

SrTiO<sub>3</sub> 基板上 NiO 系薄膜の PLD 合成と大気圧酸素アニール効果PLD synthesis of NiO-based films on SrTiO<sub>3</sub> and effect of atmospheric O<sub>2</sub> annealing東工大物質理工<sup>1</sup>, 神奈川県産技総研<sup>2</sup>○(M1)後藤 祐己<sup>1</sup>, 久富 翔平<sup>1</sup>, 大賀 友瑛<sup>1</sup>, 金子 健太<sup>1</sup>, 金子 智<sup>2,1</sup>, 吉本 護<sup>1</sup>, 松田 晃史<sup>1</sup>Tokyo Tech<sup>1</sup>, KISTEC<sup>2</sup>,○Yuki Goto<sup>1</sup>, S. Hisatomi<sup>1</sup>, T. Oga<sup>1</sup>, K. Kaneko<sup>1</sup>, S. Kaneko<sup>2,1</sup>, M. Yoshimoto<sup>1</sup>, A. Matsuda<sup>1</sup>

E-mail: goto.y.aq@m.titech.ac.jp

【はじめに】酸化ニッケル(NiO)は、岩塩型構造をとり反強磁性を示す、ニッケル欠損型の p 型ワイドギャップ半導体( $E_g \sim 3.7$  eV)として知られている。NiO 系薄膜は、ホール輸送層[1]や交換バイアス層[2]などの応用に向けて  $\alpha$ -Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> や MgO などの多様な単結晶基板上でエピタキシャル合成されてきた。NiO 系薄膜はその物性についても研究がなされており、例えば Li<sup>+</sup>ドーパントによる p 型導電性の向上については、我々も組成再現性の良い PLD を用いた低温高濃度ドーピングを報告してきた[3]。また、SrTiO<sub>3</sub> (STO) 基板上では、NiO 系層状ペロブスカイト構造を基本とした複酸化物薄膜による超伝導も報告されている[4]。一方、NiO 系薄膜の構造と物性について着目すると、Ni<sup>2+</sup>から Ni<sup>+</sup>および Ni<sup>3+</sup>-Ni<sup>4+</sup>に価数遷移することにより興味深い構造に基づく物性が生じている。結晶成長やアニール雰囲気によるカチオン価数、基板結晶による薄膜構造、さらに物性の制御についてより詳細な知見が求められる。本研究では、岩塩型・層状など NiO 系薄膜の構造と物性の制御を目的として、ペロブスカイト基板上における NiO 薄膜の PLD 合成とアニリングによる構造・価数変化について検討した。

【実験・結果】本研究では、まず NiO 薄膜を KrF エキシマレーザー ( $\lambda=248$  nm)および NiO 焼結体ターゲットを用いた PLD 法により STO (111) 基板上に室温で作製した。続いて、得られた NiO 薄膜は O<sub>2</sub> フロー中(1 atm)において温度と保持時間をパラメータとして熱処理を行なった。Fig.1 に室温 PLD で作製した NiO 薄膜に対する 700°C、1 h の熱処理前後の XRD パターンを示す。熱処理前後いずれの薄膜においても、STO 単結晶基板のピークを除き、NiO (111) 回折のみが見られた。また RHEED 像でもストリークパターンの面内異方性がみられたことから、室温で得られた NiO (111) エピタキシーがアニール後も維持されたと分かった。一方で、熱処理後では NiO (111) 回折の明瞭な高角シフトがみられた。これは、真空成膜した NiO の酸素欠損が O<sub>2</sub> フローアニールにより緩和されて化学量論組成に近づいたためだと考えられる。また、アニール後においてもバルクより低角側にピークがあり、NiO (111)薄膜 が STO (111)基板とのエピタキシャル歪みにより面内圧縮を受けていることを示唆している。Fig.2 に堆積直後(a)と熱処理後(b)の AFM 像を示す。RMS 粗さはそれぞれ  $3.8 \times 10^{-2}$  nm、 $5.4 \times 10^{-2}$  nm と熱処理後でわずかに RMS 粗さが増加したが、いずれも平坦表面を示した。講演では得られた NiO (111) と STO (111)基板の詳細なエピタキシャル関係およびアニール条件が薄膜構造に与える影響について報告する。

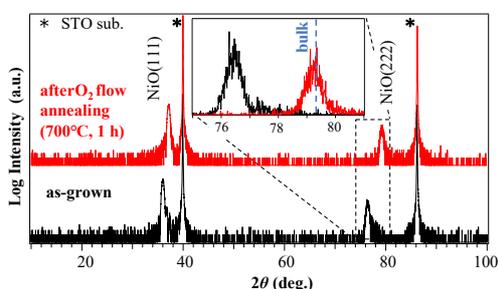


Fig. 1 XRD patterns of NiO thin films as-grown on STO(111) substrates by PLD at room-temperature, and after O<sub>2</sub>-annealed at 700°C for 1 h.

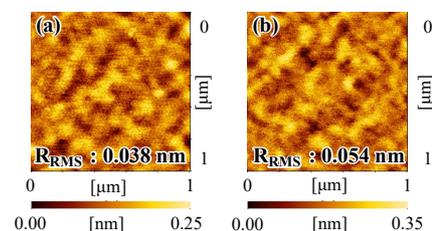


Fig. 2 AFM images of NiO films (a) as-grown at RT, and (b) after O<sub>2</sub>-annealed at 700°C for 1 h.

- [1] Md. Bodiul Islam *et al.*, *ACS Omega*, **2**, (2017), 2291.  
 [2] R. A. Lukaszew *et al.*, *Eur. Phys. J. B*, **45**, (2005), 181.  
 [3] N. Shiraiishi *et al.*, *MRS OPL*, **1241**, (2017), 1241-U04-38.  
 [4] D. Li *et al.*, *Nature*, **572**, (2019), 624.