

ペロブスカイト酸窒化物 CaTaO_2N のエピタキシャル成長の基板依存性Influence of crystal structure of substrate on epitaxial growth of CaTaO_2N thin film

東大院理¹, 筑波大² ○若杉人¹, 廣瀬靖¹, 中尾祥一郎¹, 原山勲², 杉澤悠紀²,
 菊田純市², 関場大一郎², 長谷川哲也¹

Univ. of Tokyo¹, Univ. of Tsukuba² ○ T.Wakasugi¹, Y.Hirose¹, S.Nakao¹, I.Harayama²,
 Y.Sugisawa², J.Kikuda², D.Sekiba², T.Hasegawa¹

E-mail: wakasugi@chem.s.u-tokyo.ac.jp

【背景】ペロブスカイト型酸窒化物は可視光応答型水分解光触媒や誘電体として盛んに研究されている。例えば、 CaTaO_2N では水の全分解反応が報告されている[1]。また、 $\text{Ca}_{1-x}\text{Sr}_x\text{TaO}_2\text{N}$ 薄膜ではエピタキシャル歪みを異方的に加えることで窒素原子配置に秩序性が生まれ[2]、強誘電性の発現が予測されている。ペロブスカイト型酸窒化物では、格子定数や面方位の異なる基板にエピタキシャル成長することで格子歪みや局所的な構造の制御が可能で、磁性や電気伝導性といった物性を変調できるが[3]、ペロブスカイト型酸窒化物において基板の結晶構造や面方位がエピタキシャル薄膜の構造や物性に与える影響を詳細に議論した例はほとんどない。そこで本研究では、結晶構造、格子不整合(Δa_{pc})、面方位の異なる基板上に CaTaO_2N をヘテロエピタキシャル成長し、これらのパラメータの結晶性への影響を調査した。

【実験方法】 CaTaO_x をターゲットに用いた反応性 RF マグネトロンスパッタ法により、ペロブスカイト酸窒化物単結晶基板上に CaTaO_2N 薄膜を作製した。Ar および N_2 をプロセスガスとし、スパッタ全圧 $P_{tot} = 0.75$ Pa、 N_2 分圧 $P_{\text{N}_2} = 0.075$ Pa、基板温度 $T_s = 630^\circ\text{C}$ を成膜パラメータとした。結晶構造は X 線回折(XRD)、表面形状は原子間力顕微鏡で評価した。

【結果と考察】 SrTiO_3 (立方晶、 $\Delta a_{pc} \sim -1.1\%$) の(100)、(110)、(111)面上に成膜した CaTaO_2N 薄膜はコヒーレント成長した。(Fig. 1)。また膜厚 $t = 20$ nm と 190 nm の結晶性を比較すると、(100)基板および(111)基板では、(110)基板に比べ結晶性の低下が顕著であった。これは CaTaO_2N が斜方晶[4]であるため、(100)_{pc} 面および(111)_{pc} 面では(110)_{pc} 面よりも面内配向の異なる成長様式の数が多く、膜厚増加に伴うマルチドメイン化が急速に進行するためと考えられる[5]。また、いずれの面方位においても $t = 190$ nm では表面のステップ&テラス構造が消失した。

一方、 DyScO_3 (斜方晶、 $\Delta a_{pc} \sim -0.3\%$) の(110)面上に成膜した CaTaO_2N (100)_{pc} 薄膜では、 $t = 190$ nm においても高い結晶性とステップ&テラス表面が維持された(Fig. 2a)。これは、 Δa_{pc} が小さいことに加えて、 DyScO_3 基板が CaTaO_2N と同じ斜方晶であるため、格子整合する CaTaO_2N 面の面内配向が単一なシングルドメイン成長したこと(Fig. 2b)に由来する。発表では他のペロブスカイト酸窒化物基板(LSAT, NdGaO_3 , GdScO_3) 上での CaTaO_2N のエピタキシャル成長および作製した薄膜の光吸収スペクトルについても議論する予定である。
 <参考文献> [1] J. Xu *et al.*, Chem. Commun., 51, 7191 (2015). [2] D. Oka *et al.*, ACS Nano, 11, 3860 (2017). [3] W. Lu *et al.*, Sci. Rep., 5, 1 (2015). [4] E. Günther *et al.*, Anorg. Allg. Chem. 626, 1519 (2000). [5] J.C. Jiang *et al.*, Appl. Phys. Lett., 72, 909 (1998).

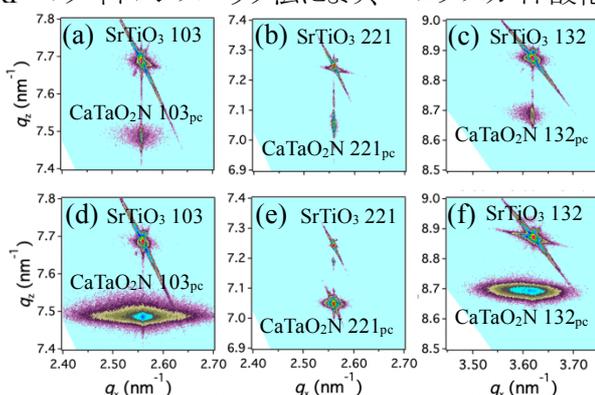


Fig. 1. Reciprocal space maps of CaTaO_2N thin films on (a, d) (100), (b, e) (110), and (c, f) (111) plane of SrTiO_3 substrates; (a-c) $t = 20$ nm and (d-f) $t = 190$ nm.

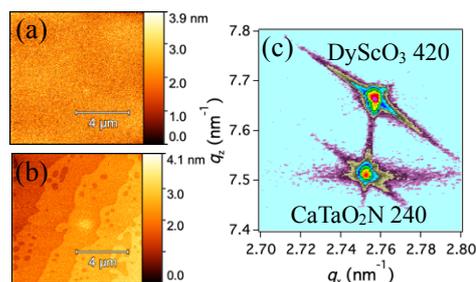


Fig. 2. (a, b) AFM images of CaTaO_2N thin films ($t = 190$ nm) on (a) SrTiO_3 (100) and (b) DyScO_3 (110) substrates. (c) Reciprocal space map of the film grown on DyScO_3 (110) substrate.