

研 究

反応性スパッタ法による作製においてエピタキシャル成長したYIGフェライト薄膜

山本 節夫^{★1}, 国木 弘文^{★1}, 栗巢 普揮^{★1}, 松浦 満^{★1}, 張 平宇^{★2}^{★1}山口大学工学部, 〒755-8611 宇部市常盤台2-16-1.^{★2}清州大学工学部, 〒360-764 大韓民国清州市上党区内徳洞36.

YIG Ferrite Thin-films Epitaxially Grown by Reactive Sputtering Method

Setsuo Yamamoto^{★1}, Hirofumi Kuniki^{★1}, Hiroki Kurisu^{★1}, Mitsuru Matsuura^{★1} and Pyungwoo Jang^{★2}^{★1}Yamaguchi Univ., 2-16-1 Tokiwadai, Ube 755-8611, Japan.^{★2}Chongju Univ., 36 Naeduck-dong, Sangdang-gu, Cheongju 360-764, Korea.

Received September 16, 2003

SYNOPSIS

Amorphous Y-Fe-O thin films with a thickness of 2.6–2.8 μm were deposited on GGG (111) substrates at 400 °C using reactive RF magnetron sputtering method with $Y_{2.84}Fe_{5.16}O_{12}$ ferrite sintered target. After that, the thin films were post-annealed in air at temperatures higher than 650 degrees Celsius for various hours to crystallize. In the XRD experiment, diffraction peaks from (888) plane were observed in the post-annealed samples. This showed that the films have been grown in hetero-epitaxial manner on GGG (111) substrate. The YIG ferrite thin films have low coercivity of less than 3 Oe and small ΔH of around 70 Oe. The YIG thin films are promising to be used in ultra thin isolators.

KEY WORDS

reactive sputtering, YIG ferrite, post-annealing, GGG (111) substrate, hetero-epitaxial growth

1 緒 言

最近, 携帯電話や無線LANなど, 準マイクロ波~マイクロ波領域の電波を利用した超小型・超薄型の通信機器が普及しつつある. この通信機器の中には, フェライト材料のジャイロ磁気効果による非相反性を利用して, 電磁波の進行方向を制御する重要部品として, アイソレータ/サーキュレータという部品が使用されている. スパッタ法では, 焼結法やLPE法よりも不純物が少ない薄膜の作製が可能で, nmオーダーで高精度に膜厚制御が可能である. スパッタ法によって, 良質なフェライト薄膜を製造する技術が確立されれば, これらの通信機器で使われるアイソレータ/サーキュレータ部品の低背化に寄与するだけでなく, 静磁波を利用した遅延素子, チューナブルなフィルター素子などの, 新たな磁気デバイスの実現およびそれらの集積化が可能になると期待される. 著者の一人は, マイクロ波帯で磁氣的損失が小さいYIGフェライト(Yttrium Iron Garnet, $Y_3Fe_5O_{12}$)に着目し, 反応性高周波マグネトロンスパッタ法でGGG(Gadolinium Gallium Garnet, $Gd_3Ga_5O_{12}$)基板上に, 通常結晶化に必要な700°C程度の温度に比べて¹⁾低い400°C位の温度で, アモルファスのYIGフェ

ライト薄膜を堆積させ, その後に数百度以上の温度で大気中でアニールすることによって, 結晶化したYIGフェライト薄膜を作製できることを報告している²⁾.

この方法では, アモルファスから結晶化させるアニール処理条件が最終的な膜質に大きな影響を与えると考えられる. そこで本研究では, アニール温度の影響について詳細に検討した.

2 実験方法

YIGフェライト薄膜の作製には, 高周波マグネトロンスパッタ法を用いた. ターゲットには $Y_{2.84}Fe_{5.16}O_{12}$ (at.%)フェライト粉末焼成ターゲットを用い, Arと O_2 の混合ガス(O_2 分圧は5%)中で反応性スパッタを行った. この時の全ガス圧は2.5 Pa, ターゲットへの高周波投入電力5.1 W/cm², 基板温度400°Cとして, 厚さが2.6~2.8 μmのYIGフェライト薄膜を, YIGフェライト($a_0=1.2380$ nm)との格子ミスフィットが非常に小さいGGG($a_0=1.2383$ nm)基板上に堆積させた. また比較のために, 結晶化ガラス基板および表面熱酸化シリコン基板上にもフェライト薄膜を堆積させた.

成膜したYIGフェライト薄膜は、電気炉を用いて大気中でアニールを施し、結晶化させた。この時のアニール処理温度は650°C~1050°Cの間で変化させた。アニール時の室温からアニール設定温度に至るまでの昇温時間は2時間、保持時間は3時間、冷却時間は10時間一定とした。

YIGフェライト薄膜の結晶構造の評価には、薄膜X線回折装置(XRD: Cu-K α)を、薄膜の組成分析には蛍光X線装置を使用した薄膜FP法を、飽和磁化や抗磁力など磁気特性の測定には振動試料型磁力計(VSM)を、磁氣的損失の指標である磁気共鳴半値幅 Δ 測定には、電子スピン共鳴装置(ESR: Electron-Spin-Resonance, 周波数は9.4GHz)を用い、強磁性共鳴曲線より求めた。

3 実験結果及び考察

Fig.1に、様々な基板(GGG(111)基板, ハードディスク用の結晶化ガラス基板, 表面熱酸化シリコン基板)上に堆積させた後に、1050°Cで大気中アニール処理を施したYIGフェライト薄膜のXRDダイアグラムを示す。熱酸化シリコン基板及びガラス基板上に堆積させたYIGフェライト薄膜からは、複数の結晶面からの回折ピークが観測され、多結晶体になっていることがわかった。一方、GGG基板上に堆積させたYIGフェライト薄膜については、Fig.1及び2のパターンに示すように、(888)面からの回折ピークのみが現れた。Fig.2では、YIGフェライト(888)面とGGG基板(888)面からの回折線をスプリットして見やすい、 2θ が120°付近のXRDダイアグラムを示している。Fig.1及び2からわかるように、YIGフェライト(888)面がヘテロエピタキシャル成長していることが確認された。これは、YIGフェライトとGGGとの間の格子のミスフィットが小さいためである。アニール条件を丹念に探索すれば、格子のミスマッチが殆どないエピタキシャル成長を実現できる

と思われる。そこで、大気中アニール処理温度が結晶状態や磁気特性に及ぼす影響について調べた。

アニール処理を行う前のas-depositedサンプルおよび650°C, 750°Cで大気中アニールを行ったサンプルのXRDダイアグラムをFig.3に示す。GGG基板上に堆積させたYIGフェライト薄膜は、アニール処理する前ではアモルファス状態であった。このYIGフェライト薄膜に、650°C以上の温度で大気中アニール処理を行うと結晶化し始めた。

次に、アニール処理温度を変化した場合の結晶配向性の変化について検討した。アニール処理温度は650°Cから1050°Cまでの範囲で変化させた。YIGフェライト薄膜の、低角度域で

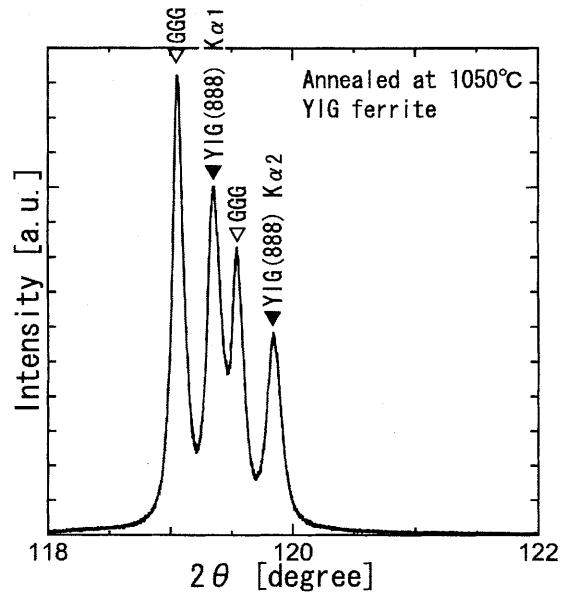


Fig.2 XRD diagrams of YIG ferrite film annealed at 1050°C (Diffraction peaks are from YIG ferrite (888)).

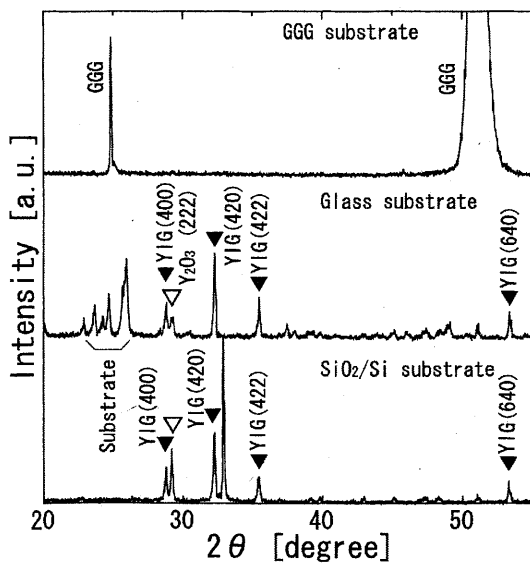


Fig.1 XRD diagrams of YIG ferrite thin-films deposited on GGG, crystallized glass and SiO₂/Si substrates after annealed at 1050°C in air.

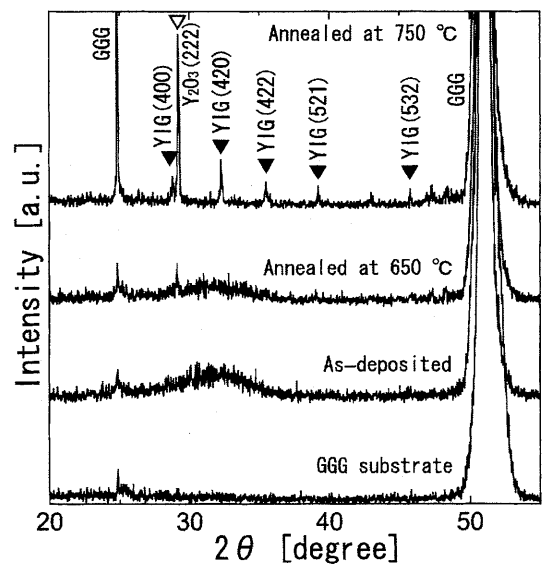


Fig.3 XRD diagrams of YIG ferrite thin films as-deposited and annealed at 650°C and 750°C on GGG substrate.

のXRDダイアグラムをFig.4に示した. 650°C以上でアニール処理したすべてのサンプルでは回折ピークが現れており, YIGフェライト薄膜が結晶化したことがわかった. 1050°Cでアニール処理したサンプルでは, YIGフェライト(888)面からの回折ピークのみが観測された. YIGフェライト(888)面からの回折ピークを拡大したパターンをFig.5に示す. このYIGフェライト(888)面からの回折線のピークは, Fig.4に見られる他の面からの回折線ピークの1000倍以上の強度があった. GGG(888)面付近に現れたYIGフェライト(888)面からの回折

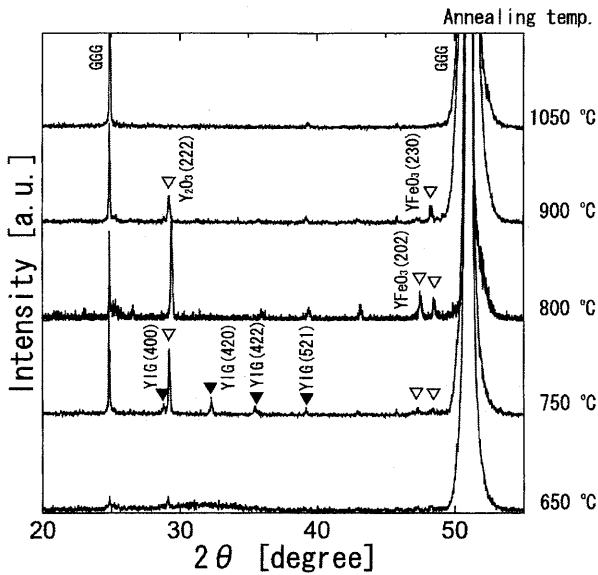


Fig.4 XRD diagrams of YIG ferrite thin films annealed at various temperatures.

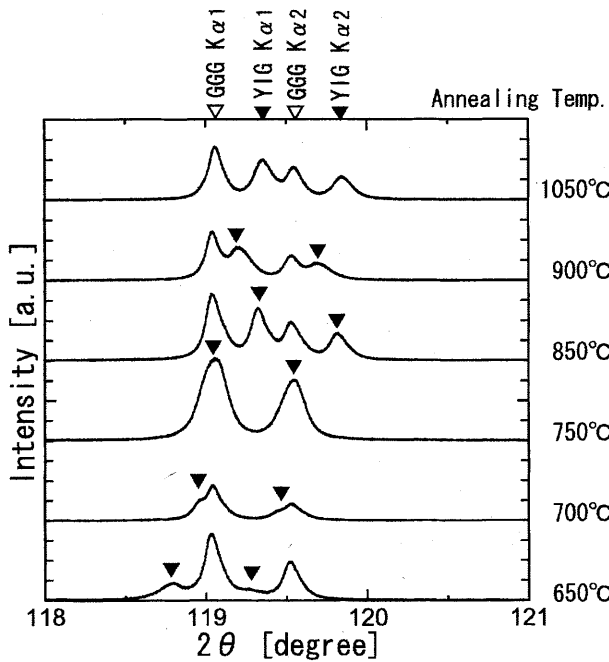


Fig.5 Influence of annealing temperature on X-ray diffraction peaks (YIG ferrite (888) plane).

ピークは, アニール温度の上昇と共に高角度側にシフトしていった. 750°Cでアニール処理したサンプルにおいては, YIGフェライト(888)面からの回折線は, GGG基板の(888)面からの回折ピーク的位置にはほぼ重なり, 格子ミスマッチがほとんどない薄膜が得られた. Fig.6には, 850°Cで大気中アニール処理したYIGフェライト薄膜およびGGG基板(888)面のロックングカーブを示す. YIGフェライト(888)面のロックングカーブの半値幅は0.19°と極めて狭く, 結晶性の優れたYIGフェライト薄膜を作製できたことが確認された.

次に, アニール処理温度が磁気特性に影響を及ぼす影響について検討した. 抗磁力と飽和磁化のアニール処理温度依存性をFig.7に示す. なお反応性スパッタ法で作製したY-Fe-O

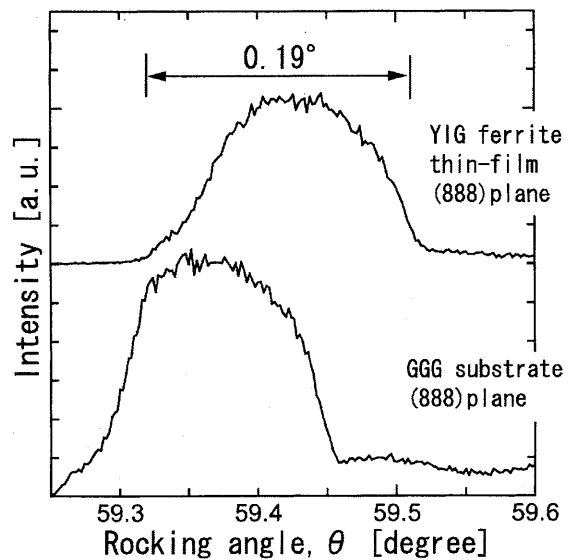


Fig.6 Rocking curves of YIG ferrite thin-film and GGG substrate.

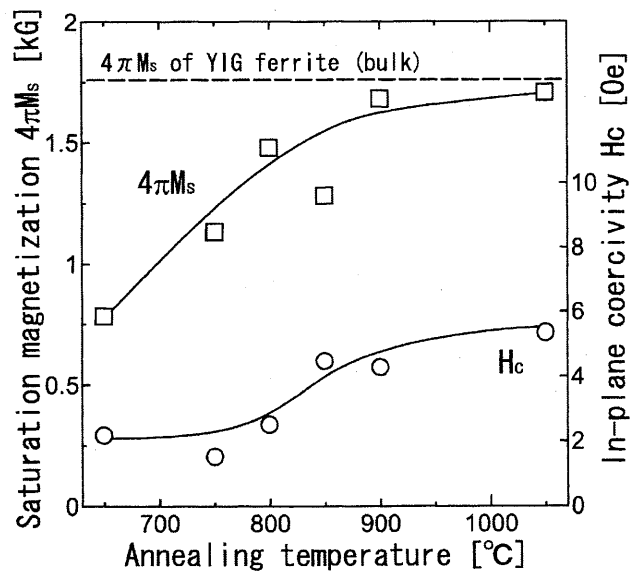


Fig.7 Annealing temperature dependence of magnetic property of YIG ferrite thin-films.

薄膜の、YとFeの組成比を蛍光X線装置による薄膜FP法によって測定した結果は $Y_{2.81}Fe_{5.19}$ (at.%)であり、ターゲット中のYとFeの組成比とのずれは1.3%以内であった。アニール処理温度の上昇に伴い、飽和磁化、抗磁力ともに増加した。1050°Cでアニール処理したサンプルでは、飽和磁化の値は同組成のバルク値(1.75kG)に近い1.70kGに達した。これはFig.4からわかるように、アニール処理温度が上昇するにつれて Y_2O_3 , $YFeO_3$ などYIGフェライト以外の結晶相が消失したことに起因する。これらのサンプルのM-HループをFig.8に示す。アニール処理温度が850°Cを超えると、飽和点以外にも変曲点を持つ、垂直磁気異方性を持つ場合に特徴的なループ形状になった。Fig.5において述べたように850°C以上の温度でアニール処理したYIGフェライトは面内方向に引っ張り応力を受けている。この応力によって垂直磁気異方性が誘導されたものと考えられる。

挿入損失の少ないアイソレータ/サーキュレータに本材料を応用する上で、YIGフェライト薄膜の磁気共鳴半値幅 ΔH は、重要な評価指標である。700°C, 750°C, 800°Cで大気中アニール処理を施したサンプルについて、BSR装置を用いて測定した強磁性共鳴の磁気共鳴吸収曲線を測定した。直流バイアス

磁場を膜面から垂直方向に50°ほど立ち上がった方向に印加して、9.4GHzのマイクロ波磁場は、直流バイアス磁場に対して垂直に印加した場合の磁気共鳴吸収曲線をFig.9に示す。700°C, 800°Cでアニール処理したサンプルでは、吸収曲線が双峰性の曲線となっていた。これはYIGフェライト薄膜の表面付近とGGG基板界面に近い初期層部分においてYIGフェライト薄膜の状態が異なるFig.10のモデル図のように擬似的な二層構造になって、それぞれの単峰性のピークが重畳されて双峰性の吸収曲線になったものと考えられる。750°Cで大気中アニールを施したサンプルについては、吸収曲線の形状は単峰性であった。これはFig.5に関連して前述したように、750°CでアニールしたYIGフェライト薄膜においては、基板との界面から薄膜表面まで、格子のミスマッチがない状態でエピタキシャル成長した構造になっており、膜厚方向に結晶学的な変化が無い薄膜になっているためと考えられる。なお、750°Cでアニール処理したサンプルにおいて、膜面に対して垂直方向に直流バイアス磁場を加えた場合に測定された磁気共鳴半値幅 ΔH は65Oeという比較的小さな値であった。現行製品のアイソレータ/サーキュレータにおいて使用されているバルクのYIG焼結体の ΔH は55Oe程度である³⁾。本研究で作

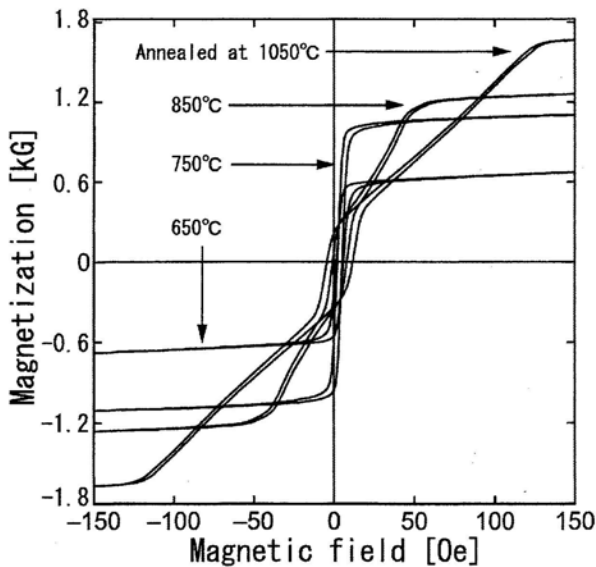


Fig.8 M-H loops of YIG ferrite thin-films annealed at 650, 750, 850 and 1050°C.

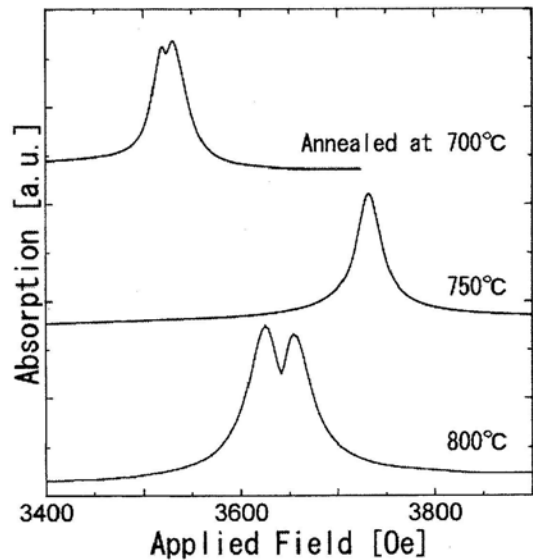


Fig.9 Ferromagnetic resonance spectra of YIG ferrite thin-films annealed at 700, 750 and 800°C.

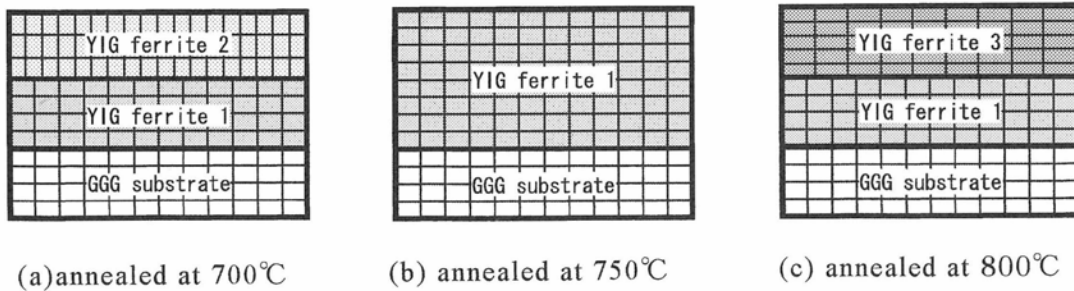


Fig.10 Schematic views of YIG ferrite thin-films deposited on GGG substrate.

製した YIG フェライト薄膜の ΔH はこれよりも若干大きいものの、アイソレータ/サーキュレータなど、マイクロ波帯の磁気デバイスに使用可能なレベルの磁気特性をもっている。

4 結 言

反応性 RF マグネトロンスパッタ法によって、YIG フェライト焼結体ターゲットから GGG 基板上に堆積させた YIG フェライト薄膜について、アモルファス相から結晶化させるための大気中アニール処理における、アニール温度の影響について調べ、以下の知見を得た。

- (1) 700°C 以上でアニール処理した YIG フェライト薄膜は、(888) 面が優先的に配向しており、(888) 面からの回折線ピーク強度は、他の面からの回折線ピーク強度の 1000 倍以上もあり、YIG フェライト (888) 面がヘテロエピタキシャル的に成長していることを確認した。
- (2) 750°C でアニールした場合には、YIG フェライト (888) 面からの回折線ピークが、GGG (888) 面からの回折線ピークに重なり、GGG 基板との格子のミスマッチが最も小さくなった。
- (3) 750°C でアニール処理を施したサンプルでは単峰性の磁気共鳴吸収曲線を示した。磁気共鳴半値幅は 65 Oe と小さく、非可逆回転素子などへの応用が可能である。

謝 辞

本研究は、経済産業省地域新生コンソーシアム研究開発事業「モバイル情報通信機器用フェライトの薄型化技術開発」として実施された。一部は、科学研究費補助金(基盤研究(B)(2): 課題番号 133450145)の援助を受けて行なわれた。直江正彦東京工業大学名誉教授、中村慶久東北大学電気通信研究所所長(東北大学教授)および阿部正紀東京工業大学教授から、貴重な助言と激励を頂いた。また、組成分析測定においては山口県産業技術センターの石田浩一氏にご協力を頂いた。心より感謝申し上げます。

文 献

- 1) M.-B.Park, B.J.Kim and N.-H.Cho: "Chemical Composition, Microstructure and Magnetic Characteristics of Yttrium Iron Garnet (YIG, Ce: YIG) Thin Films Grown by RF Magnetron Sputter Techniques", *IEEE Trans. Mag.*, 35(1999)3049-3051.
- 2) P.W.Jang and J.Y.Kim: "New Growth Method of Solid Phase Epitaxy in Sputtered YIG Films", *IEEE Trans. Mag.*, 37(2001) 2438-2440.
- 3) Trans-Tech, catalogue: "Products for RF/Microwave Applications", (2003)66-67.