

Title	Preparation and Characterization of BiFeO <sub>3</sub> Films by Using Magnetic-Field-Assisted Pulsed Laser Deposition
Author(s)	朴, 正敏
Citation	大阪大学, 2013, 博士論文
Version Type	
URL	<a href="https://hdl.handle.net/11094/59866">https://hdl.handle.net/11094/59866</a>
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">〈a href="https://www.library.osaka-u.ac.jp/thesis/#closed"〉</a> 大阪大学の博士論文について <a href="https://www.library.osaka-u.ac.jp/thesis/#closed">〈/a〉</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	朴 正 敏 (Jung Min Park)
博士の専攻分野の名称	博士 (工学)
学位記番号	第 26103 号
学位授与年月日	平成 25 年 3 月 25 日
学位授与の要件	学位規則第 4 条第 1 項該当 基礎工学研究科システム創成専攻
学位論文名	Preparation and Characterization of BiFeO <sub>3</sub> Films by Using Magnetic-Field-Assisted Pulsed Laser Deposition (磁場印加レーザ堆積方法によるビスマスフェライト膜の作製と評価)
論文審査委員	(主査) 教授 白石 誠司 (副査) 教授 高井 幹夫 教授 酒井 朗 准教授 金島 岳

## 論文内容の要旨

ビスマスフェライト (BiFeO<sub>3</sub>) は強誘電体と反 (弱) 磁性を室温で併せ持つマルチフェイック材料として注目を浴びている。特に多結晶BiFeO<sub>3</sub>膜は大きな分極が得られ、非強誘電体としてデバイス応用が期待される。これまでBiFeO<sub>3</sub>膜の応用に向けて、多結晶BiFeO<sub>3</sub>薄膜に対しての研究が主であった。しかし、センサ、アクチュエータの応用の場合、2 μm以上の厚みの膜が必要である。BiFeO<sub>3</sub>は膜作製中にBiやBi<sub>2</sub>O<sub>3</sub>が揮発しやすく、化学量論的比からのずれから大きな漏れ電流が生じ、室温で強誘電性の評価が難しい。そのため、厚いBiFeO<sub>3</sub>膜についての報告は少なく、評価はまた不十分であり、幅広い応用に対しても限界がある。本研究はBiFeO<sub>3</sub>膜の厚みの限界を解決し、幅広い厚みの範囲でのBiFeO<sub>3</sub>膜を作製し、評価を行った。BiFeO<sub>3</sub>膜作製では新たは蒸着方法として磁場印加レーザ堆積方法を用い、磁場中でplumeの状態とそれが膜の微細構造に及ぼす影響などを究明した。

まず膜の作製前に磁場によるplumeの軌道の変化と、それが微細構造に及ぼす影響をシミュレーションで見積もった。磁場中でのplumeの軌道はLorentz forceにより螺旋状となり基板側に絞られることが分かった。そのような粒子は基板に角度をもってランダムに届くことから膜の微細構造に影響を与え、柱状構造となることが予想された。

実験では真空チャンバの中に磁場印加するため、超伝導磁石を設置し、0.1Tから0.4Tの磁場を基板の垂直方向に印加した。Bi<sub>1-x</sub>FeO<sub>3</sub>焼結体ターゲットを用い、基板温度530°C、酸素分圧0.1Torr、蒸着時間30分でPt/TiO<sub>2</sub>/SiO<sub>2</sub>/Si基板上にBiFeO<sub>3</sub>膜を作製した。膜の厚みと蒸着レートは磁場に依存し磁場が増加すると共に膜厚みと蒸着レートも増加した。特に0.4Tの磁場と30分の蒸着時間で1.8 μmの柱状構造の厚い膜が得られた。得られた膜は室温で*P*-*E*履歴曲線が得られ、残留分極と抗電界はそれぞれ62 μC/cm<sup>2</sup>、178 kV/cmで、圧電係数 ( $d_{33}$ ) は50pm/Vであった。また、速い蒸着レートの下で90°off-axis蒸着を行ったところ、磁場によるplumeの変化からdroplet freeのBiFeO<sub>3</sub>膜が得られた。そしてepitaxialBiFeO<sub>3</sub>膜を磁場印加で作製した結果、磁場の大きさによって成長メカニズムが変わり、電気特性に影響を与えた。0.1Tの磁場を印加の下で作製されたBiFeO<sub>3</sub>膜は室温と80Kで飽和*P*-*E*履歴曲線が得られ、残留分極と抗電界はそれぞれ46 μC/cm<sup>2</sup>、345 kV/cmであった。

## 論文審査の結果の要旨

本論文は製膜中に磁場を印加したパルスレーザ蒸着法 (PLD) により、1.8 μmと厚く高品質なBiFeO<sub>3</sub>薄膜の作製およびその評価を行ったものである。BiFeO<sub>3</sub>はマルチフェロイック材料として知られているが、その薄膜は大きな残留分極

を示し鉛フリー強誘電体材料としても期待されている。しかし、数百nm程度の厚みの薄膜については多くの報告があるが、数 $\mu\text{m}$ と比較的厚く特性のよい膜を得ることは困難であり、センサ・アクチュエータなどへも応用するためには、この問題を解決する必要がある。そこで、磁場印加PLDによりブルームを変化させ、厚膜の作製を試みた。まず、磁場を印加することでブルーム中の粒子の軌道が変化し、密度が高くなることを計算により確認した。さらに磁場を印加すると粒子の軌道が変化し、基板に対して斜めにランダムな方向から入射するため、シミュレーションにより膜成長過程を調べた。その結果、得られる薄膜が柱状構造となることが予想された。次に、実際に超伝導コイルを導入したPLD装置を用い、最大0.4 Tの磁場を印加しPt/Si基板上に $\text{BiFeO}_3$ 膜の作製を行った。フレーミングカメラによりブルームの時間変化を観察したところ、磁場を印加することで発光強度の増大が見られ、製膜速度も向上した。得られた薄膜は良好な電気特性を示し、室温で強誘電性に基づく*P*-*T*ヒステリシスも観測できた。このように良好な特性が得られたのは、ブルーム中の粒子密度が高く製膜速度が大きいためBiの再蒸発が抑制されたことが原因のひとつと考えられる。さらに磁場印加中で作製した膜は柱状構造となり、1.8  $\mu\text{m}$ の膜において50 pm/Vのピエゾ定数を得た。最後に、単結晶基板上への作製も行い、エピタキシャル成長に及ぼす磁場の影響についても調べた。このように、磁場印加PLDによる製膜プロセスの解析および薄膜作製・評価を行い、さらに比較的厚く特性のよい $\text{BiFeO}_3$ 薄膜の作製に成功しており、博士（工学）の学位論文として価値のあるものと認める。