

平成27年 3月31日

プログラム名：無充電で長期間使用できる究極のエコIT機器の実現

PM名：佐橋 政司

プロジェクト名：交差相関電圧書込み磁気記録プロジェクト

委 託 研 究 開 発

実 施 状 況 報 告 書 ( 成 果 )

平成26年度

研究開発課題名：

酸化物交換結合積層膜の開発

研究開発機関名：

筑波大学

研究開発責任者

喜多 英治

## 当該年度における計画と成果

### 1. 当該年度の担当研究開発課題の目標と計画

本研究開発課題では、電気磁気効果による交換バイアスを介した磁化制御を実現するために、静的局所電界が印加可能となる絶縁性強磁性垂直磁化膜と  $\text{Cr}_2\text{O}_3$  (0001)との酸化物交換結合積層膜の開発を行う。室温に対して十分高いキュリー温度を有し、かつ  $\text{Cr}_2\text{O}_3$  (0001)との構成整合性を持つ材料として高品位な六方晶フェライト(0001) 薄膜およびスピネル型コバルトフェライト(111) 薄膜を  $\text{Cr}_2\text{O}_3$  (0001)下地層上に成長させ、電気磁気効果による交換バイアスを実証することを目標としている。コランダム型構造を有する  $\text{Cr}_2\text{O}_3$  の(0001)面上にエピタキシャル成長可能な絶縁性強磁性垂直磁化膜の開発を行ない、交換結合を確認することをステージゲートまでに達成する予定である。このため  $\text{Cr}_2\text{O}_3$  との交換結合の検証に先立って、六方晶/斜方晶(0001)基板の上に良質な  $\text{Co}_x\text{Fe}_{3-x}\text{O}_4$  (111)や M 型 Ba フェライト(0001)薄膜の成長を試み、成膜条件の最適化を図ることとした。

同一プロジェクト内の佐橋グループおよび白土グループにおいては、すでにスパッタリング法による高品位な  $\text{Cr}_2\text{O}_3$  薄膜の成膜手法が確立されているため、我々のグループもこの成膜技術に適合し易い手法を用いて絶縁性強磁性垂直磁化膜の成膜手法を確立する必要が有ることから、反応性スパッタリング法を採用することとした。M 型 Ba フェライト(0001)薄膜のスパッタリングによる成膜に関しては、先行研究によれば比較的高いプロセス温度 (700-800 以上) が予想され、現有設備での成膜は困難であることが予想された。そこで初年度は Ba フェライトを成膜するための準備として成膜装置の仕様の策定を行なうこととした。一方、 $\text{Co}_x\text{Fe}_{3-x}\text{O}_4$  (111)( $x=0.75$ )薄膜の成膜については、我々のグループにおいてすでに実績のある  $\text{Co}_x\text{Fe}_{3-x}\text{O}_4$  (001)薄膜の成膜条件を参考に、 $-\text{Al}_2\text{O}_3$ (0001)基板上に反応性 rf スパッタリング法を用いて成膜することとし、その成膜条件の最適をめざした。反応性 rf スパッタリング法をもちいた酸化物薄膜の成長においては、ターゲット組成、酸素導入量、そして成膜時の基板温度が重要であることから、これらの条件を変化させ生成された薄膜の飽和磁化と磁気異方性という 2 つの物性値を品質の指標として用いる。

### 2. 当該年度の担当研究開発課題の進捗状況と成果

#### 2-1 進捗状況

M 型 Ba フェライト(0001)薄膜のスパッタリングによる成膜に関して先行研究を調べた所、本計画で実施予定をしているスパッタリング法によるものも見受けられ、バルクに近い特性を示す成膜手法も存在することを確認した。一方  $\text{Co}_x\text{Fe}_{3-x}\text{O}_4$  (111)薄膜の成膜については、 $\text{Co}_x\text{Fe}_{3-x}\text{O}_4$  (001)薄膜の成膜条件を参考に、ステップ処理を施された  $-\text{Al}_2\text{O}_3$ (0001)基板上に 40 nm の膜厚の薄膜を成膜した。その際、基板温度 500 で反応ガスとして導入した酸素の流量は 6 sccm とした。これらの成膜条件は、 $\text{Co}_x\text{Fe}_{3-x}\text{O}_4$  (001)薄膜成膜時に、最大磁化を示しかつ最大の垂直磁気異方性定数を示す成膜条件である。初年度は膜厚 40 nm の試料を作製し、構造と磁性の評価方法について検討し、成膜条件の最適化を行うための準備を進めた。

#### 2-2 成果

$\text{Co}_x\text{Fe}_{3-x}\text{O}_4$  (111)薄膜は、飽和磁化が  $310 \text{ emu/cm}^3$  とバルク ( $420 \text{ emu/cm}^3$ ) に比べて 2-3 割程度小さな値であった。現時点で磁化の減少した理由については不明であるが、界面に存在する高い密度の逆位相境がその原因である可能性が高い。構造評価を行ったところ、 $\text{Co}_x\text{Fe}_{3-x}\text{O}_4$  (111)の成長方向の面間隔は 0.5%程度伸びており、反対に面内方向の面間隔は 1%程度縮んでいることがわかった。この格子変形は等積変形でないことがわかる。基盤と膜とのエピタキシャル方位関係は  $\text{Co}_x\text{Fe}_{3-x}\text{O}_4$  (111)[01-1]// $-\text{Al}_2\text{O}_3$  (0001)[10-10]である。

一方面内、面直の磁化曲線は、ほぼ同じ形をしており、等方的な磁化過程であることが確認された。したがって、 $K_{\text{u,eff}} \sim 0 \text{ Merg/cm}^3$  である。反磁場を考慮すると、垂直磁気異方性エネルギーは  $K_{\text{u}} < 1 \text{ Merg/cm}^3$  である。バルクの各定数を用いて磁気弾性効果から推測される一軸性の異方性の値は、前述の歪みに対して  $K_{\text{u}} \sim 4 \text{ Merg/cm}^3$  であることから  $1/5 \sim 1/10$  程度小さな値であることがわかる。

### 2-3 新たな課題など

$-\text{Al}_2\text{O}_3$  (0001)上に成長した  $\text{Co}_x\text{Fe}_{3-x}\text{O}_4$  (111)薄膜の磁化がバルクと比べて小さくなることは既に報告されていたが、本研究の場合は比較的バルクに近い値であった。今後この磁化の減少の原因がどこにあるのか明らかにする必要がある。まずは、飽和磁化を目標値として成膜条件の最適化を進める。特に、基板温度は磁性を大きく変化させるパラメータであると認識しており、この点を詰めている必要があると考える。さらに最適な条件が見出された後、膜厚依存性を詳細に調べ界面付近の効果を明確にする必要がある。

今後  $-\text{Al}_2\text{O}_3$  (0001)を  $\text{Cr}_2\text{O}_3$  (0001)に置き換えて交換結合の制御を目指していくことになるため、 $-\text{Al}_2\text{O}_3$  (0001)と  $\text{Co}_x\text{Fe}_{3-x}\text{O}_4$  (111)の界面構造についても明らかにしていく必要がある。とくに格子不整合が大きいため( $\sim 30\%$ )、界面での原子配置は複雑となっていることが予想される。交換結合の理論的な解釈をサポートするためにもこの界面構造の評価方法の確立を並行して進めていく必要があると考える。

## 3 . アウトリーチ活動報告

なし。