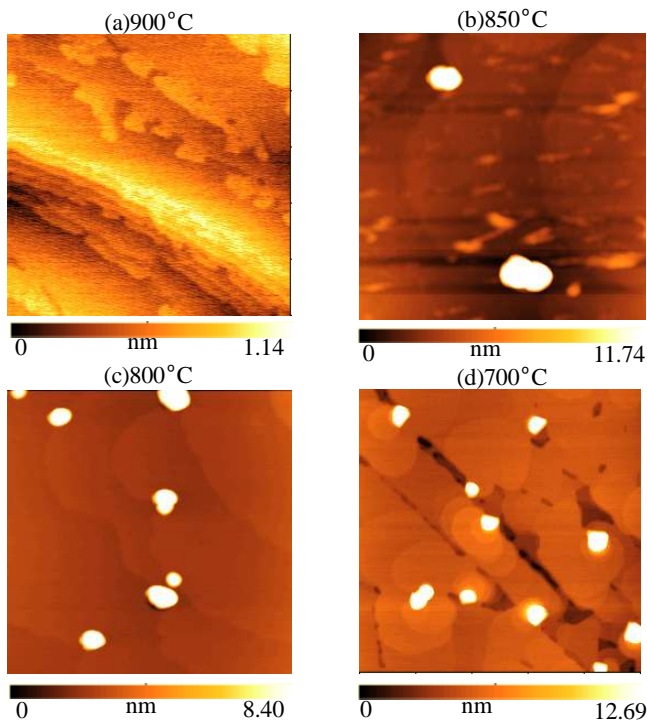


図 1 熱処理温度ごとの c 面 LNO 基板表面像($1 \times 1 \mu\text{m}^2$)



図 2 二枚の c 面 LNO 基板の表面同士を重ねて温度 700°C で 12 時間熱処理した基板の表面像($5 \times 5 \mu\text{m}^2$)

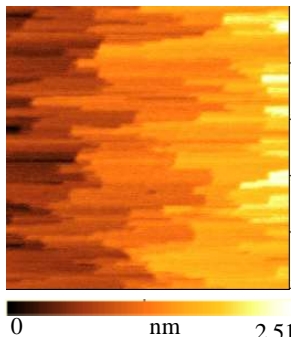


図 3 温度 700°C で 3 時間熱処理した r 面 LNO 基板の表面像($1 \times 1 \mu\text{m}^2$)

5. 考察

図 1 より, c 面 LNO 基板では熱処理の温度が高くなるとステップの形状は湾曲して, バンチングすることがわかっ

た. これは熱処理の温度が高くなると原子の拡散距離が長くなるためであると考えられる. また温度 800°C では一格子高さのステップが現れているのに対して, 700°C ではステップが現れなかった. この結果から, c 面 LNO 基板の熱処理の最適温度は 700°C から 800°C の間であると考えられる. また, 基板表面に現れた微粒子は, 熱処理環境下周辺から飛来した微粒子であるか, 熱処理することによって基板から析出した微粒子であるかの二通り考えられたが, 図 2 より飛来してきた微粒子ではないことがわかった. よってこの微粒子は基板から析出して来たものであると考えられる.

図 3 より r 面 LNO 基板には繊維状のステップが現れていた. これは, 熱処理の時間が 3 時間と短く, ステップの形成が途中でとまってしまったためであると考えられる. また, 熱処理後の r 面 LNO 基板には微粒子が出現していなかった. このことから, c 面 LNO 基板でも熱処理時間を短くすれば微粒子が出現しない可能性があると考えられる. 今後は更に LNO 基板の熱処理最適温度条件を探索し, その上に Cr_2O_3 薄膜を成膜する.

6. まとめ

LNO 基板の熱処理最適条件探索を行った. c 面において, 熱処理温度 900°C ではステップテラス構造及びバンチングステップを確認した. $800^\circ\text{C} \sim 850^\circ\text{C}$ では, ステップを確認した. しかしステップは湾曲した形状となった. これは熱処理の温度が高くなると原子の拡散距離が長くなるためであると考えられる. 700°C では直線状の溝を確認したが, ステップは確認できなかった. また, 二枚の LNO 基板の表面同士を重ねて熱処理を行った. その結果, 重ねていない時の LNO 基板表面と同様であった. よってこの微粒子は基板から析出して来たものであると考えられる. r 面において温度 700°C では繊維状のステップを確認した. これは熱処理の時間が 3 時間と短く, ステップの形成が途中でとまったためであると考えられる. これらの結果より, c 面 LNO 基板の熱処理の最適温度は 700°C から 800°C の間であると考えられる. 今回の実験で熱処理した LNO 基板では, 表面が原子レベルで平坦な Cr_2O_3 薄膜を得ることは難しい. よって更なる熱処理最適条件探索が必要である.

7. 参考文献

- [1] W. H. Meiklejohn and C. P. Bean, Phys. Rev. **5** (1956) 1413-1414.
- [2] Ch. Binek, A. Hochstrat, and W. Kleemann, J. Magn. Mater. **234** (2001) 353-358.