

# 反応性パルス DC スパッタリング法による $(\text{Bi}_{1-x}\text{La}_x)(\text{Fe},\text{Co})\text{O}_3$ 強磁性・強誘電薄膜の高品位作製とその磁気および誘電特性

M. Kuppan<sup>1</sup>, 山本 大地<sup>1</sup>, 吉村 哲<sup>1,2</sup>

(<sup>1</sup>秋田大, <sup>2</sup>JST さきがけ)

Fabrication of highly qualified  $(\text{Bi}_{1-x}\text{La}_x)(\text{Fe},\text{Co})\text{O}_3$  multiferroic thin films by using a pulsed DC reactive sputtering method and its magnetic and dielectric properties

M. Kuppan<sup>1</sup>, D. Yamamoto<sup>1</sup>, and S. Yoshimura<sup>1,2</sup>

(<sup>1</sup>Akita Univ., <sup>2</sup>JST PRESTO)

**はじめに** 強磁性・強誘電材料は、電場( $E$ )による磁化( $M$ )の方向制御、磁場( $H$ )による電気分極( $P$ )の方向制御が可能とされていることから、革新的な次世代電子材料として研究が活発化してきている。電圧駆動型の磁気デバイスに本材料を使用する場合、高信号出力化などの観点から高い飽和磁化 ( $M_s$ )、高集積化などの観点から垂直磁気異方性 ( $H_{k\perp}$ )、などの磁気特性が求められる。しかしながら、これまで検討されてきた強磁性・強誘電材料の多くは、強誘電材料に磁性元素をドーピングすることで強磁性を発現させてきた場合が多く、また良好な強誘電特性を維持する観点からそのドーピング量を抑制してきた結果、大きな  $M_s$  および明確な  $H_{k\perp}$  を有する材料はほとんど報告されていない。著者がこれまで注目してきた $(\text{Bi}_{1-x}\text{Ba}_x)\text{FeO}_3$  強磁性・強誘電材料について、酸化物や窒化物の薄膜の、高速成膜化・高成膜電圧化・アーク放電の抑制、に効果的な反応性パルス DC スパッタリング法を用いて薄膜成膜した結果、RF マグネトロンスパッタリング法で成膜していたこれまでの薄膜よりも高品位な薄膜が得られ、これまで得られていた値の 1.5 倍程度の大きな  $M_s$  ( $90 \text{ emu/cm}^3$ ) が得られた<sup>2)</sup>。しかし、その薄膜の磁化容易方向は薄膜面内であり、その保磁力は 2–3 kOe 程度と、磁気デバイス応用には適していなかった。本研究では、 $(\text{Bi}_{1-x}\text{Ba}_x)\text{FeO}_3$  以外にも強磁性・強誘電性が確認されている材料、 $(\text{Bi}_x\text{A})(\text{Fe},\text{Co})\text{O}_3$  ( $\text{A}=\text{La}^3, \text{Nd}^4, \text{Gd}^3$ ) の中から $(\text{Bi},\text{La})(\text{Fe},\text{Co})\text{O}_3$  に着目し、反応性パルス DC スパッタリング法を用いて、その高品位薄膜の作製を行い、磁気および誘電特性を調べた。

**方法**  $(\text{Bi}_{1-x}\text{La}_x)(\text{Fe}_{0.75}\text{Co}_{0.25})\text{O}_3$  ( $x=0.44\sim 0.69$ ) (BLFCO) 薄膜(膜厚 300 nm)を、反応性パルス DC スパッタリング法を用いて、熱酸化膜付き Si 基板上に Ta(5 nm)/Pt(100 nm)の下地層を成膜した後、積層膜として作製した。積層膜は、Ta を室温、Pt を 300°C、BLFCO を 600°C、の基板温度で成膜した。スパッタリングターゲットには、La-Fe-O 粉末、Fe 粉末、Co 粉末を焼結させて作製した導電性ターゲットに Bi シートを配置したものをを用いた。反応性パルス DC スパッタリング法におけるパルス条件として、周波数を 50~250 kHz の範囲で変化させ、電力は 150 W、デューティー (ON:OFF) 比は 2:1 の一定値とした。作製した積層膜の構造解析は、X線回折装置(XRD)により、磁気測定は、振動試料型磁力計(VSM)により、誘電測定は、BLFCO 積層膜の最表面に Pt ドット状電極( $\phi 100 \mu\text{m}$ )を成膜した後に、強誘電体特性評価システムにより行った。

**結果** Fig.1 に、反応性パルス DC スパッタリング法を用いて作製した BLFCO 薄膜の飽和磁化および保磁力の、Bi に対する La 置換量依存性を示す。保磁力に関しては、薄膜面内方向と垂直方向の両方の値を示している。最大の  $M_s$  が得られる時の La 置換量(60%程度)において、薄膜面内方向および垂直方向の両方で大きな保磁力が得られ、かつ垂直方向において明瞭に大きな保磁力が得られた。VSM 測定において印加磁界方向を薄膜面内方向から垂直方向まで変化させて磁化曲線を測定した結果、BLFCO 薄膜の磁化容易方向は完全に垂直方向であった。また、図中に示すように、本 BLFCO 薄膜において、原点对称性が良く明瞭なヒステリシスを有する  $P$ - $E$  曲線が得られており、良好な強誘電特性も得られている。これまで報告されている La ドープ  $\text{BiFeO}_3$  薄膜では実現されなかった優れた磁気特性が得られた要因は、高いエネルギーを有するスパッタ粒子が離散 (パルス) 的に基板に到達することで、粒子の基板表面での拡散が促進し、結晶性の良い薄膜が得られたことによると考えられる。

**参考文献** 1) D. Pelleymounter et al., 2014 Soc. Vac. Coat., 57th Annual Technical Conference Proceedings, Chicago, USA. 2) 吉村 第 41 回日本磁気学会学術講演概要集, 19pA-15. 3) K. G. Yang et al., J. Appl. Phys., 107, 124109 (2010). 4) F. Huang et al., Appl. Phys. Lett., 89, 242914 (2006). 5) P. Suresh et. Al., Mater. Sci. Eng., 73, 012082 (2015).

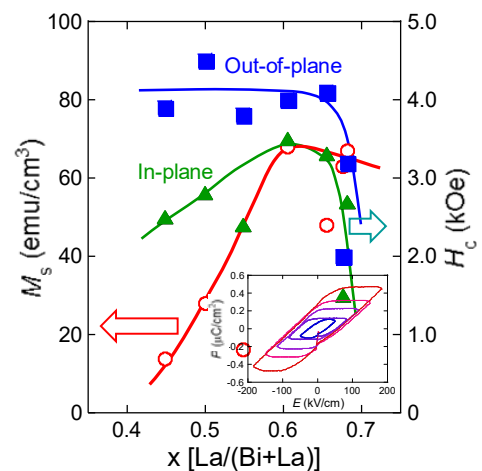


Fig. 1 Dependence of  $M_s$  and  $H_c$  on La concentration of  $(\text{Bi}_{1-x}\text{La}_x)(\text{Fe},\text{Co})\text{O}_3$  thin films fabricated by pulsed DC reactive sputtering method.  $P$ - $E$  curves of  $(\text{Bi}_{0.41}\text{La}_{0.59})(\text{Fe},\text{Co})\text{O}_3$  thin film is also shown in this figure.