

Title	Preparation and Characterization of Multiferroic BiFeO ₃ Thin Films with Giant Ferroelectric Polarization
Author(s)	尹, 貴永
Citation	大阪大学, 2005, 博士論文
Version Type	
URL	https://hdl.handle.net/11094/45917
rights	
Note	著者からインターネット公開の許諾が得られていないため、論文の要旨のみを公開しています。全文のご利用をご希望の場合は、 〈a href="https://www.library.osaka-u.ac.jp/thesis/#closed"〉 大阪大学の博士論文について 〈/a〉 をご参照ください。

Osaka University Knowledge Archive : OUKA

<https://ir.library.osaka-u.ac.jp/>

Osaka University

氏名	尹 貴 永
博士の専攻分野の名称	博士(工学)
学位記番号	第 19575 号
学位授与年月日	平成 17 年 3 月 25 日
学位授与の要件	学位規則第 4 条第 1 項該当 基礎工学研究科物理系専攻
学位論文名	Preparation and Characterization of Multiferroic BiFeO ₃ Thin Films with Giant Ferroelectric Polarization (巨大強誘電分極を有するマルチフェロイック BiFeO ₃ 薄膜に関する研究)
論文審査委員	(主査) 教授 奥山 雅則 (副査) 教授 糸崎 秀夫 教授 岡本 博明 助教授 野田 実

論文内容の要旨

本研究の目的はマルチフェロイック BiFeO₃ (BFO) 薄膜の作製とその特性の評価である。本研究では BFO 薄膜を化学溶液 (MOD) 法とレーザーアブレーション (PLD) 法で作製を行った。まず、化学溶液塗布法 (CSD) で製膜した BFO 薄膜は熱処理温度増加と酸素分圧減少に伴って結晶性の向上を示し、酸素分圧の最適化で良い絶縁性を示す BFO 薄膜を製膜することができた。600°C と N₂ 雰囲気中で熱処理した薄膜で場合平坦な表面モフォロジーと低いリーク電流特性を示し、 $P_r=0.2 \mu\text{C}/\text{cm}^2$ という強誘電履歴特性を示した。CSD 法を用いた BFO 薄膜の特性分析から BFO 薄膜は製膜時酸素分圧に大きな影響を受け、酸素分圧が高い O₂ 雰囲気より低い N₂ 雰囲気により良好な特性を示すことがわかった。CSD 法で得られた BFO 薄膜の酸素分圧依存性を基に PLD 法を用い酸素分圧を検討し BFO 薄膜を製膜した結果、450°C と 0.05 Torr の製膜条件が良好なマルチフェロイック特性を示す最適化条件であることがわかり、酸素分圧減少に伴いリーク電流が減少し、絶縁性が向上した。最適化条件である 450°C、0.05 Torr で製膜した BFO 薄膜は $3 \text{ emu}/\text{cm}^3$ の飽和磁化をもつ強磁性履歴特性と $70 \mu\text{C}/\text{cm}^2$ という強誘電履歴特性を同時に示し、PLD-BFO 薄膜でマルチフェロイック特性を確認した。Pt/TiO₂/SiO₂/Si 基板上に製膜した BFO 薄膜はペロブスカイト相のみが結晶化し、多結晶で成長していることがわかった。このとき結晶構造は $a=0.393$, $c=0.400 \text{ nm}$ (異方性 = 1.018) をもつ正方晶であることがわかり、90 K で測定した BFO 薄膜において $158 \mu\text{C}/\text{cm}^2$ の飽和分極と $146 \mu\text{C}/\text{cm}^2$ の残留分極をもつ巨大強誘電分極を示し、Bi イオンのシフトや低いリーク電流、低温で分極の規則化配列が BFO 薄膜での巨大強誘電分極発現機構の原因であると考察した。

論文審査の結果の要旨

本論文はマルチフェロイック BiFeO₃ 薄膜を有機金属分解 (MOD) 法とレーザーアブレーション (PLD) 法により作製し、その物性を評価し巨大な強誘電分極を得た結果について述べている。

まず MOD 法において、原料溶液をスピニングして作製したゲル膜を N₂, air, O₂, 真空の様々の雰囲気中

で熱処理し、 N_2 中 $600^\circ C$ の処理が最も小さいリーク電流を示すことを示した。さらに N_2 雰囲気中で熱処理温度を $400\sim 700^\circ C$ で変化させ X 線回析、XPS、AFM 観察、リーク電流等の性質について基礎的なデータを得た。

これらの結晶化過程にもとずいて、PLD 法により $BiFeO_3$ 薄膜の作製を O_2 圧を系統的に変えて行った。上記の評価法に加えて、2 次元 X 線回析や逆格子マッピングや誘電率の分散等の特性評価を行った。 O_2 の圧力が 0.05 Torr の時にリーク電流は非常に小さくなり、分極履歴特性も非常に大きくなり、残留分極が $102 \mu C/cm^2$ となることを得た。この条件で作製した $BiFeO_3$ 薄膜において温度を室温から 90 K まで下げるとリーク電流が非常に下がることを見出した。さらに 90 K で分極履歴特性が最も大きくなり、残留分極が $146 \mu C/cm^2$ 、自発分極が $158 \mu C/cm^2$ とこれまで得られた最大値の約 1.5 倍となり、強誘電体物質中で最高の記録を出すことに成功し、世界中から注目を浴びることとなった。さらに圧電特性も、圧電体としてよく知られている Ti-rich PZT と同程度の 66 pm/V を得た。 $BiFeO_3$ は G-タイプの反強磁性を示すことで知られているが、本 $BiFeO_3$ 薄膜においてはスピンのキャントによる弱強磁性を示す履歴現象が見出され、飽和磁化は ~ 40 emu/cm³ で $0.27 \mu_B$ を示すことを得た。

以上述べたように、本論文は $BiFeO_3$ 薄膜を MOD 法と PLD 法により雰囲気を最適化して作製し、その物性評価を行い、残留分極が室温で $102 \mu C/cm^2$ 、 90 K で $146 \mu C/cm^2$ と巨大であることを見出し大きな注目を集めるという重要な成果を得ており、博士（工学）論文として価値あるものと認める。