18a-P1-10

⁵⁷Fe 濃縮 BiFeO₃ 薄膜の微構造制御とメスバウア・スペクトルⅡ Microstructure Control and Mössbauer Spectra of ⁵⁷Fe-enriched BiFeO₃ Thin Films II 静岡理工科大 総合技術研究所¹,静岡理工科大 理工学部²,東京理科大 理学部³

⁰田中清高 ¹, 塚本美徳 ², 岡村総一郎 ³, 吉田 豊 ²

Shizuoka Institute of Science and Technology (SIST)^{1, 2}, Tokyo University of Science ³ [°]K. Tanaka¹, Y. Tsukamoto², S. Okamura³, and Y. Yoshida²

E-mail: k-tanaka@ob.sist.ac.jp

【はじめに】マルチフェロイック特性を示す BiFeO₃(BFO)が注目 されている。我々は、メスバウア分光法を用いて BFO 薄膜の Fe の価数や磁気状態と電気特性との関連性に着目し、これまでに 安定なアイソトープ⁵⁷Fe を約 50%まで濃縮することで、薄膜形態 でのメスバウア・スペクトルを得ることに成功した。この⁵⁷Fe 濃縮多 結晶 BFO 薄膜は飽和した P-Eヒステリシスを室温で示し、残留分 極 P_rは最大で 89µC/cm² であった[1-3]。前回は、メスバウア・スペ クトルで現れた常磁性相や粒・粒界構造が強誘電性に影響して いることを指摘した[2]。引き続き今回は、微構造制御した⁵⁷Fe 濃 縮 BFO 薄膜のメスバウア・スペクトル、P_rの飽和特性、リーク電流 密度について検討した。

【実験方法】メスバウア分光用に⁵⁷Fe を約 50%まで濃縮した MOD 系前駆体溶液(濃度:0.2M)を Pt/Ti/SiO₂/Si 基板にスピンコ ートし, 乾燥, 仮焼成までを 20 回繰り返し, 最後に本焼成(550℃, 5~90 分, in air)を行った(膜厚:500nm)。Bi/Fe 比は波長分散型 X 線分析(WDX)を用いて 15 カ所の平均を算出した。微細構造 はX線回折(XRD), 走査型電子顕微鏡(SEM), ⁵⁷Fe メスバウア分 光を用いた。Pt/BFO/Pt キャパシタの電気特性として, *P-E* ヒステリ シス, リーク電流密度の測定を室温で行った。

【結果と考察】各⁵⁷Fe 濃縮 BFO 薄膜の XRD では二次相は検 出されず, ペロブスカイト相であった。WDX より, Bi/Fe 比は 0.93 ~0.95 であった。Fig. 1 に各薄膜のメスバウア・スペクトルを示す。 BFO に由来する(反)強磁性相の 6 本線が現れ, 解析の結果 Fe の価数は Fe³⁺のみであった。0mm/s 付近には常磁性相が現れ, その比率は本焼成時間が 5,30,90 分の薄膜で約 12,11,18% であった。Fig. 2 と Fig. 3 に P_rの飽和特性と, リーク電流密度を それぞれ示す。各薄膜は室温で P-E ヒステリシスが得られ, 1400kV/cm 印加時の Prは, 55, 89, 87µC/cm²であった。本焼成 時間 90 分では飽和特性が若干悪く, 10⁻⁴A/cm² のリーク電流密 度, 粒径は約100~400nmであった。一方, 本焼成時間5分では 飽和特性に優れ,リーク電流密度は10⁻⁶~10⁻⁵A/cm²と低く,結晶 粒は成長前であった。最も高いPrを示した本焼成時間30分では、 常磁性相の比率と飽和特性は5分の場合と同等で,粒径とリーク 電流は 90 分の場合と同等であった。以上より, 常磁性相の比率 と粒界の有無が電気特性に影響していると考えられる。

Stinco perijewor -15 -10 -5 0 5 10 15 Velocity (mm/s)

Fig. 1. Mössbauer spectra of 57 Fe-enriched BiFeO₃ thin films fabricated at 550°C.



Fig. 2. Saturation characteristics obtained from the *P-E* hysteresis loops of ⁵⁷Fe-enriched BiFeO₃ thin films fabricated at 550°C. Inset shows the *P-E* hysteresis loops (550°C 5 min).



Fig. 3. *J-E* properties of 57 Fe-enriched BiFeO₃ thin films fabricated at 550°C.

【謝辞】本研究は、平成 22~26 年度文科省私立大学戦略的研究基盤形 thin films fabricated at 550°C. 成支援事業「省資源型の地域産業創成を目指した微量元素分析・マッピング技術の開発と応用」の一部として行われた。

[1] K. Tanaka, Y. Tsukamoto, K Hayakawa, and Y. Yoshida: Jpn. J. Appl. Phys. **51**(2012)09LB03. [2] 田中, 塚本, 岡村, 吉田, 2013 年春季応用物理学会 28a-D3-1. [3] 田中, 塚本, 岡村, 吉田, 第 30 回強誘電体応用会議 25-T-21.