

c 面配向 Cr₂O₃ 薄膜及び Co、Pt 薄膜の成膜条件探索 Optimization of Growth Condition in c-oriented Cr₂O₃, Co and Pt

福井慎二郎¹、隅田貴士²、橋本浩佑²、永田知子³、山本寛³、岩田展幸³
Shinjiro Fukui, Takashi Sumida², Kosuke Hashimoto²,
Tomoko Nagata³, Hiroshi Yamamoto³, Nobuyuki Iwata³

Abstract: We report the optimization of growth condition in Cr₂O₃, Co and Pt thin films by DC-RF magnetron sputtering method. The shape of grains is three dimensional island, but step-terraces structure is clearly observed. In a x-ray traditional 2θ-θ measurement, only the diffraction of (0006) and (00012) except for those from substrate are detected. It indicates the growth of (0001) oriented Cr₂O₃ thin film. The lattice parameter of (0006) was 0.2273 nm, which was in agreement with that of the bulk.

1. 背景

電気磁気(Magnetolectric:ME)効果を示す物質の探索が盛んに行われている^[1]。Cr₂O₃はコランダム構造を有する反強磁性体(Antiferromagnetic : AFM)である。同時に電界印加により磁化が誘起される ME 効果を示す物質として知られている。

ME 効果は

$$M = M_0 + \mu_0 \chi_M H + \alpha E \quad (1)$$

と表せ、AFM の Cr₂O₃ のみで考えた場合、自発磁化 (M_0)は 0、磁場(H)が印加されていない場合、

$$M = \alpha E \quad (2)$$

と表せる。

$$\mu_0 H_{EB} = J \frac{S_{AF} S_{FM}}{M_{FM} t_{FM}} \quad (3)$$

(3)式より H_{EB} は反強磁性体表面のスピンの大きさ S_{AF} に比例することが分かる^[2]。強磁性 (ferromagnetism:FM)/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。反強磁性体であり、ME 効果を示す Cr₂O₃ を AFM として用いれば、電界印加によって FM の強磁性特性を制御できる可能性がある。

図 1 に Cr₂O₃ のコランダム結晶構造を示す。図 1(b) は c 軸方向に 1 ユニットセル分の原子配列を示している。横の点線は、c 面最表面となる面で間隔は約 0.23 nm である。最表面 Cr スピンは、UP、DOWN 両者とも取り得る可能性がある。また、これまでの研究成果よりサファイア基板上 c 面配向 Cr₂O₃ 膜は約 20% の双晶を含んでおり、電界印加に対して、スピンの大きさが増大する領域と縮小する領域があることがわかっている^[3-4]。電界印加に対して、どちらか一方の磁化の変化を誘起するには、双晶を減少させることが必要不可欠である。

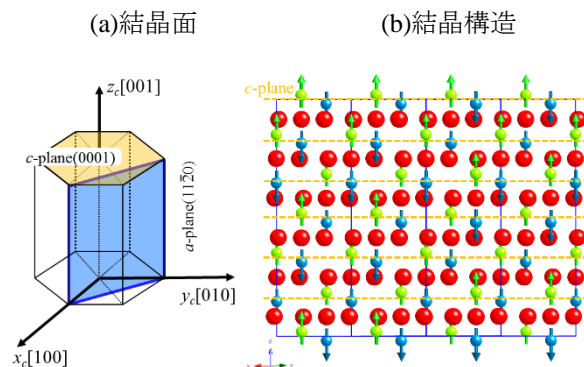


図 1 (a)Cr₂O₃ のコランダム構造の模式図。(b)[-1-10]方向に見た原子配列。矢印のある原子が Cr、矢印の無い原子が酸素である。矢印の向きはスピンの向きを示している。

2. 目的

巨大な ME 効果を得るためには双晶の少ない Cr₂O₃ 薄膜を要する。また Co、Pt 薄膜の膜厚を精密に制御する必要がある。よって、本報告では上記の薄膜の作製条件の探索を行い、評価することである。

3. 実験方法・条件

c 面サファイア基板をアセトンで 5 分、15 分、エタノールで 5 分超音波洗浄を行い、1050°C、12 時間大気中でアニール処理した^[5]。DC-RF マグネトロンスパッタ法を用いて、Cr₂O₃ 薄膜を作成した。表 1 に成膜条件を示す。c 面サファイア基板上に、基板温度 620 °C、O₂/Ar=2/8[ccm]、成膜中圧力 0.3[Pa]、成膜時間 2 時間で膜厚約 200nm の Cr₂O₃ 薄膜を作成した。走査型プローブ顕微鏡(Scanning Probe Microscopy)の DFM(Dynamic Force Mode)モードで Cr₂O₃ 薄膜表面を観察し、XRD (X-Ray Diffract)装置で 2θ-θ パターンを測定した。

表 1 成膜条件

| | |
|-------------------------|------|
| 成膜温度[°C] | 620 |
| O ₂ /Ar[ccm] | 2/8 |
| 成膜時間[min] | 120 |
| Cr ターゲット-直径[inch] | 2 |
| 内圧[Pa] | 0.3 |
| DC[A] | 0.04 |
| RF[W] | 80 |

4. 結果

図 2 に c 面配向 Cr_2O_3 の表面像とラインプロファイルを示す。薄膜表面は単一グレインではなく、直径 $0.24\mu\text{m}\sim 0.32\mu\text{m}$ の小さなグレインで埋め尽くされ、平均面粗さ(R_a)は 2.4nm であった。1つのグレインに着目してみると、 $0.26\sim 0.28[\text{nm}]$ のステップ形成をしていた。

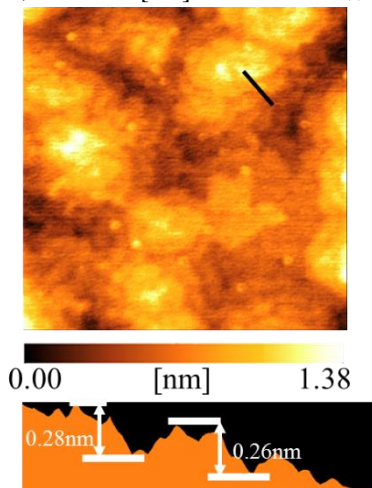


図 2 Cr_2O_3 薄膜の表面像直径 $0.24\mu\text{m}\sim 0.32\mu\text{m}$ の小さなグレインで埋め尽くされ、平均面粗さ(R_a)は 2.4nm であった。1つのグレインに着目してみると、 $0.26\sim 0.28[\text{nm}]$ のステップ形成をしていた。

図 3 に Cr_2O_3 薄膜の 2θ - θ パターンを示す。基板ピークの低角側に c 面配向 Cr_2O_3 薄膜のピークが見られた。Nelson-Riley 関数より面直方向での $(0\ 0\ 0\ 6)$ 面の格子定数を見積もった結果、 0.2273nm と算出された。バルクの Cr_2O_3 の値 0.2267nm とほぼ一致した。

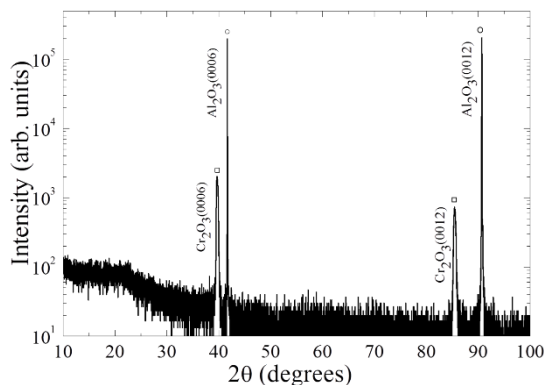


図 3 Cr_2O_3 薄膜の 2θ - θ パターン

基板ピーク(○)の低角側に c 面配向 Cr_2O_3 薄膜のピークを確認できた。格子定数は 0.2273nm であった。

5. 考察

c 面サファイア基板に表 1 の条件で、成膜を行ったところ単一グレインではなく、複数の小さなグレインで成長していた。

c 面配向膜を作製した場合、表面エネルギーが最も高く薄膜表面が荒れると予想できた。しかし今回作製した薄膜において平坦な表面が得られた。 Cr_2O_3 薄膜表面は $0.24\mu\text{m}\sim 0.32\mu\text{m}$ の小さな丸いステップで埋め尽くさ

れた。また平均面粗さ(R_a)は 0.24nm と平坦であった。 X 線回折より面直方向での格子間隔は 0.227nm と見積もることができ、バルク値と一致していた。 Co 、 Pt 薄膜の成膜条件の最適化については当日報告する。

6. まとめ

c 面サファイア基板に Cr_2O_3 膜を DC-RF マグネトロンスパッタ法を用いて作製した。表面像より、平均面粗さは 0.24nm と平坦であり、小さな丸いグレインに埋め尽くされた。 X 線回折より面直方向での格子定数は 0.227nm と見積もることができ、バルク値と一致していた。

7. 参考文献

- [1] P. Borisov, A. Hochstrat, X. Chen, W. Kleeman, and Ch. Binek, Phys. Rev. Lett. **94**, 117203 (2005).
- [2] X. Chen, A. Hochstrat, P. Borisov, and W. Kleemann Appl. Phys. Lett. **89** (2006) 202508.
- [3] Y. Shiratsuchi, T. Nakatani, S. Kawahara, and R. Nakatani: J. Appl. Phys. **106** (2009). 033903
- [4] N. Iwata T. Kuroda and Hiroshi Yamamoto, Jpn. J. Appl. Phys. **51** (2012) 11PG12
- [5] M. Yoshimoto, T. Maeda, T. Ohnishi, H. Koinuma, O. Ishiyama, M. Shinohara, M. Kubo, R. Miura, and A. Miyamoto: Appl. Phys. Lett. **67**(1995) 2615.