

(様式第4号)

酸化鉄エピタキシャル膜の局所構造に関する研究

A study on local structure of iron oxide epitaxial films

齊藤勝彦、光石芳明、田中徹、西尾光弘、郭其新

Katushiko Saito, Yoshiaki Mitsuishi, Tooru Tanaka, Mitsuhiro Nishio, and Qixin Guo

佐賀大学シンクロトロン光応用研究センター

Saga University Synchrotron Light Application Center

※長期利用課題は、実施課題名の末尾に期を表す（Ⅰ）、（Ⅱ）、（Ⅲ）を追記すること。

1. 概要

磁性ランダムアクセスメモリにおける新しい材料として注目を集めている酸化鉄薄膜の Fe K 吸収端 XAFS 測定を行った。Fe のメインピークが基板温度の上昇に伴い、低エネルギー側へシフトしており、成長された酸化鉄の薄膜の Fe 成分が三価の鉄 (Fe_2O_3) から二価と三価が混在した Fe_3O_4 へ変化していることを示唆している。この結果はラマンスペクトルのデータと一致しており、XAFS 測定法が酸化鉄薄膜の成長メカニズム等を解明することに有効であることが明らかになった。

(English)

We have investigated the electronic structure of iron oxide films by performing x-ray absorption fine structure (XAFS) spectroscopy at Fe K-edge. It was found that the main peak of Fe K-edge shifts toward lower energy, suggesting the iron oxide films change from Fe_2O_3 to Fe_3O_4 with the increase of substrate temperature, which has reasonable agreement with the Raman spectra analysis. The results revealed that the experimental XAFS is a powerful tool for systematic analysis of the electronic structure of iron oxide films.

2. 背景と研究目的：

今日のエレクトロニクス産業を牽引している材料は半導体と磁性体であり、両方とも電子の性質を利用している。今後さらなる進展が期待されている情報技術の分野において、より大きな記憶容量を持つ高速に動作する記憶デバイスが要求されている。それに伴い、様々な記録方式が検討されているが、トンネル型磁気抵抗素子を用いた磁性ランダムアクセスメモリの研究が注目を集めている。マグネタイト (Fe_3O_4) は、スピン偏極率 100% のハーフメタリック特性を示し、高いキュリー温度 ($T_c = 860$ K) を有しており、磁性ランダムアクセスメモリにおける新しい材料として期待されている。この材料を用いたデバイスを実現させるためには、 α - Fe_2O_3 や γ - Fe_2O_3 を含まない高品質な Fe_3O_4 薄膜を成長させることが必要不可欠である。マグネタイト (Fe_3O_4) 薄膜は、スパッタ法、分子線エピタキシャル法、反応性蒸着法などを用いて作製されてきたが、 α - Fe_2O_3 や γ - Fe_2O_3 を含まない高品質な Fe_3O_4 薄膜成長は極めて難しく、飽和磁化の値がバルク結晶に比べ、小さくなるのが現状である。我々は PLD 法を用いて、高純度の Fe_3O_4 をターゲットとし、(0001) α - Al_2O_3 基板上に Fe_3O_4 薄膜を作製し、基板温度、雰囲気酸素圧力等を最適化させることにより、 Fe_3O_4 エピタキシャル薄膜の作製に成功した。ラマン分光、X線回折法及び振動試料型磁束計を用いて解析した結果、薄膜の品質は成長温度、圧力に強く依存し、500°C 付近に成長された薄膜のみが、 α - Fe_2O_3 や γ - Fe_2O_3 を含まない高品質な Fe_3O_4 薄膜であることが分かった[1]。しかし、薄膜の成長メカニズムなど、構造的にも未知な部分が多く、殆ど解明されていないのが現状である。そこで、本研究では、異なった条件で成長された酸化鉄の Fe K 吸収端の X 線吸収微細構造 (X-ray Absorption Fine Structure: XAFS) 測定を行うことにより、原子間距離、配位数等の成長条件依存性を明らかにし、酸化鉄薄膜の成長メカニズム等を解明することを目的としている。

3. 実験内容：

Fe_3O_4 薄膜の成長はPLD法で行った。成長室内の到達真空度は 10^{-5}Pa 台であった。 Fe_3O_4 をターゲットとし、基板は $\alpha\text{-Al}_2\text{O}_3(0001)$ を使用した。酸素導入下($1 \times 10^{-3}\text{Pa}$)でKrFエキシマレーザー(2Hz, 225mJ, 0.45w)をターゲットに入射し、物質を基板まで飛ばし基板上に堆積させた。基板温度は室温と100~700°Cまでの8点で変化させた。膜厚は約80nmの一定値とした。 Fe K 吸収端XAFSの測定については、BL11にて転換電子収量 (Conversion electron yield、CEY) 検出器を用いて実施した。

4. 実験結果と考察

Figure 1 に各基板温度で作製した酸化膜のラマンスペクトルを示す。基板温度が500°C付近では、 $\alpha\text{-Fe}_2\text{O}_3$ や $\gamma\text{-Fe}_2\text{O}_3$ を含まない高品質な Fe_3O_4 薄膜が成長されていることが分かった。Figure 2 に Fe K 吸収端のXAFSスペクトルを示す。 Fe のメインピークが基板温度の上昇に伴い、低エネルギー側へシフトしており、成長された酸化鉄の薄膜の Fe 成分が三価の鉄(Fe_2O_3)から二価と三価が混在した Fe_3O_4 へ変化していることを示唆している。この結果はラマンスペクトルのデータと一致しており、XAFS測定法が酸化鉄薄膜の成長メカニズム等を解明することに有効であることが明らかになった。

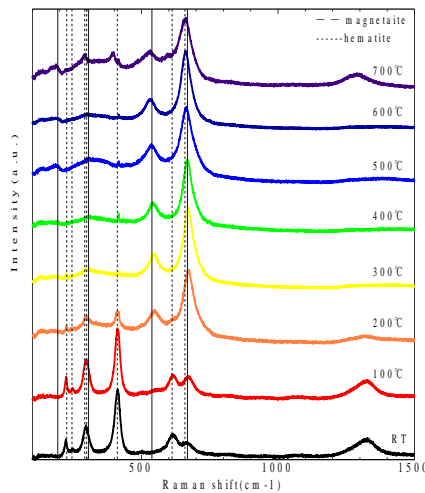


Figure 1 Raman spectra of iron oxide films grown at different substrate temperatures.

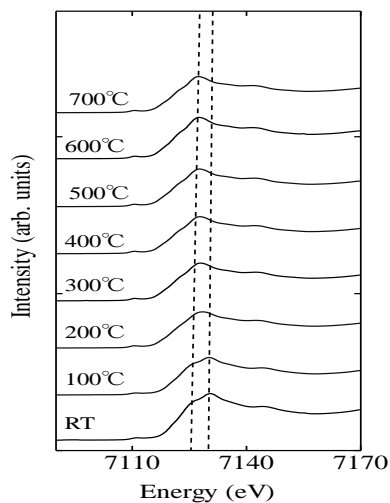


Figure 2 Experimental Fe K-edge XAFS spectra for iron oxide films grown at different substrate temperature.

5. 今後の課題：

酸化鉄の構造特性において Fe *K* 吸収端の XAFS 評価の有用性は確認できたが、原子間距離、配位数等の定量化は、さらに実験を行い、確かめていくことが必要である。

6. 論文発表状況・特許状況

一部の成果については、論文としての投稿を予定している。

7. 参考文献

[1] Growth and characterization of Fe₃O₄ films, Jian Ding, Di Zhang, Makoto Arita, Yoshifumi Ikoma, Kazuki Nakamura, Katsuhiko Saito, and Qixin Guo*, Materials Research Bulletin 46 (2011) 2212–2216.

8. キーワード（試料及び実験方法を特定する用語を 2～3）

磁性体, Fe₃O₄, XAFS