

C-8

パルスレーザー堆積法及び DC-RF マグネトロンスパッタリング法による Cr₂O₃ 薄膜の作製と結晶構造解析

Fabrication and crystal structure analysis of Cr₂O₃ thin films
grown by pulsed laser deposition method and DC-RF magnetron sputtering method

久保田幸也¹ 平戸剛志² 永田知子³ 有沢俊一⁴ 立木実⁴ 岩田展幸³

Yukiya Kubota¹, Tsuyoshi Hirato², Tomoko Nagata³, Shunichi Arisawa⁴, Minoru Tachiki⁴, Nobuyuki Iwata³

Abstract: Cr₂O₃ thin films are grown on r-plane sapphire substrates using pulsed laser deposition (PLD) method and DC-RF magnetron sputtering method. The full width at half maximum of rocking curve around Cr₂O₃(2-204) Bragg peak is 0.73° and 0.68° for the films fabricated by PLD and sputtering methods respectively.

1 背景

本研究の目的は、強磁性体(FM)と電気磁気(ME)効果を持つ反強磁性体(AFM) Cr₂O₃の積層膜を作製し、電場により FM 相の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り磁化曲線がシフトすることが確認されている。この磁化曲線のシフトは、交換バイアス磁場(H_{EB})と呼ばれている^[1]。 H_{EB} の大きさは AFM 最表面のスピンの大きさ S_{AF} に比例するため^[2]、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。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ため、 S_{AF} が小さい^[2-3]。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 H_{EB} を得る可能性がある。

これまでに DC-RF マグネトロンスパッタリング法で r 面サファイア基板上に Cr₂O₃ 薄膜を成膜し個々のグレイン上では原子レベルで平坦な膜を作製できたが、Al₂O₃ 基板と Cr₂O₃ の格子整合は約 4% と非常に大きく薄膜に深い溝が発生している^[2]。深い溝は電界印加時にリーク電流の原因となる。一方、パルスレーザー堆積(PLD)法を用いると、反射型高速電子線回折(RHEED)において、反射光の振動が観測されるほどの良質な膜が報告されている^[4]。

2 目的

本研究では、スパッタリング法及び PLD 法を用いて Cr₂O₃ 薄膜を作製し溝がなく膜全体が原子レベルで平坦な膜の作製を目指した。

3 実験方法

サファイア基板をアセトンで 5 分、15 分、エタノールで 5 分間、超音波洗浄を行い、1050°C、大気中で 12 時間のアニール処理を行った。この基板上に DC-RF マグネトロンスパッタリング法および PLD 法で Cr₂O₃ 薄膜を作製した。PLD 法の成膜条件を表 1 に示す。成膜後酸素 0.05MPa で降温を行なった。RF マグネトロンスパッタリング法での条件を表 2 に示す。成膜後酸素 0.1MPa で降温を行なった。

表 1 PLD を用いた成膜条件

成膜方法	PLD
ヒーター温度	600
O ₂ (ccm)	0.2
成膜時間Cr ₂ O ₃ (min)	30
Crターゲット直径(inch)	1
基板間距離(cm)	5
内圧(Pa)	0.1
レーザー強度(mJ)	160
レーザー周波数(Hz)	10

表2 マグネトロンスパッタリングを用いた成膜条件

成膜方法 DC-RFマグネトロンスパッタリング	
基板温度	580
O ₂ /Ar (ccm)	2/8
成膜時間Cr ₂ O ₃ (min)	120
Crターゲット直径(inch)	2
内圧 (Pa)	0.3
DC (A)	0.04
RF (W)	80

表面像の評価には、走査型プローブ顕微鏡(SPM)を用いて DFM(Dynamic Force Mode)にて測定を行なった。結晶構造の評価には、X線回折装置(D8 DISCOVER: BRUKERAXS)を用いて 2θ-θ 測定、ロックインカーブ(RC)測定を行なった。

4 結果・考察

図1に PLD 法およびスパッタリング法にて成膜した Cr₂O₃ 薄膜の 2θ-θ プロファイルを示す。どちらの成膜方法を用いても Cr₂O₃ が成膜されていることが確認できた。

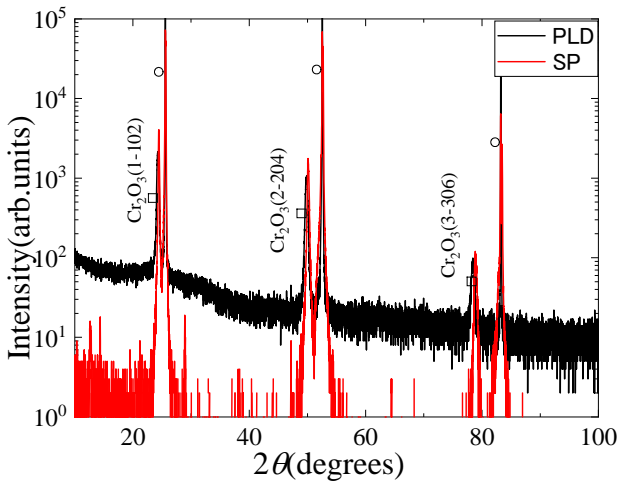


図1 スパッタリング法および PLD 法で成膜した Cr₂O₃ 薄膜の面直方向 2θ-θ プロファイル。薄膜ピークを□、基板ピークを○で示す。r 面配向 Cr₂O₃ のピークが観測された。

PLD 法で成膜した Cr₂O₃ 薄膜(2-204)ピークにおいて RC 測定を行なった。半値幅はスパッタリング法では 0.68°、PLD 法では 0.073°であった。PLD 法では結晶性の高い膜の作製に成功した。

図2に PLD 法(a)およびスパッタリング法(b)により成膜した Cr₂O₃ 薄膜の表面像とラインプロファイルを示す。平均面粗さ(Ra)は PLD 法において 0.74nm、

スパッタリング法で 1.3nm であった。スパッタリング法では個々のグレインは原子レベルで平坦であるものの、グレイン間に深い溝がある。これに対して PLD 法による成膜では表面におよそ 15nm のドロップレットが付着したものの、深い溝がなく膜全体が原子レベルで平坦な Cr₂O₃ 薄膜の作製に成功した。また[-111]方向に沿って異方性を持って成長していた。

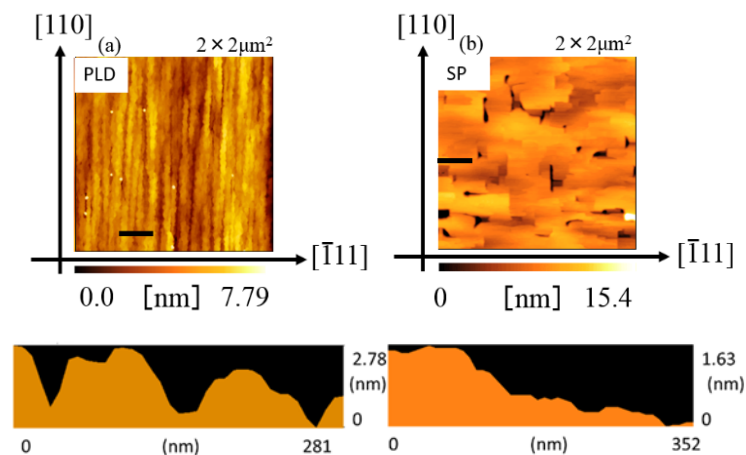


図2 PLD 法(a)およびスパッタリング法(b)で成膜した Cr₂O₃ 薄膜の DFM 像及びラインプロファイル

5 まとめ

r 面サファイア基板上に Cr₂O₃ 薄膜を PLD、DC-RF マグネトロンスパッタリング法により成膜し、表面観察及び X 線回折測定を行なった。PLD 法を用いた場合でもスパッタ法と同様に Cr₂O₃ 薄膜の成膜に成功し、スパッタ法による成膜にくらべ PLD 法を用いた場合において半値幅、及び平均面粗さが改善され原子レベルで平坦な溝のない膜が作製できた。

6 参考論文

- [1]W.H Meiklejohn and C.P.Bean, Phys. Rev. **105**(1957)904.
- [2]N. Iwata, *et al.*, Jpn. J. Appl. Phys. **51**(2012)11PG12.
- [3]N. Iwata, *et al.*, Mater. Res. Soc. Symp. Proc. **1454**(2012)33.
- [4]H. Mashiko *et al.*, Jpn. J. Appl. Phys. **51**(2012)11PG11.