

機関番号：71301

研究種目：若手研究（スタートアップ）

研究期間：2008～2009

課題番号：20860012

研究課題名（和文） スパッタ法による複合機能応答する誘電性－磁性薄膜の作製

研究課題名（英文） Fabrication of multi-integrated dielectric-magnetic thin film deposited by sputtering method

研究代表者：横井 敦史 (YOKOI ATSUSHI)

財団法人 電気磁気材料研究所・電磁気材料グループ・研究員

研究者番号：60513760

研究成果の概要（和文）：本研究において Fe-Ti-O, Co-Hf-O 及び Co-Y-O 薄膜をスパッタリング法により作製し、新規の誘電性－磁性薄膜の可能性を明らかにするために、誘電性－磁性との相関性を検討した。Fe-Ti-O 薄膜及び Co-Hf-O 薄膜において誘電損失と磁化及び電気抵抗との相関性が得られた。すなわち、電気抵抗  $\rho = 1.0 \times 10^6 \sim 1.0 \times 10^8 (\mu \Omega \text{ cm})$  の領域において、酸化物系薄膜では最適な誘電性と磁性の複合機能が認められる材料開発の知見が得られた。得られた知見を基に、 $\text{Y}_2\text{O}_3\text{-Co}$  複合ターゲットを用いて、電気抵抗を制御しながら薄膜作製を行った結果、LCR メータにて 100kHz の周波数で誘電率 39 及び誘電損失 0.56 の値が得られた。また、交番力磁力計（AGM）を用いて磁化を測定した結果、11kG の値を有し、誘電性－磁性の複合機能性を有する事が認められた。したがって、酸化物系誘電体薄膜材料において、電気抵抗の制御により、誘電性と磁性の複合機能領域の制御を可能とした。

研究成果の概要（英文）：Fe-Ti-O, Co-Hf-O and Co-Y-O thin films were deposited by radio-frequency magnetron sputtering method, and the relationship between the magneto-dielectric properties and electrical resistivity of these thin films were investigated in order to clarify the possibility of a new magneto-dielectric material. The electrical resistivity was related to the variations in the magnetization and dielectric loss of Fe-Ti-O and Co-Hf-O thin films; therefore, the electrical resistivity range of  $1.0 \times 10^6 - 1.0 \times 10^8 (\mu \Omega \text{ cm})$  lead to the suitable magneto-dielectric properties in the oxides dielectric thin films. On the basis of the electrical resistivity, Co-Y-O thin films were deposited by sputtering method. The dielectric constant and dielectric loss of this thin film measured at a frequency of 100 kHz were 39 and 0.56, respectively. Also, the magnetization of this thin film was 11kG, using the AGM. From these results, the control of the electrical resistivity in the thin film may have exerted and influence on the fabrication of the magneto-dielectric thin film.

## 交付決定額

（金額単位：円）

	直接経費	間接経費	合計
平成 20 年度	1,290,000	387,000	1,677,000
平成 21 年度	1,160,261	348,000	1,508,261
年度			
年度			
年度			
総計	2,450,261	735,000	3,185,261

研究分野：誘電体薄膜工学

科研費の分科・細目：材料工学、構造・機能材料

キーワード：誘電性、磁性、スパッタ法、誘電率、誘電損失、電気抵抗、薄膜

## 1. 研究開始当初の背景

現在、国内及び国外において次世代デバイスを考慮して研究・開発が進められている。多くの強誘電性薄膜、光学的薄膜及び磁気薄膜などは、一つの特性に特化した単機能特性薄膜である。例えば、強誘電性薄膜では多くの優れた強誘電特性が報告されているが、FeRAM等のメモリといった応用範囲が限られてくるのが現状である。単機能特性に優れた薄膜材料の開発は重要ではあるが、次世代薄膜の研究では、今後更なる多種多様化する次世代電子技術に対応するため、複合機能応答すなわち、一つの材料で複数の機能を発現する材料の薄膜の開発が要求される。複合機能応答に応用される複合機能性薄膜は、強磁性—強誘電性、強磁性—光学性及び強誘電性—光学性といった複合機能物性を有するインテグレート材料が考えられ、次世代ユビキタスデバイスのキーマテリアルの一つとして期待されている。本申請者は、誘電体材料を中心に研究を行ってきた経緯より、複合機能性薄膜の一つである誘電性と磁性を兼ね備えた機能性薄膜に着目した。複合機能応答に応用される次世代電子デバイスには知能ロボット、生体医療工学及びIT産業をはじめとする知的化産業技術に対応した知的材料システム(Smart Intelligent Material System)への用途があり、そのキーマテリアルとして複合機能性薄膜材料の新規創製が必須とされる。

本申請者は現在までに、誘電体セラミックスをはじめとする機能性セラミックスの研究・開発を一貫して取り組んできた。特に各種セラミックスの新規材料の新規開発を中心に行っており、さらにそれらの諸特性とナノ結晶構造との相関性を検討する事により、材料開発に必要な指針を得てきた。特に誘電体セラミックスの相転移による誘電特性及び共有結合性等の変化には多くの科学的知見を得ている。現在は平成21年度から所属している財団法人電気磁気材料研究所ばかりではなく、平成20年度所属していた東北大学学際科学国際高等研究センター及び、金属材料研究所(金研)との連携体制が取れており、今後は複合機能応答を有する薄膜材料の作製、評価などの開発が可能である。また、現在まで行ってきたバルク体セラミックスの新規材料開発の経験を生かして、新たな新規機能を有する薄膜材料の開発を目指し、本申請者は若手研究(スタートアップ)への申請の着想に至った。そこで本研究では、現在まで行ってきた誘電体材料を基軸に、誘電体と磁性体の複合機能応答の特性を有する複合機能性薄膜材料の開発を目標に、本申請を行った。

## 2. 研究の目的

スパッタリング装置を用いて以下の3点の項目を明らかにすることを研究の目的とした。

項目(1): 複合機能応答の特性を有する複合機能性薄膜のプロセスの確立を行う。

項目(2): 誘電性—磁性の各種物性の評価を検討する。

項目(3): 磁界が誘電分極に及ぼす影響について検討する。

また、これらの3項目を互いにリンクさせ、複合機能性薄膜の開発プロセスを体系化させる。

本研究では(項目1)誘電体薄膜及び磁性体薄膜の双方の特性を有した新規複合機能性薄膜の作製プロセスの確立、(項目2)各種物性評価を行い、誘電性と磁性の相関性を検討し、(項目3)磁界中における誘電特性の変化を検討するとともに、ナノコンポジット状態における複合機能性薄膜材料の諸特性メカニズムの解明を目指して、本提案を行った。

## 3. 研究の方法

### (1) 複合機能性薄膜のプロセスの確立

①  $TiO_2$ ,  $HfO_2$  及び  $R_2O_3$  ( $R=rare\ earth$ ) に Co, Fe 合金チップを張り付け複合ターゲットを作製し、誘電性マトリックスと磁性クラスターより形成される複合薄膜の作製を、スパッタ装置を用いて集中して行う。

② 得られた膜の組成分析を電界放射型走査電子顕微鏡(FE-SEM)及び付属設備のEDS/WDSコンバインシステムを用いて行う。

### (2) 誘電特性及び磁気特性の相関性

① 得られた膜の膜厚及び電気抵抗を既存設備の蝕針式段差計及び電気抵抗計にて測定する。

② 得られた膜の磁気特性を、振動磁力計(VSM)及び交番力磁力計(AGM)を用いて評価を行う。

③ 得られた膜の誘電特性を、既存設備のLCRメータを用いて評価を行う。また、数種類の磁石付ホルダーを用いて、磁界中の誘電特性評価を行う。

### (3) 磁界が誘電分極に及ぼす影響

① 上記項目2の③の際に、磁石付ホルダーを用いて、膜面に対して垂直方向及び水平方向それぞれどのように影響するか、予備的検討を行う。

② 磁気ヒステリシス曲線との相関性を考えて、磁界の極性変化に伴う誘電率及び誘電損失の検討をする。

## 4. 研究成果

(1)及び(2)複合機能性薄膜のプロセスの

確立、誘電特性と磁気特性の相関性

図1に示されるように、Fe-Ti-O 薄膜において、様々なスパッタ条件において成膜した結果、誘電損失、磁化及び電気抵抗が相関性がある事が認められる。

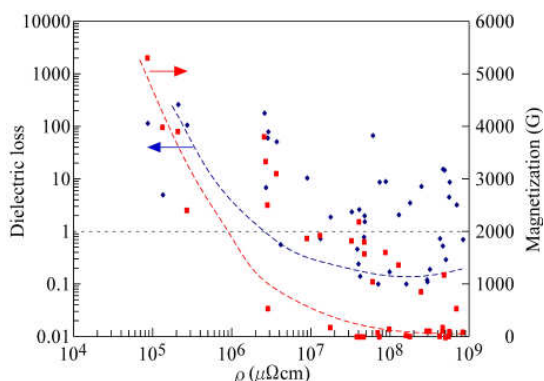


図1 Variations in dielectric loss and magnetization of Fe-Ti-O thin films as a function of electrical resistivity.

磁性金属元素の影響により、誘電損失については、若干のばらつきは確認されるが、 $1.0 \times 10^6 \mu \Omega \text{cm}$  以上の値でおよそ1以下の値を示す事が考えられる。また、磁化については、電気抵抗の増加に伴い大きく減少傾向を示す事が認められる。したがって、酸化物系複合機能薄膜の作製においては、電気抵抗に着目し、 $1.0 \times 10^6 \sim 1.0 \times 10^8 \mu \Omega \text{cm}$  の範囲で制御することにより、最適な誘電性-磁性複合機能薄膜の作製が可能であることが分かる。また、Fe-Ti-O 薄膜の誘電率は、図2に示すように、Ti-O 薄膜では10程度の値だったが、Fe含有量が30at.%付近まで増加傾向を示し、さらにFe含有量の増加に伴い、減少傾向を示した。

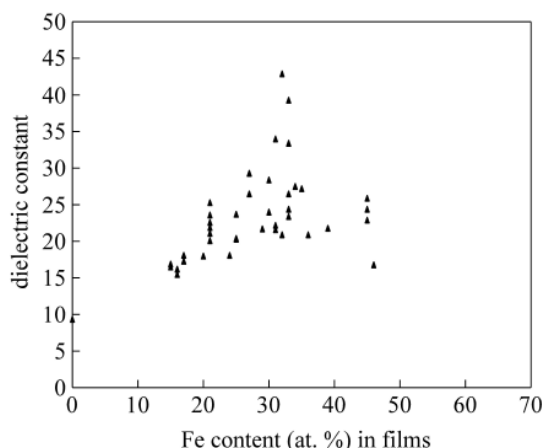


図2 Dielectric constant of Fe-Ti-O thin films deposited by room temperature.

Co-Hf-O 薄膜について、電気抵抗値を上記

$1.0 \times 10^6 \sim 1.0 \times 10^8 \mu \Omega \text{cm}$  で制御し、成膜した  $\text{Co}_{32}\text{Hf}_{24}\text{O}_{44}$  薄膜 ( $\rho = 3.2 \times 10^7 \mu \Omega \text{cm}$ ) と Hf-O 薄膜の各種特性を下記に示す。

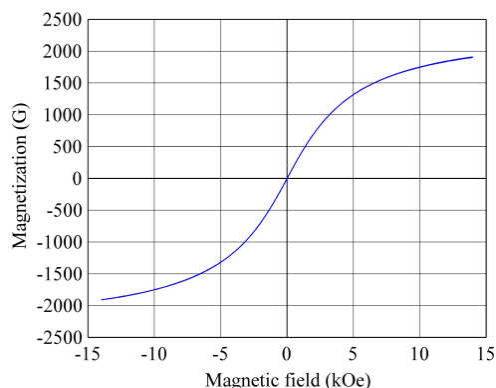


図3 B-H hysteresis loop of  $\text{Co}_{32}\text{Hf}_{24}\text{O}_{44}$  thin film.

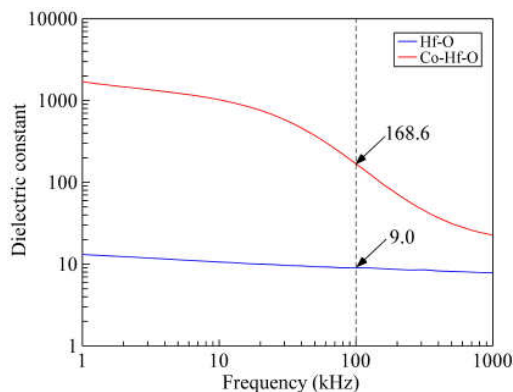


図4 Variations in dielectric constant of Hf-O and Co-Hf-O thin films as a function of frequency.

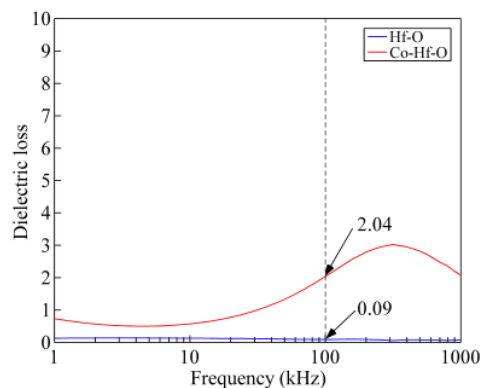


図5 Relationship between dielectric loss and frequency of Hf-O and Co-Hf-O thin films.

図3で示されるように、 $\rho = 3.2 \times 10^7 \mu \Omega \text{cm}$  の電気抵抗で、およそ2kGの磁化を示した。また、この薄膜の誘電特性は、図4及び5に示されるように、100kHzで誘電率168.6、誘

電損失は 2.04 を示した。したがって、誘電損失は大きく増加傾向を示したが、誘電率は Co の含有量の影響により、9 から 168.6 まで大きく増加した。

更に、Fe-Ti-O 及び Co-Hf-O 薄膜の作製と各種特性の相関性を検討し、Co-Y-O 薄膜を作製したところ、図 6 及び 7 に示される各種特性を示した。

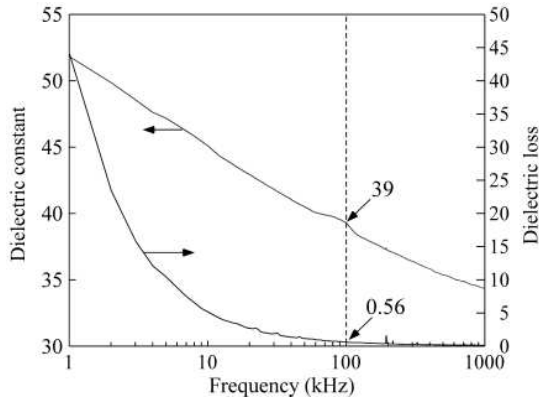


図 6 Dielectric constant and dielectric loss of Co-Y-O thin film deposited by room temperature.

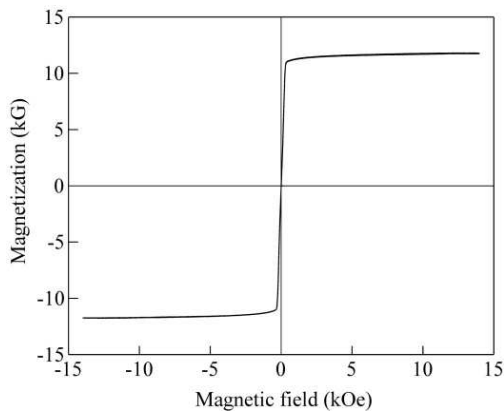


図 7 B-H hysteresis loop of Co-Y-O thin film.

図 6 に示されるように、誘電率及び誘電損失はそれぞれ 39 及び 0.56 を示した。また、磁気特性については、図 7 に示すようにおよそ 11kG の値が得られた。

これら Fe-Ti-O、Co-Hf-O 及び Co-Y-O 薄膜に共通している現象として、磁性金属元素の含有量を増やすことにより、増加傾向を示す事が確認された。

### (3) 磁界が誘電分極に及ぼす影響

誘電特性に及ぼす磁界の影響を測定、検討した結果、作製した薄膜の多くは磁界の印加に伴い減少傾向を示すことが認められた。この現象については、磁気抵抗効果との相関性が考えられる。

## 5. 主な発表論文等

(研究代表者、研究分担者及び連携研究者には下線)

[雑誌論文] (計 1 件)

Atsushi Yokoi, Hiroshi Masumoto and Junji Sugishita, Phase transition - crystal structure relations in ferroelectric  $\text{Bi}_{2.5}\text{Na}_{1.5}\text{Nb}_3\text{O}_{12}$  compound by molecular dynamics simulation, Materials Chemistry and Physics 116 (2009) 16-20

[学会発表] (計 1 件)

大沼 繁弘、岩佐 忠義、横井 敦史、増本 博、ナノ複相 Co-Nb-O 膜の作製とその複合機能性、日本金属学会 2009 年春季大会

## 6. 研究組織

(1) 研究代表者

横井 敦史 (YOKOI ATSUSHI)

財団法人 電気磁気材料研究所・電磁気材料グループ・研究員

研究者番号：60513760

(2) 連携研究者

増本 博 (MASUMOTO HIROSHI)

東北大学・学際科学国際高等研究センター・教授

研究者番号：50209459

大沼 繁弘 (OHNUMA SHIGEHIRO)

財団法人 電気磁気材料研究所・電磁気材料グループ・主席研究員

研究者番号：50142633

小林 伸聖 (KOBAYASHI NOBUKIYO)

財団法人 電気磁気材料研究所・電磁気材料グループ・主席研究員

研究者番号：70205475