

Si 基板上の $\text{Bi}_{4-x}\text{La}_x\text{Ti}_3\text{O}_{12}$ 強誘電体薄膜の結晶構造とヒステリシス特性

Crystal Structure and Hysteresis Characteristics of $\text{Bi}_{4-x}\text{La}_x\text{Ti}_3\text{O}_{12}$ Ferroelectric thin films formed on Si(100) substrates

○香野淳、田尻恭之（福岡大理）

○Atsushi Kohno and Takayuki Tajiri (Faculty of Science, Fukuoka University)

E-mail: kohno@fukuoka-u.ac.jp

1. はじめに 鉛を含まない強誘電体メモリ材料のひとつである $\text{Bi}_{4-x}\text{La}_x\text{Ti}_3\text{O}_{12}$ (BLT) を、化学溶液堆積法を用いて Si 基板上に直接堆積、結晶化すると、優先配向を有する膜が形成されることが見出され、配向性などが調べられてきた [1, 2]。薄膜としての分極の制御の観点から結晶配向の形成過程の理解は重要である。また、格子歪みや Si 基板との間に自然形成される界面層は電気特性に大きな影響を与えるため、結晶構造と界面層に関する理解は重要である。本研究では、Si(100)基板上に形成した BLT 薄膜の構造（配向、歪みなど）とそのヒステリシス特性への影響を調べた。

2. 実験方法 BLT 前駆体溶液（関東化学(株)製）、酢酸ブチル、 BiO 塗布溶液（EMOD 溶液）を原材料として、スピコート溶液を作製した。それらの溶液の混合比を調整して、膜厚や結晶相の制御を試みた（ここで、BLT 前駆体： BiO 溶液：酢酸ブチルの混合比を BLT: BiO :BA と記す）。p-Si(100) 基板を化学洗浄し、希フッ酸処理した後、直ちに溶液をスピコートして、大気中 150°C で 30 分間の乾燥を行った。その後、酸素雰囲気中、 550°C で 2 時間の結晶化を行った。また、電気特性の計測のために、薄膜上に Au 電極を作製して、Au/BLT/p-Si(100)の MFS(metal-ferroelectric-semiconductor) 型キャパシタを作製した。X 線回折 (XRD) 及び X 線反射率法 (XRR) により結晶構造、薄膜構造を調べた。

3. 結果と考察 Fig. 1 に 550°C 、2 時間の結晶化を行った薄膜の X 線回折プロファイルを示す (2θ - θ スキャン)。参照データとして BLT の粉末試料の測定結果も示してある。また、X 線反射率法を用いて薄膜構造を調べた結果、各試料の膜厚は (1) ~71nm、(2) ~24nm、(3) ~18nm であることが分かった。BLT 粉末試料では、多くの文献データと同様に 117 回折が最大ピークとなっている。一方、薄膜試料では、200 回折が非常に強く現れており、その傾向は膜厚が薄くなるほど顕著である。このことは、薄膜に a-, b-軸優先配向があることを示している。さらに、膜厚が薄いほど配向が強くなっていること等から、Si 基板との界面で結晶核が発生し、エピタキシャル成長が起こったことが示唆される。また、200 回折のピーク位置が膜厚によってわずかにシフトしていることから、格子歪みが生じていることが示唆される。Fig. 2 は Au/BLT(~18nm)/p-Si(100) キャパシタ構造の静電容量-電圧(C-V) 特性である。膜厚~18nm の BLT 薄膜でも明瞭な強誘電性ヒステリシスが観測されていることがわかる。ヒステリシス特性は BLT 膜の配向性と強く相関していることが確かめられた。結晶配向、結晶格子歪みなどの構造と電気特性について議論する。

参考文献 [1] T. Tajiri 他, IEEE transactions on ultrasonics, ferroelectrics, and frequency control, vol. 54, p. 2574, 2007. [2] 香野他, 2015 年<第 76 回>応用物理学会秋季学術講演会, 14a-4E-7, 2015.

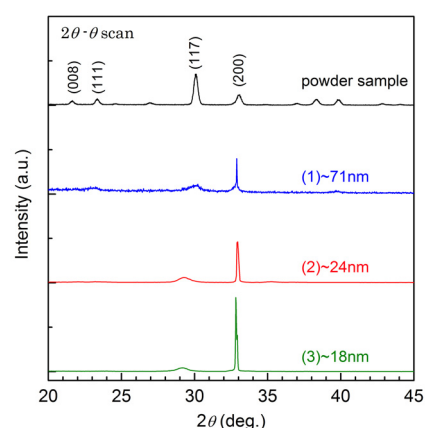


Fig. 1 X-ray diffraction of BLT thin films on p-Si(100) and BLT powder sample.

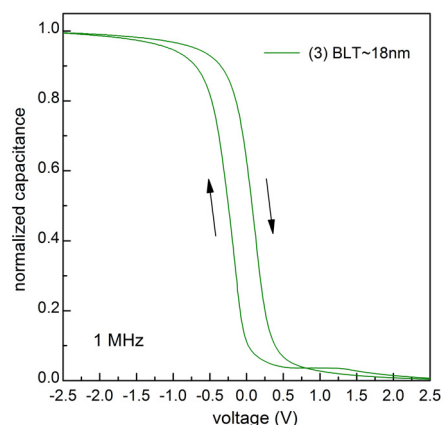


Fig. 2 Capacitance-Voltage characteristics of Au/BLT(~18nm)/p-Si(100) structure.