

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

委託研究実績報告書（成果）

研究実施期間：

平成 2 7 年 4 月～平成 2 8 年 3 月

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

# I 実施期間における計画と成果

## 1. 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(CFO)(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あることから、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°C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。Ba フェライト薄膜を成膜するため、初年度に成膜装置の仕様の策定を行い、2年度に装置の立ち上げと試料作製を行うこととした。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、 $\alpha\text{-Al}_2\text{O}_3$ (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. 担当研究開発課題の達成状況と成果

### 2-1 達成状況

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、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。成膜時の基板温度が重要な因子となっていることから装置設計においても、基板温度の変化領域が大きく取れるように配慮した。

一方 Co フェライト薄膜については(001)薄膜では  $\text{Co}_x\text{Fe}_{3-x}\text{O}_4$  化学量論的組成より少し Fe リッチ側 ( $X=0.75$  付近)で大きな磁気異方性の実現できる事が解っている。以後は  $\text{Co}_x\text{Fe}_{3-x}\text{O}_4$  と表せる組成の試料も CFO と表記する。CFO(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  $\alpha\text{-Al}_2\text{O}_3$ (0001)基板上に 40 nm の膜厚の薄膜成膜を開始した。 $\text{Co}_x\text{Fe}_{3-x}\text{O}_4$  (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した成膜条件、基板温度 500°C、酸素ガス流量 6 sccm を成膜条件とした。2年度は作製条件をさらに広げて最適化を試みた。基板温度は 500°Cから 300-600°C、酸素ガス流量は 6 sccm から 2-10 sccm と範囲を広げた。

CFO(111)薄膜において最適化を行い、大きな垂直磁気異方性が実現できる条件が得られたので、次のステップとして  $\text{Cr}_2\text{O}_3(001)$  単結晶薄膜上に CFO (111) 薄膜の成長を行い、交換結合膜を調べた。すでに良質の薄膜成長が行われている東北大学佐橋研究室から  $\text{Cr}_2\text{O}_3(001)$  単結晶薄膜の供給を得て、その上に CFO (111) の結晶成長を行った。CFO(111) 薄膜の膜厚を 10nm 程度としたため、飽和磁化はバルクより多少小さい。作製した CFO(111)/ $\text{Cr}_2\text{O}_3$  二層膜について常温から磁場冷却を施し、磁化過程を測定して交換結合の有無を確かめた。

## 2-2 成果

CFO(111) 薄膜成長における基板温度の効果を確かめた。まず酸素ガス流量を 6 sccm として、基板温度を 300-600°C の範囲で変化させた。高速反射電子線回折(RHEED)により結晶性を確認したところ、500°C 以上で良好な結晶成長が確認され、600°C において結晶性が最も良好であった。薄膜の飽和磁化は基板温度を上昇させると共に単調増加し、550°C 以上ではバルク値とほぼ一致した。次に基板温度 600°C において酸素流量の最適化を行った。酸素流量 2-3 sccm で単結晶成長するが、4-5 sccm では結晶性が低下し、多結晶成長を示した。6 sccm からは再び単結晶成長を確認した。飽和磁化は低酸素流量領域から次第に増加し、9 sccm 以上でバルクとほぼ同じ値を示した。10 sccm の方がやや大きな垂直磁気異方性を持つことが解った。この結果、垂直磁気異方性を優先した最適化条件は、酸素ガス流量 10 sccm、基板温度 600°C で実現されることがわかり、飽和磁化  $376 \text{ emu/cm}^3$  と垂直磁気異方性 ( $1.8 \times 10^6 \text{ erg/cm}^3$ ) を持つ薄膜が得られ、目標の一部を達成した。

作製した CFO(111)/ $\text{Cr}_2\text{O}_3$  二層膜について磁気特性を測定し、交換結合の有無を確かめた。交換磁気異方性を確認するため、340K (70°C) から磁場冷却を行い、50K で磁化曲線を測定した。保磁力のシフトの大きさは約  $\pm 900 \text{ Oe}$  程度あり、磁場冷却時の磁場の方向によって、シフトが反転した。このことから交換結合が存在することが解った。試料によってシフトの大きさが変化するが、100K 以下では交換結合が観測されることが判明し、(111) 試料において有効な磁気結合を見いだした。

六方 Ba フェライト薄膜成長のため、多元スパッタ装置を整備した。ターゲットは 6 種類を使用可能であり、基板温度が 700°C まで上昇可能である事を確かめた。H H27 年度は CFO(111) 薄膜の成長と最適化に注力したため、本格的な Ba フェライト薄膜成長は次年度に行うこととなった。

## 2-3 新たな課題など

なし。

## 3. アウトリーチ活動報告

特になし