



Magnetic properties of epitaxial ferrite thin films grown on a substrate with trigonal symmetry

著者	Ritesh Patel
発行年	2018
その他のタイトル	3回の対称性を持つ基板上に成膜したエピタキシャルフェライト薄膜の磁気特性
学位授与大学	筑波大学 (University of Tsukuba)
学位授与年度	2018
報告番号	12102甲第8779号
URL	http://hdl.handle.net/2241/00153876

氏名	Ritesh Patel
学位の種類	博士(工学)
学位記番号	博甲第 8779 号
学位授与年月日	平成 30年 6月 30日
学位授与の要件	学位規則第4条第1項該当
審査研究科	数理物質科学研究科
学位論文題目	

Magnetic properties of epitaxial ferrite thin films grown on a substrate with trigonal symmetry

(3回の対称性を持つ基板上に成膜したエピタキシャルフェライト薄膜の磁気特性)

主査	筑波大学教授	博士(工学)	柳原 英人
副査	筑波大学教授	博士(工学)	末益 崇
副査	筑波大学教授(連係大学院)	Ph.D.	宝野 和博
副査	筑波大学教授(連係大学院)	博士(工学)	三谷 誠司
副査	茨城工業高等専門学校校長	工学博士	喜多 英治

論文の要旨

審査対象論文では、実用材料としてよく知られているスピネル型および六方型の 2 種類のフェライトを良質なエピタキシャル薄膜として、3 回対称を有する単結晶基板上に成膜する手法についてまとめている。IoT やクラウドコンピューティングの普及に伴う情報流通量の爆発的拡大を迎え、情報通信やデータ処理能力の高速化とともに、膨大なデータの記憶を担うハードディスクドライブ(HDD)の高密度が求められている。今日 HDD の高密度化を実現しうる様々な手法について研究開発がなされているが、なかでも近年提案された Cr_2O_3 の電気磁気効果(ME)を利用した交換バイアスによる磁化反転技術は、その実現に向けて多くの解決すべき課題をもつものの、大きな可能性を潜在的に有している。本論文の著者は、この技術に注目し、ME 型記録媒体の磁気記録層に不可欠な材料である「垂直磁気異方性を有する絶縁性強磁性薄膜」の成膜手法を詳細に検討している。

大きな一軸の磁気異方性を示しうるフェライトとして、スピネル型のコバルトフェライトと典型的な六方型フェライトであるバリウムフェライトを挙げ、これら 2 つの物質を Cr_2O_3 と同じ結晶構造を持つ酸化物である $\alpha\text{-Al}_2\text{O}_3$ の(0001)面上に成膜しそれらの磁気特性について評価をおこなっている。これらのフェライトの薄膜は、これまでも多くの研究がなされてきたが、おしなべてその磁気特性、特に飽和磁化はバルクに比べて著しく劣っており、薄膜化に伴って磁性に顕に影響を及ぼす欠陥の存在が示唆されていた。論文中では、これらの材料のエピタキシャル薄膜を磁気記録媒体の作製に広く用いられている rf マグネトロンスパッタリング法を用いて成膜し、ターゲット組成、プロセス温度、酸素導入量などの成膜条件が薄膜の結晶構造、組成、磁化、および磁気異方性にどのように影響を与えるかについて丁寧に検討している。以下

それぞれのフェライト薄膜に関して著者が獲得した知見を挙げる。

1) α - $\text{Al}_2\text{O}_3(0001)$ 上に成長した $\text{Co}_x\text{Fe}_{3-x}\text{O}_4(111)$ エピタキシャル薄膜

良質な $\text{Co}_x\text{Fe}_{3-x}\text{O}_4(001)$ エピタキシャル薄膜を反応性 rf マグネトロンスパッタリング法で成膜した先行研究に倣って、焼結体ターゲットではなく、合金ターゲットを用いて成膜を試みている。Co:Fe=1:3(x=0.75)となる合金ターゲットを用いrfマグネトロンスパッタリングによる成膜を行う際に Ar に加えて反応ガスとなる O_2 を導入し、その O_2 導入量、成膜温度をパラメータとして得られた薄膜の構造、磁気特性を調べている。構造評価には反射式高速電子線回折(RHEED)、X線回折(XRD)、透過型電子顕微鏡(TEM)による断面像の観察をおこない、磁気特性に評価には、室温での磁化曲線と磁気トルク曲線の評価を行っている。その結果、成膜温度が 500°C 以上のときにはエピタキシャル成長することを見出している。さらにエピタキシャル方位関係についても明らかにしている。成膜時の酸素導入量は、飽和磁化と磁気異方性の両方の磁気特性に強く影響することを示している。また適切な酸素導入量のときにバルクのコバルトフェライトと同程度の飽和時を示すことも確認している。さらに最適な条件で作製した薄膜試料の磁化の膜厚依存性を調べることで、 α - $\text{Al}_2\text{O}_3(0001)/\text{Co}_x\text{Fe}_{3-x}\text{O}_4(111)$ 界面における磁気デッドレイヤーは $1.8 \pm 1.4 \text{ nm}$ であり、ほとんど存在していないと主張している。一方磁気異方性については、 α - $\text{Al}_2\text{O}_3(0001)$ 上に成長した $\text{Co}_x\text{Fe}_{3-x}\text{O}_4(111)$ エピタキシャル薄膜では、界面で格子不整合はほとんど解消されてしまい、十分なエピタキシャル歪は導入されず誘導される磁気異方性は比較的小さなものであったと説明している。

2) α - $\text{Al}_2\text{O}_3(0001)$ 上に成長した $\text{BaFe}_{12}\text{O}_{19}$ (BaM)(0001)エピタキシャル薄膜

1)の場合と異なり Ba-Fe 2 元系は全律非固溶のため、合金ターゲットをもちいて酸素を導入した反応性スパッタリングを行うことができない。そこで著者は $\text{BaFe}_{12}\text{O}_{19}$ 焼結体ターゲットおよび Ba 組成の高い焼結体ターゲットをもちいて1)と同様に成膜条件と磁性の関係を検討している。構造評価には RHEED, XRD に加えてラザフォード後方散乱スペクトル実験を実施し、組成と膜厚の定量評価を行っている。その結果、化学量論比に近い($\text{BaFe}_{12}\text{O}_{19}$)ターゲットを用いて成膜した場合、得られる酸化物膜は Ba 過多の Ba-Fe 酸化物になる傾向が見られた。いずれの条件で成膜した場合でも as-grown の状態では、磁化はほとんど発現しないことを確認している。さらに大気中で熱処理を行うことで、磁化が増大することを見出している。ここで著者は余剰の Ba の磁気特性に及ぼす影響について、結晶中に存在する Ba 酸化物が BaO として存在する場合と、六方フェライトによく見られる $\text{Ba}_2\text{Fe}_4\text{O}_7$ として存在する場合について、磁気特性の観点から定量的な比較を試みている。また化学量論比にくらべて Ba 過多の焼結ターゲット($\text{BaFe}_{10}\text{O}_x$)を用いて成膜した場合、ほぼ目的の $\text{BaFe}_{12}\text{O}_{19}$ が得られることを見出している。この膜を熱処理することでバルク程度の飽和磁化と磁気異方性を示す薄膜が得られると述べている。

審 査 の 要 旨

[批評]

従来報告されてきた $\text{Co}_x\text{Fe}_{3-x}\text{O}_4(111)$ エピタキシャル薄膜や $\text{BaFe}_{12}\text{O}_{19}$ (0001)エピタキシャル薄膜においては、その飽和磁化がバルクに比べて明らかに小さいものが多く、良質なこれらの酸化物薄膜の成長は容易ではないという認識が一般的であった。ところが本論文では、成膜条件を細かく変化させた丁寧な実験を行うことで、比較的良質なフェライト薄膜を成長させることが可能であるということを示した意義は大き

いといえる。この論文の動機づけは、新たな磁気記録機構の記録媒体層を想定したものであったが、良質な強磁性絶縁体薄膜をもちいたスピントロニクスへの展開も期待されることから工学的に意義のある研究であると認められる。良質な膜成長を実現した一方で、成膜条件と磁気特性がどのように結びつくのかその微視的な理解や解釈についてはほとんど述べられておらず、論文全体を通して条件探査に終始している印象は拭えない。また成膜プロセスの観点から、 Cr_2O_3 と組み合わせることが可能であるのか確認することも今後の課題であろう。

[最終試験結果]

平成 30 年 5 月 26 日、数理物質科学研究科学学位論文審査委員会において審査委員の全員出席のもと、著者に論文について説明を求め、関連事項につき質疑応答を行った。その結果、審査委員全員によって、合格と判定された。

[結論]

上記の論文審査ならびに最終試験の結果に基づき、著者は博士(工学)の学位を受けるに十分な資格を有するものと認める。