

C-16

DC-RF マグネトロンスパッタリング法による $\text{YAlO}_3(001)$ 上に成膜した $(\text{Cr}_{1-x}\text{Fe}_x)_2\text{O}_3$ 薄膜の作製と評価Preparation and Evaluation of $(\text{Cr}_{1-x}\text{Fe}_x)_2\text{O}_3$ Thin Films Formed on $\text{YAlO}_3(001)$

by DC - RF Magnetron Sputtering Method

○榎本翼, 福井慎二郎, 平戸剛志, 小野寺巧, 永田知子, 山本寛, 岩田展幸

Tsubasa Enomoto, Sinjirou Fukui, Tsuyosi Hirato, Takumi Onodera, Tomoko Nagata, Hiroshi Yamamoto, Nobuyuki Iwata,

Abstract: We prepare Cr_2O_3 , $(\text{Cr}_{0.98}\text{Fe}_{0.02})_2\text{O}_3$ and $(\text{Cr}_{0.50}\text{Fe}_{0.50})_2\text{O}_3$ thin films on $\text{YAlO}_3(001)$ substrate. The size of the grains of $(\text{Cr}_{0.98}\text{Fe}_{0.02})_2\text{O}_3$ thin film grown on YAlO_3 substrate was about 4 times larger than those of Cr_2O_3 thin film, and the trenches, which appear between grains boundary, are suppressed by less than 50%. From the results of $2\theta - \theta$ spectra, the calculated lattice constant of out-of-plane of $(\text{Cr}_{0.98}\text{Fe}_{0.02})_2\text{O}_3$ and $(\text{Cr}_{0.50}\text{Fe}_{0.50})_2\text{O}_3$ thin films 0.364 nm, which is same as that of Cr_2O_3 thin film, and 0.367 nm, which is 1.1% larger than that of at Cr_2O_3 thin film.

1. 背景

本研究の最終目的は、強磁性体(Ferromagnetic : FM)と電気磁気効果を示す反強磁性体(Antiferromagnetic : AFM)を組み合わせ、電場により磁化を反転させることである。FM/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。電場による磁化反転を実現させるためには、大きな H_{EB} を必要とする。 H_{EB} は AFM 最表面のスピンの大きさ S_{AF} に比例するため、大きな H_{EB} を得るためには S_{AF} が大きい材料が必要である。我々は Cr_2O_3 に着目した。 Cr_2O_3 はコランダム構造を有する AFM 絶縁体であり、電気磁気 (Magnetoelectric Effect : ME) 効果を示す物質である。図 1 に Cr_2O_3 の結晶面及び結晶構造を示す。

電流の原因となる。このリーク電流が電場をかける際の妨げになってしまい H_{EB} を大きくすることができなくなってしまう。

2. 目的

本研究では、格子ミスマッチを小さくし、溝の発生を抑制するために、 $\text{YAlO}_3(\text{YAO})(001)$ 基板を用い、 Cr_2O_3 に Fe をドーブした $(\text{Cr}_{1-x}\text{Fe}_x)_2\text{O}_3$ 薄膜を作製した。成膜した $(\text{Cr}_{1-x}\text{Fe}_x)_2\text{O}_3$ 薄膜の結晶構造解析について報告する。

3. 実験方法・条件

YAO 基板をアセトン 5, 15 min、エタノール 5 min で超音波洗浄を行った後、 1050°C 、12 h 大気雰囲気中でアニール処理を行った。その後、YAO 基板最表面に存在する AlO_2 層をエッチングするため、12M の NaOH 水溶液に 15 分浸漬させ、その後 1M の NaOH 水溶液に 5 分浸漬させた。その間超音波を印加した。エッチング後、純水で洗浄し、エタノールで 5 分超音波洗浄を行った。成膜には DC-RF マグネトロンスパッタ法を用いて $(\text{Cr}_{1-x}\text{Fe}_x)_2\text{O}_3$ 薄膜の成膜を行った。表 1 に成膜条件を示す。Cr、Fe 金属ターゲットに同位相で RF 電力を投入し、DC 電流を重畳させた。Cr ターゲットと基板との関係は $90^\circ(\text{off-axis})$ 、Fe ターゲットと基板は対向関係(on-axis)とした。

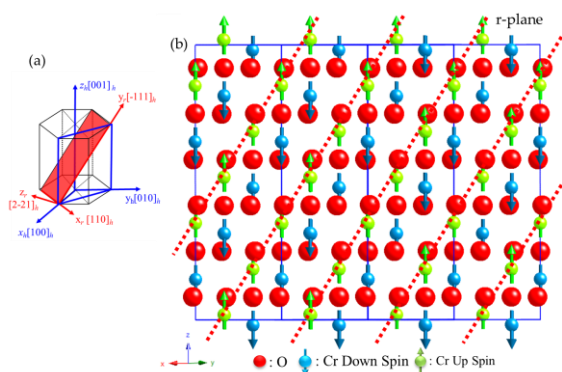


図 1. Cr_2O_3 の結晶面及び結晶構造(a)結晶面(b)結晶構造(a)の a 面(11-20)を垂直方向から見た図が(b)の結晶構造の図である。点線が r 面(1-102)である。丸は O 原子、矢印付きの丸は Cr の原子を示し、矢印はスピン方向を示している。スピンをみると r 面では 2 次的に強磁性的配列をしていることがわかる。

r 面の最表面は Cr スピンが 2 次的に強磁性配列する面であり、大きな H_{EB} を得られる可能性を持つ。しかし、問題点としてサファイア基板とは約 4% の大きな格子ミスマッチにより、薄膜に深い溝が発生しリーク

表 1 (Cr_{1-x}Fe_x)₂O₃ の成膜条件

基板温度(°C)	580
O ₂ /Ar (ccm)	2 / 8
成膜時間(min)	120
Cr, Fe ターゲット(inch)	2
成膜時圧力(Pa)	0.3
Cr ターゲットへの投入電力と基板との位置関係	DC : 0.04(A)、RF : 80(W) off-axis
Fe ターゲットへの投入電力と基板との位置関係	DC : 0.1, 0.5(A)、RF : 80(W) on-axis

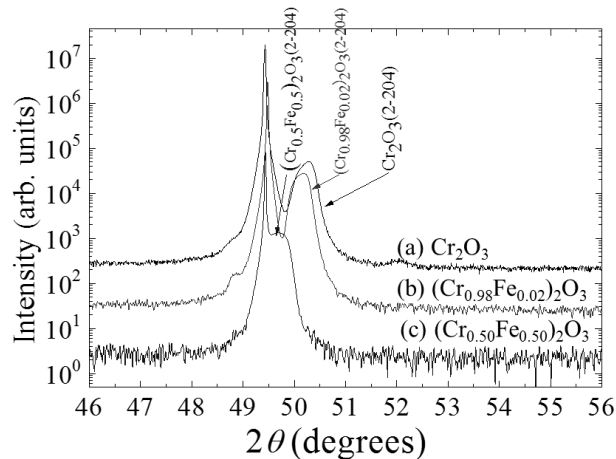


図2 YAO 基板上に成膜した(a) Cr₂O₃, (b) (Cr_{0.98}Fe_{0.02})₂O₃, (c) (Cr_{0.50}Fe_{0.50})₂O₃ の 2θ-θ パターン。(a) Cr₂O₃, (b) (Cr_{0.98}Fe_{0.02})₂O₃, (c) (Cr_{0.50}Fe_{0.50})₂O₃ 薄膜は基板ピークより広角側に現れた

YAO 基板上での (Cr_{0.98}Fe_{0.02})₂O₃ 薄膜の格子間隔は (Cr_{0.50}Fe_{0.50})₂O₃ 薄膜と比較して基板に対して格子ミスマッチが大きい結果となった。しかし、グレインサイズが大きく平坦な表面が得られた。Fe 原子を少量ドーピングすることで膜面直方向の格子間隔に乱れが生じ、隣接するグレインとコアレスセンスしやすい環境が作り出されたのではないかと推測している。Cr₂O₃ と Fe₂O₃ の成長最適条件が異なるため、Fe ドープ量を増加させると 3 次元成長が促進されたと考えている。2θ-θ パターンより (Cr_{0.98}Fe_{0.02})₂O₃ 薄膜ではほぼ Cr₂O₃ 薄膜とほぼ格子間隔は同じであった。

5. まとめ

YAO 基板上に成膜した (Cr_{0.98}Fe_{0.02})₂O₃, (Cr_{0.50}Fe_{0.50})₂O₃ 薄膜では図 1 より、鉄のドーピング量が増加するにつれて溝が深くなり、基板に対するミスマッチは小さくなった。しかし、(Cr_{0.98}Fe_{0.02})₂O₃ の方がグレインサイズが大きく平坦な表面が得られた。Cr₂O₃, (Cr_{0.98}Fe_{0.02})₂O₃ 薄膜と比べると (Cr_{0.98}Fe_{0.02})₂O₃ 薄膜ではグレイン面積が約 4 倍大きくなっていた。かつ溝の面積が 50%以下に抑えられている事を確認できた。

6. 参考文献

[1] X.Chen et al., Appl. Phys. Lett. **89**(2006)202508
 [2] Ch. Binek, et al. J. Magn. Magn. Mater. **234** (2001) 353.
 [3] M. Fiebig: J. Phys. D **38** (2005) R123.
 [4] T. Kuroda, et al., Trans. Mater. Res. Soc. Jpn. **37** (2012)
 [5] R.Diehl and G. Brandt, Mat.Res.Bull.**10**(1975)

4. 結果・考察

図1に YAO 基板に成膜した(a) Cr₂O₃, (b) (Cr_{0.98}Fe_{0.02})₂O₃, (c) (Cr_{0.50}Fe_{0.50})₂O₃ 薄膜の表面象を示す。Fe ドープ量は SEM-EDX にて測定した。(b)、(c)薄膜のラインプロファイルより、鉄のドーピング量が増加するにつれて 1(b),(c) は 24.9nm、28.8nm と溝が深くなった。(a)、(b)薄膜と比べると(b)ではグレイン面積が約4倍大きくなっていた。かつ溝の面積が50%以下に抑制されていた。図2に YAO 基板上に成膜した(a) Cr₂O₃, (b) (Cr_{0.98}Fe_{0.02})₂O₃, (c) (Cr_{0.50}Fe_{0.50})₂O₃ の 2θ-θ パターンを示す。図 2 より (a),(b),(c)は基板ピークより広角側に現れた。(a),(b),(c) の面直格子間隔は 0.363、0.364、0.367 nm であった。

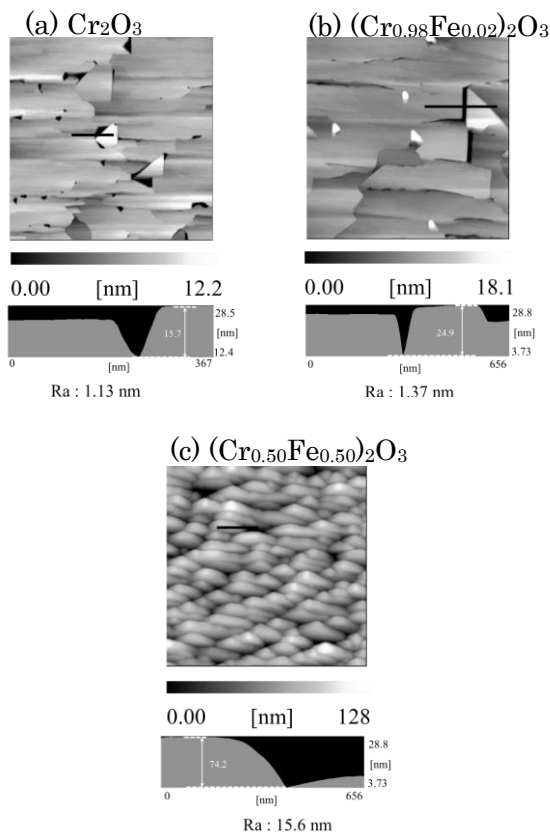


図 1 YAO 基板上に成膜した(a) Cr₂O₃, (b) (Cr_{0.98}Fe_{0.02})₂O₃, (c) (Cr_{0.50}Fe_{0.50})₂O₃ の表面象。(a)、(b)を比べると(b)ではグレインが約4倍大きくなっていた。かつ溝の面積が48%抑制されていた。