(111)配向 BiFeO₃系マルチフェロイック薄膜の低温形成 ースパッタリング成膜中における VHF プラズマ照射の効果ー Low-temperature fabrication of BiFeO₃ based multiferroic thin films with (111) orientation by sputtering deposition process with VHF plasma irradiation

秋田大院工資 菅原 祐輔,^〇吉村 哲,齊藤 準

Akita Univ. Yusuke Sugawara, [°]Satoru Yoshimura, Hitoshi Saito

E-mail: syoshi@gipc.akita-u.ac.jp

はじめに: 強磁性・強誘電性を併せ持つマルチフェロイック材料は,電場による磁化方向の制御,磁場による電気分極方向の制御が可能で,その機能性を利用した革新的な記録デバイスなどに応用される可能性があるため,有望な次世代電子材料として現在盛んに研究されている.強誘電体である BiFeO₃において,Biを Ba,Feを Mn で置換した Bi_{1-x}Ba_xFeO₃¹⁾,BiFe_{1-x}Mn_xO₃²⁾などの薄膜において,強磁性が観測されている.このようなマルチフェロイック薄膜の作製には,通常,パルスレーザーデポジション(PLD)法や化学溶液プロセス法が多く用いられているが,前者は,量産性に優れない,後者は,結晶配向制御が困難,などの理由から,現実的なデバイス製造プロセスに適用することが非常に困難である.そこで本研究では,生産性に優れたスパッタリング法を用い,分極方向が膜面垂直になるように結晶配向制御された薄膜を形成するプロセスを確立し,Bi_{1-x}Ba_xFeO₃薄膜においてマルチフェロイック特性を得ることを目的とした.

<u>実験</u>: 熱酸化膜付き Si 基板上にマグネトロンスパッタリング法を用いて, Ta(5 nm)/Pt(100 nm)/ BiFeO₃(BFO)(100 nm)積層膜および Ta(5 nm)/Pt(100 nm)/Bi_{0.8}Ba_{0.2}FeO₃(BBFO)(50 nm)積層膜を作製 した. 成膜時の基板温度を, Ta は室温, Pt は 300℃, BFO, BBFO は室温もしくは 400℃とした. 本条件で成膜することにより, Pt 下地層は高(111)配向することを確認している. さらに, BFO お よび BBFO 薄膜のペロブスカイト構造形成の促進を図ることを目的として, スパッタリング成膜 時の薄膜に弱い高周波(VHF)プラズマを照射した. 作製した試料の構造解析は, X線回折装置 (XRD)により,磁気測定は試料振動型磁力計(VSM) により,誘電特性は, BBFO 積層膜の最表面 に Pt ドット状電極(ϕ 200 µm)を成膜し, 強誘電体特性評価システムで評価した.

結果: Fig.1 に BFO の成膜条件を変えて作製した Ta/Pt/BFO 積層膜の XRD パターンの結果を示 す. Ta/Pt下地層の XRD パターンも合わせて示す. Ptおよび BFO の(111)回折ピークが共に2 θ =39° 付近に現れるため, Ta/Pt下地層の Pt(111)ピーク強度と Ta/Pt/BFO 積層膜の Pt(111)・BFO(111)ピー ク強度を比較することで BFO 薄膜の結晶性が評価できる. 400°Cで加熱成膜することにより BiFeO₃ 化合物が生成して(111)配向し, さらに 0.1 W/cm² の VHF プラズマ照射を行うことで BiFeO₃ 化合物の生成量がさらに増大することを確認した. この化合物形成の促進は, 薄膜を構成する原 子に運動エネルギーを付与してマイグレーションを誘発させたことによるものと考えられる. Fig.2(a)および(b)に, BBFO 薄膜の P-E 曲線およびM-H 曲線を示す. (a)より, 飽和分極(P_s)が6 μ C/cm² のヒステリシスが得られ, (b)より, 15 emu/cm³ 程度の飽和磁化(M_s)が得られたことから,本薄膜 はマルチフェロイック特性を有すると言える. これより, スパッタリング法による(111)配向した ペロブスカイト構造の BFO 系薄膜の作製が 400℃の低温で可能になったと言える. しかしながら, 分極値および飽和磁化値は,参考文献 1), 2) で報告されている値の 5 分の 1 以下であった. その 原因として BBFO 薄膜組成の化学量論比からのずれや酸素欠損が挙げられ,これを最適化するこ とで,磁気・誘電特性の改善を進めている.





Fig. 2 (a) *M*-*H* loops and (b) *P*-*E* loop of Ta/Pt/BBFO multilayers.

<u>参考文献</u>: 1) D. H. Wang et al., *Appl. Phys. Lett.*, **88**, 212907 (2006) 2) D. S. Rana et al., *Europhysics Letters*, **84**, 67016 (2008)

謝辞:誘電特性評価にご協力賜りました名古屋大学 浅野秀文、坂本渉 両先生に感謝申し上げます.