弾性表面波励振基板上への蒸着による薄膜構造制御

高 橋 研*

1. は じ め に

近年、金属系の人工格子薄膜においては、異種金属界面に固有の表面異方性⁽¹⁾並びに、特異な磁気光学効果の出現⁽²⁾、また、積層界面および積層周期の磁気的ポテンシャルの変調構造を用いた巨大磁気抵抗効果⁽³⁾⁽⁴⁾などが、脚光を集めている。しかしながら、これらの諸物性は異種金属を積層した場合の積層界面の乱れ(すなわち、各薄膜の単層状態の2次元性の均質度合いに関連する)に強い相関があると理論的⁽⁵⁾にも実験的にも推測されてはいるものの、それを立証するための、確固たる実験的根拠に欠けるのが実状である。現在の所、SMOKE⁽⁶⁾およびRHEEDの振動パターンの実験等が、その単層膜面内の2次元性および積層周期に関する一般的な知見を得るために行われている方法である。したがって将来、2次元性に富むより理想的な超格子薄膜を形成するためには、各単層膜の2次元性の均質性の度合い、並びに界面の乱れ等を実験的に制御できる新たな成膜手法およびその評価方法を開発することは重要であると考えられる。

筆者らは、現在までの幾多の超薄膜並びに人工格子薄膜形成に際して、基板の種類およびその表面粗度のみが問題視されてきたこと(すなわち、静的な基板上への成膜)に留意し、一つの実験的な試みとして弾性表面波(SAW)で基板表面を励振させた動的な基板表面上への成膜を試みてみた。一例として、Mo-パーマロイおよびCo-Cr-Ta 各々の合金薄膜について、これら SAW で励振された LiNbO₃ 単結晶基板上への成膜を試みた結果、これらの薄膜の表面構造並びに金属組織が励振振幅の関数として極端に変化し、それに付随して、構造敏感な磁気特性である抗磁力 H_c および透磁率 μ が極端に大きく変化することを既に報告している⁽⁷⁾⁻⁽⁹⁾。これらの結果は、SAW で励振された基板

上への薄膜形成法は、2次元性に富む理想的な人工格子薄膜を形成するための新たな手法としての可能性を示唆しているものと考えられ興味深い。したがって、本報では、単一金属を用いて、この手法により薄膜の2次元性の向上がもたらされるものであるか否かをより詳細に検討するため、同様の手法により、励振振幅の関数として金属の組織および超薄膜状態での結晶性が如何に変化するかを調べてみた。その結果に基づき、SAW の伝搬特性と薄膜の2次元性の善し悪しに深く関係する薄膜の初期成長過程の関連性について検討した結果について簡単に述べる。

2. 実 験 方 法

図1に本実験に用いた基板の概略図を示す。基板としては、128°回転 Y 板の LiNbO₃ 単結晶基板を用い、励振用すだれ状電極を X 方向に配置し、周波数 45 MHz (波長 88 μ m) で SAW を励振した。SAW の伝搬特性は、ロックインアンプを用い励振電極から 6.5 mm 離れた受電電極で成長中の薄膜を通過してきた SAW の受電電圧 V を測定し、成膜前の受電電圧 V_{initial} との電圧比 V/V_{initial} を成膜

図1 基板の概略図と基板への印加電圧 V_a に伴う励振振幅 U_{n0-p} , U_{p0-p} の変化. (U_{n0-p} : 基板面に垂直方向, U_{p0-p} : 基板面に平行方向).

* 東北大学助教授; 工学部電子工学科

Thin Film Growth on the Substrate Excited by SAW and In-situ SAW Propagation Property; Migaku Takahashi (Faculty of Engineering, Tohoku University, Sendai)

Keywords: surface acoustic wave (SAW), SAW propagation property, thin film growth, nucleus density, layer-by-layer growth, island growth

1992年5月14日受理

時間の変化として計測し評価した。また、同図には基板表面上での SAW の表面振幅の印加電圧依存性を示している。 Un_{0-p} は基板表面に対しての垂直方向の振幅を、また Up_{0-p} は基板面内での振幅の大きさに対応している。したがって局所的には SAW で励振された場合の基板上の 1 点は、励振の周波数に同期した速さで楕円軌道の軌動をとりながら振動していることとなる。成膜には電子ビーム蒸着法並びに d.c. マグネトロンスパッタ法を用い、Fe 薄膜を作製した。膜の直径は SAW の伝搬幅 6 mm より小さい 5 mm ϕ とした。

3. 結 果

図 2 には、基板表面の SAW 励振の効果が、金属薄膜の初期成長過程に及ぼす影響を明らかにするため、Fe 薄膜を成膜速度 0.1 nm/s 一定、励振電圧 3 V (SAW 励振振幅 0.9 nm $_{0-p}$) の成膜条件下で、それぞれ 3 種類の異なった蒸着方法で作製した際の、SAW の伝搬特性を示す。縦軸は成膜前の受電電圧 $V_{initial}$ で規格化した $V/V_{initial}$ 、横軸は成膜速度と成膜時間から計算した膜厚である。ここで、3 種類の異なった成膜手法とは、各々、(I) 連続蒸着；SAW により常に励振された基板上へ連続成膜した場合、(II) ステップ蒸着；SAW により常に励振された基板上へ膜厚 0.5 nm ずつ断続的に成膜した場合、(III) 無励振ステップ蒸着；無励振の基板上への断続的な膜厚 0.5 nm ずつの成膜、であり伝搬特性はその都度その状態で SAW を伝搬させた場合に相当する。

連続蒸着(I)の場合、 $V/V_{initial}$ は、1 nm 程度まではほとんど 1.0 のままで変化せず、その後急激に減少し膜厚約 3 nm で約 0.01 の極小値を示す。その後、 $V/V_{initial}$ は再び増加している。しかし、約 3 nm 以上の膜厚では $V/V_{initial}$ は約 0.3 の一定値を示し、その後大きな変化は見られない。この連続蒸着の場合、成膜速度を 0.05~0.5 nm/s、また SAW 励振振幅を 0.9~2.4 nm $_{0-p}$ までの条件下で変化させ、同様に Fe 蒸着膜を作製した場合においても上記と全く同様の伝搬特性が得られる。

一方、ステップ蒸着(II)の場合は、SAW の伝搬特性はモード(I)の場合と同一である。また、興味深い点としては、ステップ蒸着における各点での受電電圧 V は、それぞれ設定の膜厚まで成膜後、SAW で励振を続けても時間変化を起こさないことである。このことは、一度基板上に固着した原子は、その後 SAW で励振されても基板表面上の移動による構造緩和を起こさないことに対応しているものと思われる。一方、連続蒸着(I)並びにステップ蒸着(II)と無励振ステップ蒸着(III)との場合を比較すると、 $V/V_{initial}$ が極小をとる臨界膜厚が大きく異なっていることが分かる。すなわち、(I)および(II)の場合には臨界膜厚は約 3 nm であるのに対し、(III)の場合には約 6 nm と大きな値を示している。この違いに対しては、成膜後に基板表面が SAW で励振されても一度基板上に付着した原子の構

図 2 Fe 蒸着薄膜の伝搬特性。

造緩和が起きないことから、SAW で励振された基板上への特異な成膜効果が原因であることが容易に推察される。

さて、図に見るように、 $V/V_{initial}$ の膜厚に対する極小値の出現については、薄膜の初期成長過程に深く関わる受電側での SAW の位相ずれの問題を検討する必要がある。すなわち、一般に、圧電基板表面が金属のような導電膜によって覆われると、基板の表面電界が短絡されるため、導電膜上の SAW の伝搬速度は v_m は、金属膜が付着していない基板上の伝搬速度 v_0 に比べて遅くなることが知られている。このことを念頭におくと、成膜開始から膜厚約 0.5 nm までは、基板の表面電界を短絡する Fe の初期核の大きさが SAW の波長 88 μ m より非常に小さいため、SAW の速度分散はほとんど起こらない。すなわち、この際受電側での SAW は時間に関して位相ずれを生じないことから受電電圧が減衰せず、 $V/V_{initial}$ は一定値のまま 1.0 を示す。しかしながら膜厚の増加に伴い核が結合し、膜構造が島状から連続状態へ変化するとすると、それらの構造変化に伴い基板の表面電界の短絡は急激に促進される。その結果として、SAW の速度分散が急増し受電側での SAW が時間的にインコヒーレントになるため、 $V/V_{initial}$ が急激に減少することとなる。さらに、膜厚が増加し、ほぼ膜全域で膜構造が連続状態になると、SAW の速度分散は全体として減少するため再び $V/V_{initial}$ は上昇することとなる。このように考えると、 $V/V_{initial}$ が極小値を示す膜厚は、膜構造が島状から連続状態へと移行する臨界の膜厚に対応することが推察される。

このことより、SAW で励振された基板上への成膜手法は、成長初期の膜構造が島状から連続状態へ移る臨界膜厚を、無励振の場合と比較して薄い所へと変化させることを意味している。

また一方、図 3 には、無励振と振幅 2.1 nm $_{0-p}$ で励振された各々の基板上へ、成膜速度 0.5 nm/s で作製した膜厚 30 nm の Fe 蒸着薄膜の表面を STM で観察した結果を示した。図より明らかなように、励振された基板上への成膜の場合は、無励振で作製された薄膜の場合に比べて非常に

無励振

励振電圧 7 V

図3 成膜速度 0.5 nm/s 一定, 無励振および励振電圧 7 V の条件下で作製された膜厚 30 nm の Fe 蒸着薄膜の STM 像.

平滑で緻密な膜表面が実現されていることが分かる.

以上, SAW の伝搬特性と STM 像の結果から, 平均膜厚および初期核の大きさが一定の条件下においては, SAW 励振の効果は無励振の場合に比べて, 初期核面密度を増加させることに関連していると考えられる. すなわち, 無励振の場合では島状的な薄膜の初期成長様式がかなり厚い膜厚まで維持されるが, 成膜中に SAW 励振することにより, この成長は層状的な成長様式に代わるものと推察される.

図4には, 以上の結果に基づき無励振並びに SAW で励振した基板上への Fe 薄膜の成膜に関して, 初期成長過程での核成長の様子の違いをモデル図にて示した. 図中での核の相対的な大きさおよび密度は, 膜厚 30 nm での STM 像の凹凸の周期, および SAW の伝搬特性における臨界膜厚の違いを基に評価した.

一方, 同様の手法によりスパッタ法で Fe 薄膜を作製した場合, SAW の伝搬特性は, 蒸着法の場合と同様の膜厚依存性を示した. しかしながら, スパッタ法の場合, V/V_{initial} が極小を示す臨界膜厚は約 2 nm と, 蒸着法の場合の約 3 nm に比べて薄い. これは, スパッタ法での成膜の方が蒸着法の場合よりも, 薄い膜厚で膜構造が島状から連続状態へ移行することに対応している. したがって, スパッタ法の場合, 飛来粒子の持つ運動エネルギーが蒸着法の場合よりも約 1 桁大きいことから, 基板表面上での粒子の移動度の大きい方が, SAW で励振する効果がより顕著に現れることが分かる.

図4 無励振および励振の条件下で作製した Fe 蒸着膜の初期成長過程における表面形態のモデル図.

4. ま と め

SAW で励振された基板上への薄膜形成は, 薄膜の初期成長時の核面密度を増加させ, 2 次的に均質な薄膜を作製する上で有効であることが分かった. したがって, 今後この手法を人工格子薄膜作製に適用し, SAW の振幅を変化させながら積層膜を作製することで, 積層界面の乱れを人工的に制御できる可能性があることが示唆される.

文 献

- (1) 例えば, F. den Broeder, E. Janssen, W. Hoving, S. Purcell and W. Zeper: INTER MAG'92, IEEE in press.
- (2) 例えば, P. F. Carcia: J. Appl. Phys., **63**(1988), 5066.
- (3) 例えば, M. N. Baibich, J. M. Broto, A. Fert, F. Nguyen Van Dau and F. Petroff: Phys. Rev. Lett., **61**(1988), 2472.
- (4) 例えば, S. S. Parkin, N. More and K. P. Roche: Phys. Rev. Lett., **64**(1990), 2304.
- (5) 例えば, H. Hasegawa: J. Phys.; Condens. Matter., **4**(1992), 169.
- (6) 例えば, Y. Suzuki, H. Kikuchi, T. Katayama and S. Yoshida: J. Appl. Phys., **67**(1990), 5394.
- (7) M. Takahashi, A. Fujita, T. Shimatsu and T. Wakiyama, J. Yamada and T. Shiba: IEEE Trans. Magn., **MAG-26**(1990), 1453.
- (8) 高橋 研, 藤田昭彦, 島津武仁, 脇山徳雄, 山田 純, 芝 隆司: 日本応用磁気学会誌, **14**(1990), 323.
- (9) 高橋 研, 田中寿郎, 島津武仁, 植村 誠, 脇山徳雄, 山田 純, 芝 隆司: 日本応用磁気学会誌, **15**(1991), 323.

略 語

SAW : surface acoustic wave, 弾性表面波.

SMOKE : surface magneto-optic Kerr effect, 表面磁気光学カー効果.

RHEED : reflection high energy electron diffraction, 高速反射電子線回折法.

STM : scanning tunneling microscope, 走査型トンネル顕微鏡.