サファイア基板上でのr面配向 Fe2O3薄膜の成膜条件探索

Investigation of growth condition for r-oriented Fe₂O₃ thin film on sapphire substrate

o柳原康宏¹,福井慎二郎²,隅田貴士²,橋本浩佑²,平戸剛志¹,永田知子³,山本寬³,岩田展幸³ *Yasuhiro Yanagihara¹, Shinjiro Fukui², Takashi Sumida², Kosuke Hashimoto², Tsuyoshi Hirato¹, Tomoko Nagata³, Hiroshi Yamamoto³, Nobuyuki Iwata³,

Abstract: We report investigation of growth condition for *r*-oriented Fe_2O_3 thin film on sapphire substrate by magnetron sputtering method. From the surface morphology of Fe_2O_3 thin film, the grown grains showed islet grain. Average surface roughness was 1.11 nm (internal pressure : 0.3 Pa), and 1.05 nm (internal pressure : 3 Pa). From X-ray diffraction experiment, the peak of Fe_2O_3 thin film observed at low angle position than sapphire substrate. The calculated lattice placing was almost same as bulk.

1.背景・目的

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(HEB)と呼ぶ。AFM 材料として電気磁気(Magnetoelectric:ME)効果を示すCr2O3 を用いることで、電界印加によって FM の磁気特性を制 御できる可能性がある。Meilejohn-Bean によると、積層 膜界面における AFM表面のスピンの大きさは HeB に比例 する。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 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 HB を得る可能 性がある。そのため、Cr₂O₃薄膜表面が原子レベルで平 坦である必要がある。



図1. Cr₂O₃のコランダム構造の模式図^[2]: (a)Cr₂O₃の結晶構 造。r面を赤の面で示す。(b)[1-102]方向から見た2次元結晶 構造を示す。r面を赤線で示す。赤い球に酸素イオンを、青と 緑の矢印にクロムのスピンを示す。 これまで、我々は DC-RF マグネトロンスパッタ法で r 面サファイア基板上に Cr₂O₃薄膜を成膜し、最適な成膜 条件を探索したが、いずれも溝が発生した。これは約 4%の格子ミスマッチを緩和するため、また Cr₂O₃の r 面 の表面エネルギーが非常に小さいためである^[2]。それら 問題を解決するために(Cr_{1-x}Fe_x)₂O₃薄膜を作製することを 考えた。c 面サファイア基板上に Fe₂O₃がステップフロー 成長し、明瞭なステップ・テラス構造を示すことが報告 されている。また、Cr₂O₃薄膜がステップフロー成長す るには、さらに高い基板温度が必要であることが示唆さ れている^[3]。本発表では、Fe₂O₃薄膜の成膜条件最適化お よび結晶構造解析に関して報告する。

2. 実験方法·条件

r 面サファイア基板の基板処理としてアセトン5分、15分、エタノール5分で超音波洗浄を行った。温度1050°C、大気中で12時間のアニール処理を行った。RF マグネトロンスパッタ法を用いて on-axis にて Fe₂O₃薄膜を作製した。表1に成膜条件を示す。基板温度580°C、 O₂:Ar=2:8ccm、成膜時間15 min、RF 電源80 W とし、内圧0.3、3 Paで成膜を行った。表面像の評価には、走査型プローブ顕微 鏡 (Scanning Probe Microscope : SPM) を 用 い てDFM(Dynamic Force Mode)にて測定を行った。結晶構造の評価には、X線回折装置(D8 DISCOVER : BRUKER AXS)を用いた。

表1 成膜条件

基板温度[℃]	580
O ₂ :Ar[ccm]	2:8
内圧[Pa]	0.3, 3
成膜時間[min]	15
RF 電源[W]	80

1: 日大理工・学部 電子情報工学科 2: 日大理工・院 (前)電子工学専攻 3: 日大理工・教員 電子工学科

結果・考察

図2に(a)内圧0.3 Pa、(b)内圧3 Paにおける Fe₂O₃薄膜の表 面像を示す。走査範囲は1×1 μ m²とした。(c)に内圧0.3 Pa における黒線部のラインプロファイルを示す。グレイン を2次元的に円と仮定してその半径を求めると、(a)では 約80 nm, (b)では約41 nm であった。平均面粗さ Ra は(a)で は1.11 nm、(b)では1.05 nm であった。一つのグレインの 表面に着目すると、内圧0.3 Pa ではグレインが高さ0.35 ~ 0.40 nmのステップを持って成長しているのに対し、内圧 3 Pa ではステップが観測できなかった。従って,内圧0.3 Pa の方が理想的な成膜条件に近いと考えている。Fe³⁺を 得るためには、酸素分圧0.06Pa で十分であることからも わかる。



図2. Fe₂O₃薄膜の表面像 (a)内圧0.3 Pa、(b)内圧3 Pa の表面像。 粒子が島状に観測された。平均面粗さ *Ra*は(a)では1.11 nm、(b) では 1.05 nm であった。(c)に、(a)の黒線部のラインプロファイ ルを示す。

図3に Fe₂O₃薄膜の20- θ パターンを示す。どちらの内圧 においても(1-102), (2-204)面で基板ピークの低角側に薄 膜ピークを観測した。格子間隔を(2-204)面より算出し たところ、どちらも 0.365 nm であり、Fe₂O₃のバルクの 値とほぼ一致した^{IA}。2 θ の値が47.18°付近では X 線の K_{β} によるピークを観測した。



図3. Fe₂O₃薄膜の2θ-θパターン:赤線は内圧0.3 Pa、黒線は3.0 Paを示す。基板ピーク(□)の低角側に薄膜ピーク(●)、X線の K_β によるピーク(↓)を観測した。

4. まとめ

r面サファイア基板上にマグネトロンスパッタ法 を用いて Fe₂O₃薄膜を作製し、最適な成膜条件の探 索を行った。成膜条件の内圧を0.3、3 Paと変化させ た。表面像より、平均面粗さ Raはそれぞれ1.11 nm、 1.05 nmであった。内圧0.3 Paでは高さ0.35 ~ 0.40 nm のステップを持って成長していたのに対して、内圧 3 Paではステップが観測できなかった。従って、内 圧0.3 Paの方が理想的な成膜条件に近い。X線回折よ り20-0パターンを評価した。どちらの内圧において も(1-102), (2-204)面で基板ピークの低角側に薄膜 ピークを観測した。格子間隔を(2-204)面より算出し たところ、0.365 nm であり、バルクの値とほぼ一致 した。

5. 参考文献

 W. H. Meiklejohn and C. P. Bean, Phys. Rev. 5 (1956) 1413-1414.
N. Iwata, T. Kuroda and H. Yamamoto: Appl. Phys. Lett. 51(2012) 11PG12
H. Mashiko et.al., Jpn. J. Appl. Phys. 51 (2012) 11PG11
G. Rollmann, A. Rohrbach, P. Entel, and J. Hafner: PHYSICAL

REVIEW B 69, 165107 (2004)