

有機金属分解法における熱処理工程による表面形状と結晶解析

Analysis for surface morphology and crystal structure of garnet films

prepared by metal organic decomposition method depending on thermal treatment process

○村田耕樹¹, 芦澤好人², 中川活二²*Koki Murata¹, Yoshito Ashizawa², Katsuji Nakagawa²

Garnet films prepared by the metal organic decomposition (MOD) method show different surface morphology and crystal structure depending on thermal treatment process. We studied such dependency and found some differences, especially for crystallization annealing temperature on surface roughness and XRD spectrum. It was studied that the surface roughness and XRD spectrum depended on the temperature for crystallization, but the thermal annealing condition which led to smooth roughness could not yet be found.

1. 研究背景・目的

高度情報化社会である現在、情報量が指数関数的に増加しており、情報処理を行う電子デバイスの省電力化が課題である。その課題解決にスピン波を用いた新しい低消費電力デバイスの実現が提案されている。スピン波とは磁気モーメントの歳差運動が交換相互作用によって伝搬する現象であり、酸化物磁性体中を電子の移動を伴わないためジュール損失を抑制することが可能である。

酸化物フェリ磁性体であるイットリウム鉄ガーネット (YIG)^[1]はスピン波のダンピング定数が小さくスピン波伝搬用材料として注目されている。そこで我々は YIG をホストガーネットとし、異なる組成材料でスピン波デバイスの機能向上を目指している。成膜方法は溶液の種類が豊富なため組成のカスタマイズが容易である有機金属分解 (MOD) 法を採用した。その成膜プロセスと条件を Fig. 1 に示す。ところが MOD 法で作製した薄膜表面を原子間力顕微鏡 (Atomic Force Microscope : AFM) で観測したところ、仮焼成後と本焼成後で Fig. 2, Fig. 3 に示すように、10 μm 四方で表面形態に差異が見られた。

本焼成後のライン測定結果を Fig. 4 に示す。この突起は約 30 nm であり、スピン波の励起・伝搬に適さない。そこで磁性ガーネットの薄膜表面を平滑化するプロセスを確立するために、MOD 法の熱処理過程における薄膜の表面形状及び結晶構造を評価行った。

2. 実験方法

薄膜はイットリウムの一部をビスマスで置換した Y:Bi:Fe = 2 : 1 : 5 の比で構成された MOD 溶液を用い、基板には Gd₃Ga₅O₁₂ (GGG) 単結晶基板を使用した。膜は Fig. 1 に示すように、溶液を滴下した後に基板にスピコートし、溶液を均一に塗布してから②乾燥、③仮焼成、④本焼成の順で熱処理を行った。MOD 成膜原料の TG および DTA 曲線を Fig. 5 に示す。TG が急激に減少する 100°C 近傍で揮発性分の蒸発が起こっていると考え、100°C のホットプレート上に 10 分間置き、乾燥を行った。TG 曲線は 100°C 以上で徐々に減少しているため、原料のゆっくりした分解が起こっていると推測し、450°C で 10 分間の仮

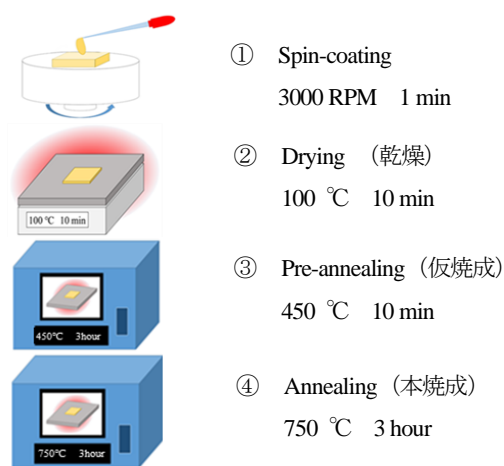


Figure 1. Preparation process of MOD.

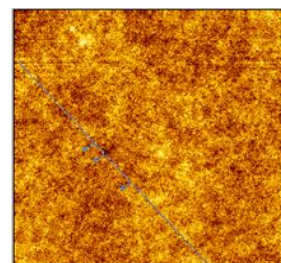


Figure 2. Surface morphology after pre-annealing.

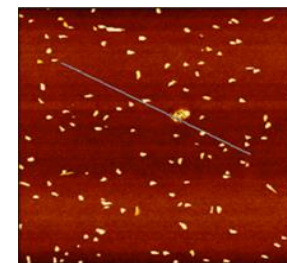


Figure 3. Surface morphology after annealing.



Figure 4. Roughness of a cross section after annealing

焼成を行った。また、DTA 曲線では、400℃と500℃弱で発熱が見られるので、結晶化のための本焼成温度を750℃、3時間とした。本焼成後、電気炉内が室温になってから膜を取り出している。

本焼成条件による表面ラフネスと XRD スペクトルを比較するために、実験1) 本焼成温度750℃にて、本焼成時間を従来の3時間から90, 45, 23, 12, 6, 0分に減少し、比較した。また、実験2) 本焼成時間3時間を一定とし、本焼成温度を550, 600, 650, 750℃の場合で作製し、表面形状評価をAFM、結晶構造解析をX線回折(X-ray Diffraction: XRD)法を用いて比較した。

3. 実験結果

実験1)では、どの本焼成時間においても膜表面に数10nm程度の突起物構造が確認され、Fig. 6に示すXRDスペクトルの結果も大きな差異は見られなかったため、昇温後すぐに突起構造が形成されることが分かった。

実験2)では、本焼成温度550℃と600℃では膜表面には突起構造が出ず、650℃は750℃と同様に生じた。XRDスペクトルでは、本焼成温度750℃と650℃の条件で同程度に結晶化されていることが分かるが、本焼成温度550℃と600℃では強度が低く、強度ピークが少しシフトしているようにも見える。そのため、本焼成温度600℃以下では、結晶化が不十分であったり、結晶生成物の変化や結晶に取り込まれなかった元素の析出の可能性も考えられる。

4. まとめ

薄膜結晶化熱処理(本焼成)後、約30nm_{p-p}の表面突起が発生し、本焼成条件を変更し、XRDによる結晶性の評価とAFMによる表面ラフネスを評価した。従来の本焼成温度750℃では、本焼成時間による差異は発生せず、本焼成達成昇温時には表面突起が発生していることがわかった。一方、本焼成時間を3時間に固定した場合は、本焼成温度を550℃あるいは600℃に低下したとき、膜表面には突起が発生せず、XRDスペクトルも結晶化度の低下が見られた。現時点で、表面突起の原因が、結晶物の突起なのか、あるいは結晶から偏析した残留物か、その他の生成物かの判別が付いていないが、今後TEMを用いた微細構造解析により原因を究明し、表面平坦性の良い薄膜形成条件を見出したい。

5. 参考文献

[1] A A Serga, A V Chumak and B Hillebrands: J. Phys. D: Appl. Phys. 43 (2010) 264002.

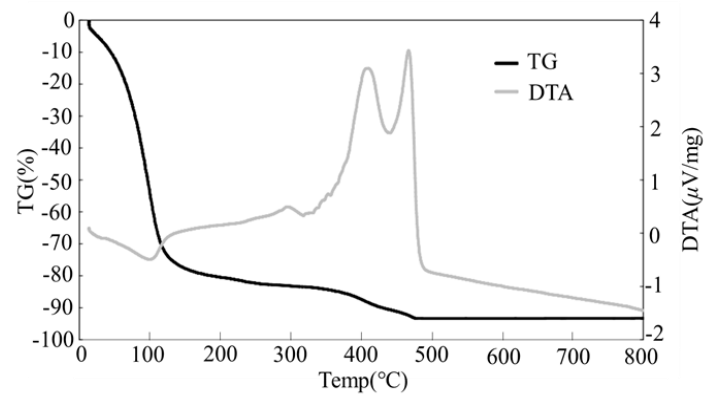


Figure 5. TG-DTA of MOD solution

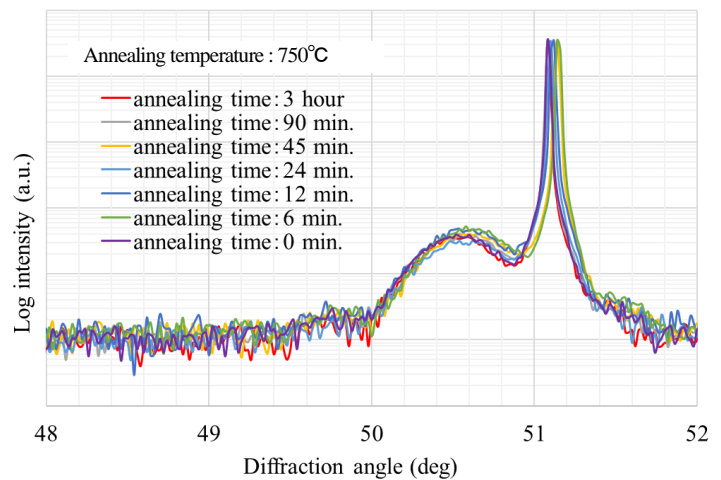


Figure 6 XRD spectrum of the films depending on the annealing time.

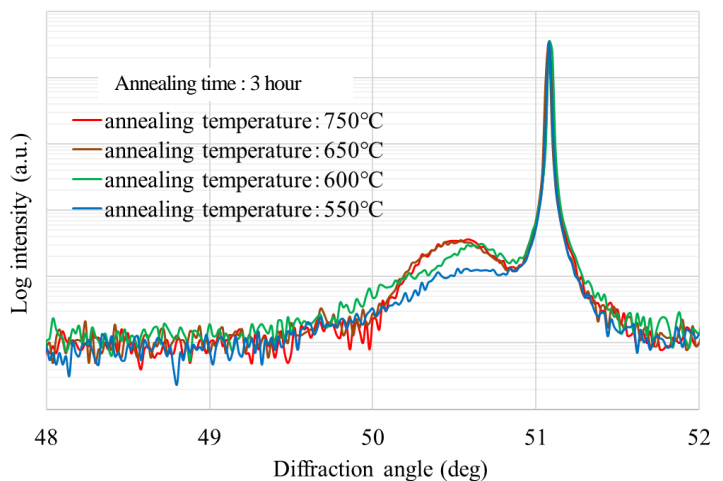


Figure 7 XRD spectrum of the films depending on the annealing temperature.