原子層堆積法による BiFeO₃ 薄膜の成長Fabrication of BiFeO₃ thin films by Atomic Layer Deposition

上智大理工 °平林 三寛, 中村 葵, 査 尚豪, 下迫 直樹, 坂間 弘

Sophia Univ. M. Hirabayashi, A. Nakamura, S. Zha, N. Shimosako and H. Sakama

E-mail: h-sakama@sophia.ac.jp HP: http://www.ph.sophia.ac.jp/~saka-ken/

【はじめに】原子層堆積法(Atomic layer deposition : ALD)とは、薄膜及びナノ構造作製の表面制御プロセスであり、基板上に異なる種類の原料蒸気を交互に供給し、それらが交互に化学吸着し、表面反応と離脱を繰り返すことで薄膜やナノ構造を作製する手法である。そのため単分子(原子)層レベルでの構造制御が可能であり、均質性に富み、欠陥やピンホールが少ない薄膜やナノ構造を得られる。

BiFeO₃ (BFO)は室温で強誘電性を示すことが知られている。また、薄膜では 90K で 150 μC/cm² を超える巨大な自発分極を示すことが報告されている。^[1] さらに、毒性が少ないため、有毒な Pb を含む Pb(Zr,Ti)O₃(PZT)に代わる次世代の強誘電体メモリへの応用が期待されている。しかし、ゾルゲル法などで作製した BFO は PZT に比べてリーク電流が大きく、結晶性の改善が望まれている。ALD は先に述べた利点により結晶性を改善できる可能性があるが、ALD を用いた BFO の成膜例は少ない。そのため、本研究では ALD を用いた BFO 薄膜の作製を試みた。

【実験】本研究では Table 1 に示す条件を含む 3 条件で BFO 薄膜の成膜を試みた。前駆体としてトリフェニルビスマス(Bi(C₆H₅)₃)とフェロセン(Fe(C₅H₅)₂)を用い、酸化剤にはオゾンを用いた。基板には、BFO と同じペロブスカイト構造をもち、格子定数が近い SrTiO₃(100)(STO) を用いた。X 線回折(XRD)を用いて結晶構造解析、X 線光電子分光(XPS)を用いて電子状態の解析、原子間力顕微鏡(AFM)を用いて表面形状の測定を行った。試料は 600~900°C でアニールを行った。

【結果】Fig.1 は Table 1 の条件で作成した試料の XRD 測定結果である。成膜直後ではアモルファスであったが、600°C でアニールすることで BFO(100)が

現れた。ただし、強度としては弱いものの、β-Bi₂O₃ と Fe₂O₃ も共存している。また、XPS から、Fe と Bi はいずれも +3 価で存在することがわかった。以上のことから、主に BFO (100)が STO(100)上に選択的に成長することがわかった。

[1] K. Young YUN et al., *J. Appl. Phys*, 43 (2004) L647-648

Table 1: Fabrication conditions of BFO thin films by ALD

precursor	Bi(C ₆ H ₅) ₃ and Fe(C ₅ H ₅) ₂
oxidant	O ₃
purge gas	N ₂
growth temp(°C)	280
precursor temp(°C)	170 and 95
pulse time (s)	1 and 3
deposition sequence	5(Bi-O)-5(Fe-O)
cycles	200
substrate	SrTiO ₃ (100)

Fig.1: XRD patterns for BiFeO₃ films grows on SrTiO₃ (100) substrates