

Fe₂O₃シード層がBiFeO₃薄膜のMOCVD成長に及ぼす影響

Influence of Fe₂O₃ Seed Layer on Thin Film Growth of BiFeO₃ by MOCVD

兵庫県立大・工, °(M2)吉村 奈緒, 藤沢 浩訓, 中嶋 誠二, 清水 勝

Univ. of Hyogo, °Nao Yoshimura, Hironori Fujisawa, Seiji Nakashima and Masaru Shimizu

E-mail: ei17d026@steng.u-hyogo.ac.jp

【はじめに】BiFeO₃(BFO)薄膜はPZT系薄膜に比べ組成ずれや酸素欠陥などにより高い絶縁性を得ることが難しいことが知られている。我々は高酸素分圧下での成長が可能なMOCVD法に着目し、プロセスウィンドウが存在することなどを報告してきた。しかし、組成がほぼ一定に見えるプロセスウィンドウ内であっても組成は僅かに変動していた。そこでFe₂O₃シード層を用い成長初期の組成制御による組成安定性の向上を試みたので報告する。

【実験方法】Bi及びFe原料としてBi(C₆H₅)₃及びFe(thd)₃を、酸化剤としてO₂及びO₃を用いた。Fe原料は142°C、Bi原料は160°Cで気化させ、キャリアガス(Ar)により反応室に輸送した。SrRuO₃/SrTiO₃(001)基板上に成膜温度640°C、反応圧力1330Paで膜厚150nmのBFOをFe₂O₃シード層と共にエピタキシャル成長させた。AFM, SEM, XRDによる構造/結晶性評価, XPS, SEM-EDXによる組成分析及びPt上部電極を用いたキャパシタ構造での電気的特性の評価を行った。

【実験結果】シード層が薄膜組成制御に与える影響を調べるため、膜厚の異なるシード層上にBFO薄膜を成長させた。膜厚5nm以上のシード層上にBFOを成長させた場合、ヘマタイト(Fe₂O₃)の回折ピークが観察され、BFO/SRO界面にFe₂O₃が残っていることが分かった。シード層がない場合と比較するとBFO(001)のピークが高角にシフトしており、Fe₂O₃とBFO間での格子不整合による格子緩和が起こっていると考えられる。一方、シード層膜厚2nm以下ではBFO(001)のピークはシード層なしの場合と同じ角度に観察され、シード層はBFOに取り込まれたと考えられる。

図1はプロセスウィンドウ内で調査したBiキャリアガス供給量に対する薄膜組成及び200kV/cmの電界印加時のリーク電流密度である。リーク電流密度は同一のサンプル内で複数点測定しそれらを全てプロットした。図1(a)のシード層なしの場合ではプロセスウィンドウ内であっても組成の変動が見られ、それに対応してリーク電流密度も変化している。図1(b)のシード層有りの場合では薄膜組成が単調に変化しており薄膜組成安定性が向上していた。この場合も薄膜組成に対応してリーク電流密度が変化しており電気的特性の安定性も向上した。これらより、薄膜組成とリーク電流密度は連動し1%程度の薄膜組成変化でリーク電流が2-4桁程度悪化することが分かる。よって、Fe₂O₃シード層挿入により薄膜組成安定性が向上することでBFOの絶縁性を改善できると考えられる。当日は、酸化ガスとしてO₂だけでなくO₃を導入して成膜した場合についても議論する。

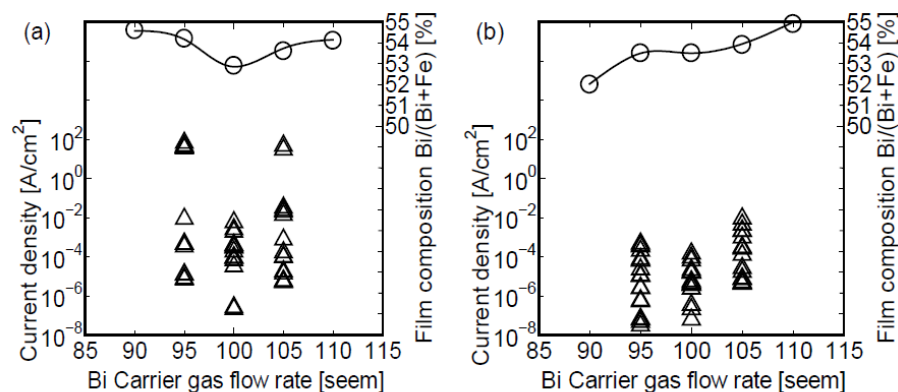


Fig.1 Film composition Bi/(Bi+Fe) and leakage current density as a function of the Bi carrier gas flow rate of BFO films (a) without and (b) with seeds.