

機能性酸化物のエピタキシャル薄膜において

基板の結晶格子が構造相転移に与える影響

西川 博昭¹⁾、伊美 拓哉²⁾、平岡 壮大²⁾、川山 巖³⁾

1) 近畿大学生物理工学部

2) 近畿大学大学院生物理工学研究科

3) 大阪大学レーザーエネルギー学研究センター

はじめに

エピタキシャル薄膜はバルクを作製不可能な物質の物性研究、強誘電体や強磁性体など機能性材料のデバイス化に有効であるが、結晶格子が基板から強力でロックされ、構造相転移に伴う物性制御およびそのデバイス応用がバルクとは大きく異なるという問題がある。また、このことを利用して、バルクでは得ることができない新物性を開拓することも期待できる。

一例として、 SrTiO_3 (STO) の誘電特性は格子歪みによって大きな影響を受け、場合によっては強誘電性相転移を示すことが挙げられる[1]。我々は、STO 薄膜に対する基板からの格子歪みとして、一般的な格子定数変化のみに注目した圧縮・引っ張り歪みだけではなく、膜厚増加に伴って歪みが緩和する過程で発生する、対称性変化を伴う特殊な格子歪みによって強誘電性相転移を示すかどうかにも注目している。薄膜成長中における多様な巨大格子緩和を利用することで、STO 薄膜が強誘電性相転移を示すかどうか、様々な場合においてテラヘルツ放射を用いて調べることを最終的な目的として実験を行っている。今年度は、STO と同じペロブスカイト構造を持ち、格子定数が大きく異なる TbScO_3 (TSO、格子定数は 0.3950 nm で、 0.3905 nm の STO とは約 1.14% の不整合がある)、TSO(110)基板表面へ STO 薄膜を実際に作製し、その表面形態と結晶構造を調べ、予備的にテラヘルツ放射測定を試みた。

実験

市販の TSO(110)単結晶基板にパルスレーザー堆積 (PLD) 法を用いて STO を成膜した。成膜時の条件は、基板温度 700°C 、 O_2 分圧 0.2 Pa 、レーザーフルエンス 2 J/cm^2 である。この条件で膜厚 320 nm の STO 薄膜を堆積した。成膜速度はおよそ 2.5 nm/min である。薄膜堆積後は、 O_2 分圧 0.2 Pa を保った状態

にて 30 分かけて基板温度を室温まで冷却した。

得られた試料は原子間力顕微鏡 (AFM) で表面形態を、X 線回折 (XRD) の 2θ 測定にて結晶構造を、それぞれ調べた。テラヘルツ放射測定に際しては、STO 薄膜表面にギャップ幅 $10 \text{ }\mu\text{m}$ のダイポール型金電極を作製してこれを光伝導アンテナとし、波長 390 nm のポンプ光を用いた。

結果と考察

図 1 に、TSO(110)基板上に作製した STO 薄膜の AFM 像を示す。基板自体には明確なテラス・ステップ構造を得るための処理をしなかったため、得られた STO 薄膜はテラス・ステップ構造を示していないが、その表面は比較的平坦であり、均一で緻密な STO 薄膜を得ることができたと考えられる。

図 2 に同じ試料の XRD パターンを示す。TSO 基板のほかには STO の ($h00$) ピークのみが見られ、得られた STO 薄膜は $[100]$ 配向していることが確認できた。この測定結果から格子定数を見積もったところ、 0.391 nm と、ほぼバルク STO と同じ値であり、エピタキシャル成長にともなう基板からの歪みの影響は緩和されている可能性がある。今後、基板との格子不整合とそれを緩和する膜厚との関係を詳しく

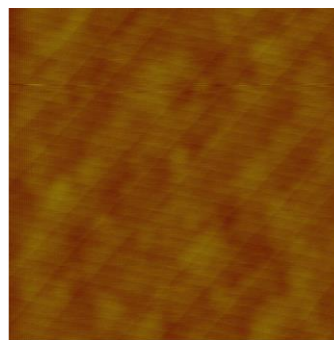


図 1 TSO(110)基板に成膜した STO 薄膜の AFM 像。スキャンサイズは $2 \times 2 \text{ }\mu\text{m}^2$ 。

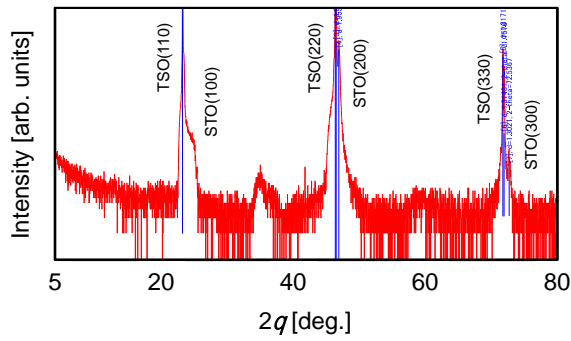


図 2 TSO(110)基板に成膜した STO 薄膜の XRD パターン。

ことが必要である。今後、STO 薄膜の成長条件の最適化や、ホール測定など他の評価手法を併用して、光伝導に伴うテラヘルツ放射の観測を目指す。

まとめ

これまでの研究において、エピタキシャル成長した STO 薄膜の格子歪み緩和と対称性変化に伴う誘電特性変化、強誘電性の発現について、テラヘルツ放射によって調べるための準備が整った。今後、共同研究を継続して、これらの研究を進めたい。

参考文献

[1] J.H. Haeni et al., Nature, **430**, 758 (2004).

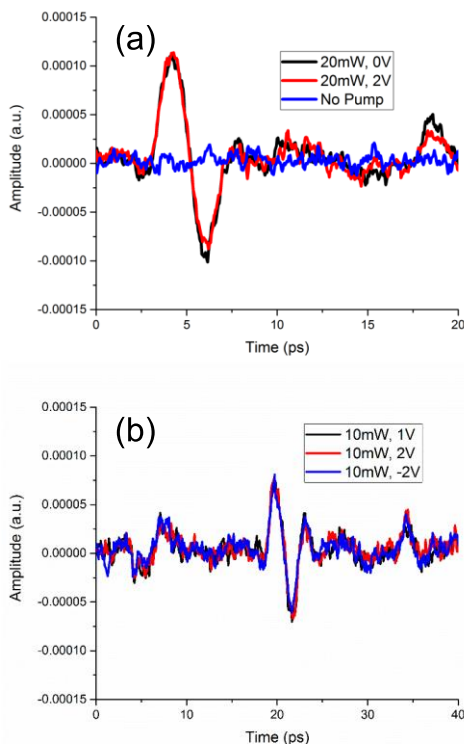


図 3 TSO(110)基板に成膜した STO 薄膜テラヘルツ放射における時間領域波形。

調べておく必要がある。

図 3 は、同じ試料からのテラヘルツ放射における時間領域波形で、(a)はバイアスの有無を、(b)はバイアスの正負を比較している。いまのところ、いずれの場合においても時間領域波形には明確なバイアス依存性がみられておらず、今回観測されたのは光励起キャリアの伝導ではなく、光整流等の 2 次の非線形光学効果によるテラヘルツ放射であると考えられる。光伝導が抑制された原因としては、STO 薄膜の欠陥・不純物等による移動度の低下やエキシトン形成による光電流の減少などが考えられる。テラヘルツ放射を用いて STO の強誘電性を観察するためには、光伝導によるテラヘルツ発生効率を改善する