

CSD 法による LaNiO_3 薄膜の自己配向成長と成膜条件の相関

Relationship of deposition conditions and self-orientation of LaNiO_3 thin films prepared by chemical solution deposition method

金沢大理工¹, (株)高純度化学研究所², 量研・高崎研³

芦原凛太郎¹, 河原正美², 岡崎宏之³, 山本春也³, 〇川江 健¹

College of Sci. & Eng. Kanazawa Univ.¹, Kojundo Chemical Lab. Co., Ltd.², QST Takasaki³

R. Ashihara¹, M. Kawahara², H. Okazaki³, S. Yamamoto³, 〇T. Kawae¹

E-mail: kawae@ec.t.kanazawa-u.ac.jp

【はじめに】様々な基板上で自己配向性を示す LaNiO_3 (LNO) 薄膜は、多様なペロブスカイト酸化物薄膜の形成に対するテンプレート層として期待される。これまでに化学溶液堆積 (CSD) 法で作製した LNO 薄膜の自己配向と熱処理条件の関係性や目的物質に対するテンプレート機能について報告してきた。本研究では、CSD 溶液や基板材料の違いによる LNO 薄膜の自己配向性に関して、主にテンプレート機能を中心に検証を行った。

【実験方法】 SiO_2/Si 、ガラス、*c* 面サファイヤ、(100) SrTiO_3 、Pt/Si、SUS 基板上に LNO 原料溶液を回転塗布し、オーブンでの乾燥、RTA を用いた仮焼・本焼を行った。今回、LNO 原料溶液として、 $\text{La}(\text{NO}_3)_3 \cdot 6\text{H}_2\text{O}$ と $\text{Ni}(\text{CH}_3\text{COO})_2 \cdot 4\text{H}_2\text{O}$ に対し、溶媒として A) 酢酸とエタノール、B) 2-メトキシエタノールとエタノールアミンの混合溶媒による 2 種の溶液を用いた。次に、LNO テンプレート層上に PZT 薄膜を CSD 法で成膜した。各基板上に作製した PZT/LNO 積層膜に対し、粉末 XRD および STEM-EDS を用いて評価を行った。

【結果と考察】試料の XRD 測定から見積もった PZT と LNO に対する (*h*00) と (110) の強度比をまとめた結果を図 1 に記す。いずれの基板上においても LNO および PZT は (*h*00) 優先配向を示すが、混合溶媒の違いにより (*h*00) 優先配向を示しやすい基板材料に大きな差異が生じる事が分かる。また、混合溶媒 B で作製した LNO 薄膜は混合溶媒 A と比べて相対的に高い (*h*00) 優先配向を示した。一方、上層 PZT の (*h*00) 配向度について、 SiO_2/Si 、ガラス基板を除く他の基板において両混合溶媒間の極端な差異は確認されなかった。この事は、混合溶媒の違いにより LNO 薄膜の成長様式が異なる事が示唆される。特に、混合溶媒 A を用いて作製した LNO 薄膜の再表面の結晶配向は XRD で観測される膜全体の配向性とは明らかに異なる事が分かる。

混合溶媒 A を用いて *c* 面サファイヤ基板上に堆積した自己配向 LNO 薄膜の STEM-EDS 観測結果を図 2 に記す。(a) の STEM 像より、ポーラス構造の LNO 薄膜が基板上に成長している事が分かる。また、高分解能 TEM 観察より空孔端部周辺におけるファセット状の構造と明瞭な格子像が観測された。なお、同溶媒を用いて作製した LNO 薄膜は他基板上においても同様の構造で成長する事を確認している。

次に、(b)-(d) に記す EDS による元素マッピングの結果から LNO を構成する La、Ni、O は膜中および基板界面においてほぼ均一に分布している事、基板界面部における金属元素の拡散は生じていない事が分かる。この結果は、CSD 法で作製した LNO 薄膜の自己配向成長に対しては、基板界面における LNO 構成元素の凝集等によるセルフテンプレート層形成とは異なるメカニズムが存在する事が考えられる。

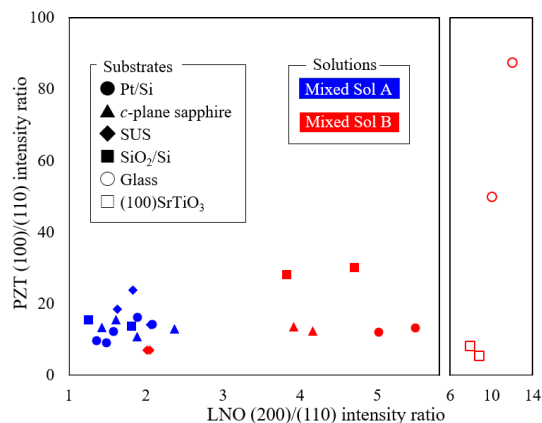


Fig.1 Relationship between (200)/(110) peak intensity ratio of LNO layer and (100)/(110) peak intensity ratio of PZT films prepared on the various substrates.

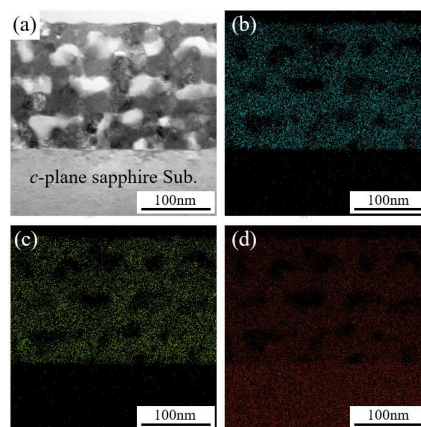


Fig.2 Cross-sectional (a)STEM image, elemental maps of (b)La, (c)Ni, (d)O for self-oriented LNO film on the *c*-plane sapphire substrate.