

# IBS 法による Fe/Bi 系積層薄膜の電気的磁気的特性に及ぼす基板温度の影響

日大生産工(院)

○佐藤 啓

日大生産工

新妻 清純・移川 欣男

## 1. はじめに

### 1.1 研究背景

複数の金属層の厚さを原子レベルで制御した人工的多層構造膜を人工格子と呼ぶ。人工格子においては、界面の性質をバルクの性質として反映することができるため、特性の異なる材料を積層化させることによって、新しい物性の発現が期待されている<sup>(1)</sup>。近年、人工格子に関する研究が盛んに行われ、その成果の一例として、強磁性体と非磁性体から成る人工格子において、巨大磁気抵抗効果等の特性の発現に至り、MRヘッド等の電子デバイスに応用することが進められてきた<sup>(2)(3)</sup>。

### 1.2 これまでの研究成果

上記のことを踏まえ、本研究室における研究の一例として、代表的な強磁性体である Fe と、金属より電気伝導度が低い半金属である Bi から構成される人工格子に関する研究を行っている。

まず、Fe と Bi の一層ずつから成る膜厚を 20nm、全膜厚を 100nm 一定、全積層数を 10 層とし、Fe 層の膜厚を 0~20nm の間で変化させ、常温において Fe/Bi 系積層薄膜における諸特性の Fe 層膜厚依存性に関する研究を行った。この中で、Fe 層と Bi 層の膜厚をそれぞれ 7nm、13nm として成膜し、電気抵抗率の温度特性を測定した結果、特定の測定温度によって、金属的な温度特性から半導体的な温度特性に変化することを報告した<sup>(4)</sup>。

次に、その特異な温度特性を示した膜厚比 7:13 に着目し、膜厚比を一定条件とし、全膜厚 100nm 中で全積層数  $N$  を  $N=2\sim 50$  の間で変化させ、常温において Fe/Bi 系積層薄膜における諸特性の積層数依存性に関する研究を行った。その中で、全積層数を  $N=8$  とした薄膜において、より明瞭に積層構造となっていることが認められた。また、いずれの研究からも Fe と Bi は化合物を形成せず、膜内においてそれぞれの元素が独立して存在していることが明らかとなった<sup>(4)</sup>。

### 1.3 研究目的

そこで本研究では、Fe と Bi とを人工的に積層化した Fe/Bi 系積層薄膜の諸特性に及ぼす温度の影響に着目し、Fe 層と Bi 層との膜厚比を 7:13、全積層数を  $N=8$  として、薄膜を創製する際に基板温度を変化させて成膜し、基板温度が諸特性

に及ぼす影響について検討した<sup>(5)</sup>。また、Fe 層と Bi 層との積層界面付近における Fe と Bi との混在を防ぐために比較的低温域で成膜した。

## 2. 実験方法

### 2.1 IBS 装置

Fe/Bi 系積層薄膜の作製には、Fig.1 に示すイオンビームスパッタ (IBS) 装置<sup>(6)</sup>を用いた。本装置のイオン源は 2 つあり、それぞれのビームのターゲットへの入射角は  $30^\circ$  である。ターゲットホルダは外部からの操作により回転する機構となっており、真空中においてそのままのプラズマ状態でターゲットを切り替えられる。また、基板ホルダは一定の速度で自転ならびに公転しており、均一な膜の形成が可能である。

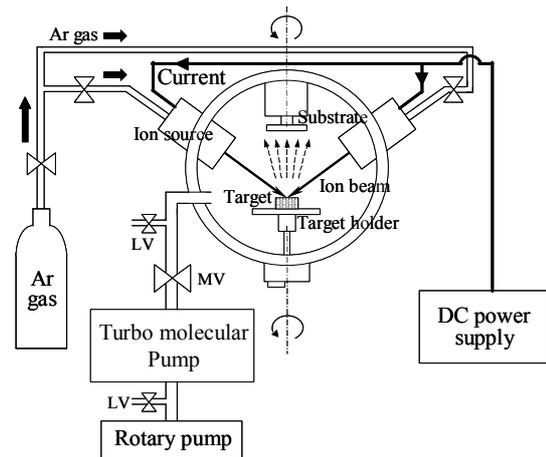


Fig.1 Schematic outline of IBS apparatus.

### 2.2 成膜条件

薄膜の作成に際し、ターゲットには純度 99.6% の Fe ならびに純度 99.99% の Bi を用い、それぞれの成膜速度に応じて、一定時間ごとに切り替え、積層構造に形成し成膜した。成膜条件はチャンパー内の到達真空度を  $1.33 \times 10^{-3}$  Pa 以下とし、Ar ガス雰囲気中でガス圧を  $3.19 \times 10^{-2}$  Pa、投入電流を 3mA、投入電圧を 6kV とした。また、成膜中の基板温度調節時には、基板背面を高圧  $N_2$  ガスによるジュール・トムソン効果により冷却、また、ヒーターにより加熱した。

### 2.3 膜の構成

膜の構成として、基板にはソーダライムガラ

## Effect of Substrate Temperature on Electric and Magnetic Properties of Fe/Bi System Multilayered Thin Films Prepared by IBS Method

Akira SATO, Kiyozumi NIIZUMA and Yoshio UTSUSHIKAWA

スを用い、Fe と Bi の膜厚比(成分比)を 7:13 とし、全積層数  $N$  を  $N=8$  として成膜した(Fe 層膜厚  $\approx 9\text{nm}$ , Bi 層膜厚  $\approx 16\text{nm}$ )。なお、全膜厚は  $100\text{nm}$  一定とした。

## 2.4 評価方法

作製した試料の評価方法として、結晶構造解析には  $\text{Cu-K}\alpha$  を線源とする X 線回折装置(XRD)、磁気特性の測定には振動試料型磁力計(VSM)、電気抵抗率ならびに電流が磁界の印加方向に対して平行の場合 ( $I//H$ ) における磁気抵抗の測定(常温)には直流四端子法、膜の表面観察には原子間力顕微鏡(AFM)をそれぞれ用いた。

## 3. 実験結果

### 3.1 Fe/Bi 系積層薄膜の結晶構造解析

#### 3.1.1 Fe/Bi 系積層薄膜の結晶構造

測定範囲を  $2\theta = 20 \sim 70^\circ$  とした高角領域における、基板温度を  $150 \sim 350\text{K}$  まで変化させた Fe/Bi 系積層薄膜の X 線回折図形を Fig.2 に示す。図より、いずれの基板温度においても、Fe ならびに Bi の回折線が共に認められ、Fe と Bi との化合物からの回折線は認められなかった。また、基板温度が低い状態において  $2\theta = 27.16^\circ$  付近における Bi(012)からの回折線強度が増加する傾向を示した。これらのことから、作製した Fe/Bi 系積層薄膜においては、Fe と Bi から成る化合物を形成せず、膜内において、それぞれ独立した状態で存在していることが確認できた。また、低温域で成膜した Fe/Bi 系積層薄膜においては、結晶性が良いことが認められた。

#### 3.1.2 Fe/Bi 系積層薄膜の積層構造解析

測定範囲を  $2\theta = 1.5 \sim 3.5^\circ$  とした小角領域における、基板温度を  $150 \sim 350\text{K}$  まで変化させた Fe/Bi 系積層薄膜の X 線回折図形を Fig.3 に示す。図より、 $150$  ならびに  $200\text{K}$  で成膜した Fe/Bi 系積層薄膜において、比較的明瞭な人工周期的回折線が認められた。このことから、低温域で成膜することにより、積層界面がより明瞭になると考えられる。また、 $150\text{K}$  で成膜した Fe/Bi 系積層薄膜の X 線回折図形における拡大図を Fig.4 に示す。ここで、Fe/Bi 系積層薄膜の人工周期すなわち Fe 層間  $\Lambda$  は、式(1)を用いて算出した。

$$\Lambda = \frac{n\lambda}{2(\sin\theta_m - \sin\theta_{m-1})} \quad [m] \quad \dots(1)$$

上記の式(1)において、 $\Lambda$  は人工周期(Fe 層間)を、 $n$  は整数(ここでは  $n=1$ )を、 $\lambda$  は X 線の波長( $\text{Cu-K}\alpha = 0.15405\text{nm}$ )を、 $m$  は次数をそれぞれ示す。図より、 $m=1 \sim 2, 2 \sim 3$  における人工周期  $\Lambda$  は、それぞれ  $24.8\text{nm}, 25.1\text{nm}$  となり設定値である  $25\text{nm}$  と比較し、ほぼ同値であることが認められた。このことから、Fe ならびに Bi のターゲットを、それぞれの成膜速度に応じて正確に切り替え、作製されたことが明確となった。

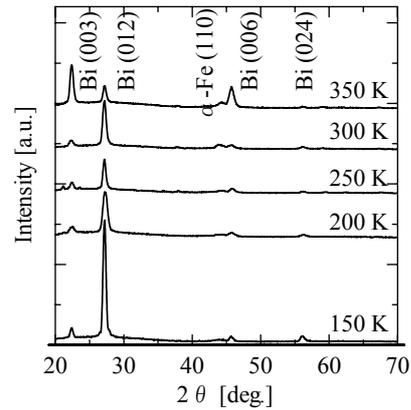


Fig.2 X-ray diffraction patterns of Fe/Bi system multilayered thin films.

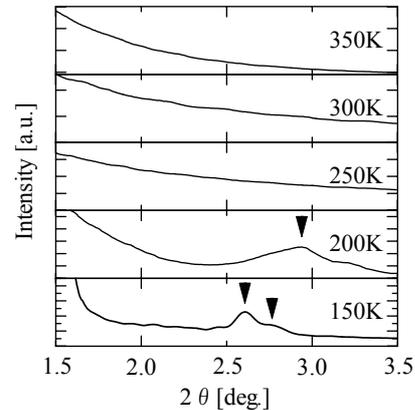


Fig.3 X-ray diffraction patterns of Fe/Bi system multilayered thin films.

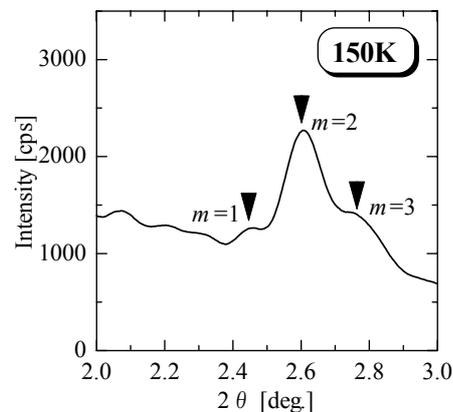


Fig.4 X-ray diffraction patterns of Fe/Bi system multilayered thin films. (Magnification)

### 3.2 Fe/Bi 系積層薄膜の磁気特性

基板温度を 150~350K まで変化させた Fe/Bi 系積層薄膜における飽和磁化値  $M_s$  ならびに保磁力  $H_c$  の基板温度依存性の測定結果(常温)を Fig.5 に示す。図より,飽和磁化値  $M_s$  は基板温度の変化に関わらず,作製したいずれの Fe/Bi 系積層薄膜においても,約  $0.9 \times 10^{-4} \text{Wb} \cdot \text{m}/\text{kg}$  と一定の値を示すことが認められた。このことから,作製したいずれの Fe/Bi 系積層薄膜においても,目的とした成分比である 7:13 で成膜されたことが磁気的な観点から確認できた。また,同図より,保磁力  $H_c$  は基板温度 150K において  $0.846 \text{kA}/\text{m}$  の最小値を示し,基板温度の上昇に伴いほぼ直線的に増大し,350K において  $2.552 \text{kA}/\text{m}$  の最大値を示した。ここで,図式的に保磁力の差を確認するために,最大印加磁界  $H_m = \pm 40 \text{kA}/\text{m}$  における,基板温度を 150 ならびに 350K とした Fe/Bi 系積層薄膜の磁化曲線を Fig.6 に示す。図より,150K で成膜した Fe/Bi 系積層薄膜の保磁力,すなわちヒステリシス曲線のループ幅は 350K で成膜した場合に比べ,小さく,また急峻な変化をしていることが確認できた。

### 3.3 Fe/Bi 系積層薄膜の電気抵抗率

基板温度を 150~350K まで変化させた Fe/Bi 系積層薄膜における電気抵抗率  $\rho$  の基板温度依存性の測定結果を Fig.7 に示す。ここで,電気抵抗率の測定温度は 300K 一定とした。図より,電気抵抗率  $\rho$  は基板温度を 150K として成膜した Fe/Bi 系積層薄膜において,最小値  $1.216 \mu \Omega \cdot \text{m}$  の値を示し,基板温度の上昇に伴いほぼ直線的に増大し,350K において  $1.393 \mu \Omega \cdot \text{m}$  の最大値を示した。このことから,比較的低温域で成膜すると結晶性が良くなり,その影響で膜の電気抵抗率も低下すると考えられる。

### 3.4 Fe/Bi 系積層薄膜の磁気抵抗効果

常温において,最大印加磁界  $H_m = \pm 40 \text{kA}/\text{m}$  とした,基板温度 150, 200 ならびに 250K で成膜した Fe/Bi 系積層薄膜における,磁気抵抗変化率 (MR ratio) ならびに電気抵抗値  $R$  の印加磁界依存性の測定結果を Fig.8 に示す。ここで,磁気抵抗変化率は式(2)を用いて算出した。

$$MR\ ratio = \left( \frac{\rho - \rho_s}{\rho_s} \right) \times 100 \quad [\%] \quad \dots(2)$$

上記の式(2)において,  $\rho$  は各印加磁界中における電気抵抗率を,  $\rho_s$  は磁界を印加し電気抵抗値が飽和したときの電気抵抗率をそれぞれ示す。図8より,磁気抵抗変化率は,いずれの Fe/Bi 系積層薄膜においても磁界強度の増加に伴い減少する傾向を示した。このことは,各膜内において Fe 層における磁性スピンの配列が,磁界の印加により平行状態となり,電気抵抗値が減少したためと考えられる。

また,基板温度を 150K として成膜した Fe/Bi

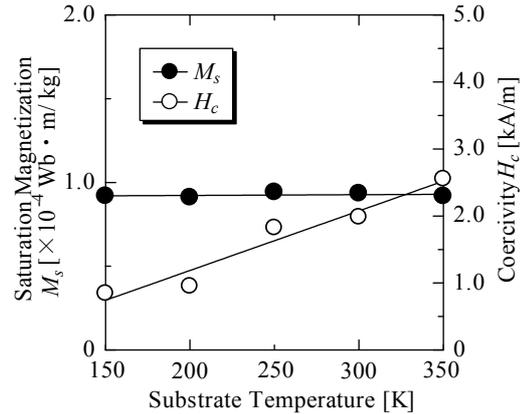


Fig.5 Dependence of  $M_s$  and  $H_c$  of Fe/Bi system multilayered thin films on the substrate temperature.

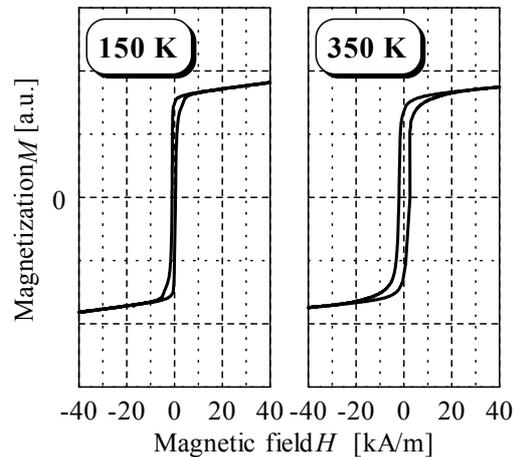


Fig.6  $M$ - $H$  loops in Fe/Bi system multilayered thin films.

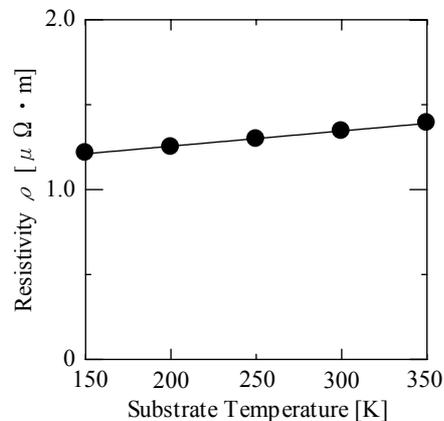


Fig.7 Dependence of resistivity  $\rho$  of Fe/Bi system multilayered thin films on the substrate temperature.

系積層薄膜において、全ての測定結果中、最大となる 0.169% の値を示し、さらに印加磁界  $H=0$  付近での急峻な変化が認められた。これらのことから、150K 程の低温域で作製した Fe/Bi 系積層薄膜においては、結晶性が良好、また積層界面もより明瞭になり、Fe 層内の磁性スピンの何らかの影響を及ぼし、保磁力の低下により、大きな変化率を示し、かつ磁性スピンは僅かな磁界の変化で反転し、平行状態となったと考えられる。

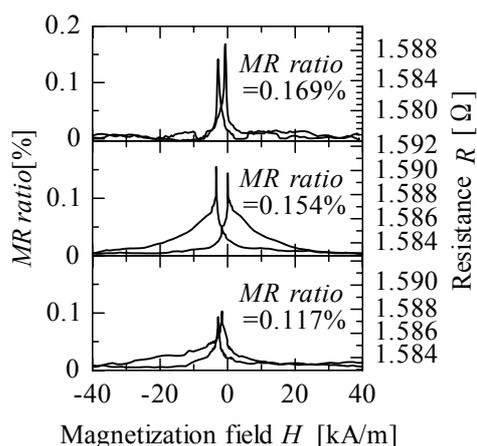


Fig.8 Dependence of *MR ratio* and *R* of Fe/Bi system multilayered thin films on the applied magnetic field strength.

### 3.5 Fe/Bi 系積層薄膜の表面形状

基板温度を 150 ならびに 350K として成膜した Fe/Bi 系積層薄膜における、膜の表面観察結果 (AFM 像) を Fig.9 に示す。図より、面平均粗さ  $Ra$  は、150K として成膜した Fe/Bi 系積層薄膜において、0.968nm の値を示し、350K として成膜した Fe/Bi 系積層薄膜における値 1.559nm に比べ、若干減少した。また、表面の形状も変化した。このことから、150K 程の低温域で成膜することにより、結晶性が良くなり、膜の表面でもある Bi 層に何らかの影響を及ぼし、より均一に原子配列の構成が成されたと考えられる。

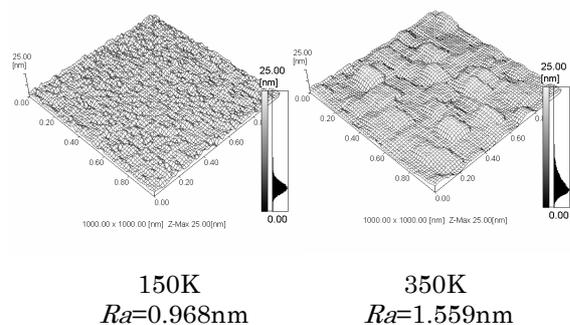


Fig.9 AFM images of Fe/Bi system multilayered thin films.

## 4. まとめ

人工格子膜の基礎的研究の一例として、IBS 法により Fe/Bi 系積層薄膜を作製し、基板温度の変化が電氣的磁氣的特性に及ぼす影響について検討した。本実験の結果を要約すると次の通りとなる。

- 1) 作製した Fe/Bi 系積層薄膜の結晶構造は、X 線回折の高角領域における結果から、膜内において Fe と Bi とはそれぞれ独立した状態で存在しており、化合物を形成しておらず、また、低温で成膜すると、膜の結晶性が良好となることが明らかとなった。
- 2) 作製した Fe/Bi 系積層薄膜の膜内における構造は、X 線回折の小角領域における結果から、基板温度を低くすることで、より明確な人工周期的回折線が認められ、積層界面付近が明瞭な積層構造となることが明らかとなった。
- 3) 作製した Fe/Bi 系積層薄膜の飽和磁化値  $M_s$  は磁気特性の測定結果から、いずれの基板温度においても約  $0.9 \times 10^{-4} \text{Wb} \cdot \text{m/kg}$  と一定の値を示し、ほぼ目的の膜厚比で成膜できたことが磁氣的な観点からも確認できた。また、保磁力  $H_c$  は基板温度を低温にし、結晶性を良くすることで磁性スピンの影響を及ぼし、低下することが認められた。
- 4) 作製した Fe/Bi 系積層薄膜の電気抵抗率  $\rho$  は、基板温度を低温にし、結晶性を良くすることで低下することが明らかとなった。
- 5) 作製した Fe/Bi 系積層薄膜の磁気抵抗変化率は、いずれの測定結果においても Fe 層の磁性スピンの反転による抵抗変化を示し、さらに 150K で成膜した Fe/Bi 系積層薄膜において、全測定結果の中で最大となる  $MR \text{ ratio} = 0.169\%$  の値を示し、かつ波形の急峻性も向上しており、低温で成膜することで Fe/Bi 系積層薄膜の磁気抵抗効果は改善されることが明確となった。
- 6) 作製した Fe/Bi 系積層薄膜の面平均粗さ  $Ra$  は、基板温度を低温にし、結晶性を良好にすることで、減少することが明らかとなった。

### 参考文献

- (1) 藤森啓安・新庄輝也・山本良一：「金属人工格子」、アグネ技術センター、p.193(1995)
- (2) 新庄輝也：「人工格子入門」、内田老鶴圃、p.83、(2002)
- (3) 島田寛・山田興治・八田真一郎・福永博俊：「磁性材料」、講談社、p.66、(1999)
- (4) 廣井俊雄・新妻清純・移川欣男：「IBS 法による Fe/Bi 系積層薄膜の磁氣的電氣的特性」、電気学会誌、Vol.124、No.2、176-181(2004)
- (5) 佐藤啓・新妻清純・移川欣男：「IBS 法による Fe/Bi 系積層薄膜の諸特性に及ぼす基板温度の影響」、2004 年電気学会基礎・材料・共通部門大会講演論文集、p.32(2004)
- (6) 山田公、「イオンビームによる薄膜設計」、共立出版、p.62-64(1991)