

酸化物誘電体の自己組織化ナノ結晶の電子状態解析と結晶欠陥物性解明

Evaluation of electronic state and crystal defect behavior in self-assemble nanocrystals of metal oxide dielectrics

西田 貴司¹⁾ 米田 安宏²⁾ 小西 啓之²⁾ 塩 崎 忠³⁾

¹⁾Takashi NISHIDA ²⁾Yasuhiro YONEDA ²⁾Hiroyuki KONISHI ³⁾Tadashi SHIOSAKI

¹⁾奈良先端大 ²⁾原子力機構 ³⁾芝浦工業大学

(要約 2 ~ 3 行)

キーワード : PZT、強誘電体、ナノ結晶、自己組織化、原子平坦基板、XAFS

1. 目的

酸化物誘電材料である電子セラミックスは電子デバイスに広く用いられている。現在、素子の高密度化や強誘電ドメイン物性解明のため、材料の超微細化の研究が進められている。FIB などの微細加工や気相成長の初期成長核を利用してナノサイズ結晶が作製されているが、サイズ、結晶品質、均質性などの点で課題が多いのが現状である。それに対して最近、気相成長における成長速度の高精度制御と自己組織化を利用することで、2 次元配列した誘電体ナノ結晶アレイを得ることに成功した。[1] この自己組織化ナノ結晶は結晶品質や均質性が大幅に改善しているため、物性解明や応用に有用な材料と期待される。しかし、ナノサイズであるため通常の X 線解析は困難で、構造解析はまだであった。そこで、放射光を用いて、表面回折および吸収測定へ行き、結晶の平均構造と局所構造を明らかにする。

2. 方法

試料は原子平坦処理を施した α - Al_2O_3 (001) ウェハ上に形成した PbTiO_3 ナノ結晶である。ウェハ上の位置によって成長速度が変化するため、連続膜から孤立した結晶核まで分布している。この試料において、BL14B1 の κ 型回折計を用いて微小スポットでの回折測定を、多素子 SSD を用いて XAFS を行った。

3. 研究成果

回折測定の結果、連続膜はもちろんナノ結晶膜でもペロブスカイト PbTiO_3 による回折が明瞭に観測され、ナノ結晶は従来の連続膜と同様な結晶構造が得られていることが確定できた。さらに、配向方向の分散を調べると連続膜は 3° 以上のばらつきがあったにもかかわらず、ナノ結晶においては 0.05° 程度であり、非常に高品位な結晶が得られていることがわかった。しかし、連続膜に比較するとナノ結晶では格子面間隔が 0.9% 短縮しており、エピタキシャル成長や強誘電ドメインにより応力が発生していると考えられる。また、XAFS の結果からは、ナノ結晶では Pb 吸収端の第 2 近接ピーク強度が大幅に減少しており、強い歪みの存在を指示する結果となっている。

興味深いことに、連続の膜とナノ結晶の中間地帯のごく一部で回折ピークがスプリットして、わずかに低角にピークが現れる領域があることがわかった。面間隔が 1.6% 長くなっており、膜には非常に大きな応力が存在している。しかし、配向性は 0.05° とナノ結晶と同様に良好であった。このことから、均質に成長・配列したナノ結晶がすきま無く並んで、きわめてコヒーレンスの良い膜が形成されていることが予想される。

4. 結論・考察

他の評価手法では困難であった酸化物強誘電体ナノ結晶の結晶構造解析が、放射光分析によって明らかになった。得られたナノ結晶は通常のバルク材料と同様なペロブスカイト型結晶構造を取っていることが確定できた。ナノ結晶は基板のサファイアに対し高品質にエピタキシャル成長していた。さらに、結晶内に大きな歪みが存在していることもわかり、強誘電

体のナノサイズ化に特有の現象が生じていることも明瞭に観測されたが、今回の実験では高精度な測定が実現できたため、歪みの定量的な分析が可能で、理論的解析との比較検討が可能になった。

その一方で、ナノ結晶成長が進んで連続膜化する境界域あたりで、結晶のコヒーレンシーが大幅に向上する特異な現象が見いだされた。これは、均質なナノ結晶アレイが連続膜化する臨界条件で極めて均質な膜が形成されていることを示すもので、今後の解明が待たれる。

5. 引用(参照)文献等

[1] T. Nishida *et al*, *Ferroelectrics* 381 (2009) p.74-79.