Studies of XRD scan and strains of lanthanum titanate epitaxial films on various substrates

蔡俊璋、宋皇輝

E-mail: 342527@mail.dyu.edu.tw

ABSTRACT

In this study, LaTiO3 thin films were grown on the LaAlO3(001), SrTiO3(001) DyScO3(110), and GaScO3(110) substrates by the off-axis RF magnetron co-sputtering system. We discussed the lattice strain characteristics of the lanthanum titanate thin films epitaxially deposited on various substrates. In the experiments, we used the powder X-ray diffraction (XRD) to analyze the crystal structure and the growth direction of the epitaxial films, and the Φ scan to verify the in-plane arrangement of the films. The temperature dependence of resistivity was measured to study the transport properties of the films grown on various substrates. Finally, the residual stresses in LTO thin films deposited on various substrates were determined using the sin2Ψ method, and the influences of lattice strains were discussed.

Keywords : LaTiO3、Φscan、lattice strain、residual stress

Table of Contents

封面內頁 簽名頁 中文摘要. . . . . iii 英文摘要. . . . . iv 誌謝. . . . . v 目錄. . . . . vi 圖目錄. . . . . viii 表目錄. . . . . xii 第一章　緒論 1.1 前言. . . . . 1 1.2 研究背景. . . . . 2 1.3 文獻回顧. . . . . 4 第二章　實驗量測原理 2.1 粉末X-ray繞射原理. . . . . 11 2.2 Φ角掃瞄原理. . . . . 12 2.3 薄膜單晶樣品應變量測檢測原理. . . . . 17 2.4 電阻率量測. . . . . 20 2.5 Van der Pauw量測原理. . . . . 21 第三章　樣品製備與量測 3.1 樣品製備. . . . . 23 3.1.1 靶材製備. . . . . 25 3.1.2 實驗流程. . . . . 28 3.1.3 實驗流程敘述. . . . . 29 3.2 量測儀器及量測方式介紹. . . . . 30 3.2.1 電性量測. . . . . 30 3.2.2 Van der Pauw量測. . . . . 32 3.2.3 場發射掃描式電子顯微鏡(FE-SEM). . . . 34 3.2.4 X-ray能量散佈分析儀(EDS). . . . . 35 3.2.5 粉末X-ray繞射分析儀. . . . . 35 3.3 ΦScan硬體建置. . . . . 36 3.3.1 ΦScan的軟、硬體發展流程. . . . . 37 3.3.2 ΦScan的軟體程式設計. . . . . 37 3.3.3 ΦScan的硬體電路設計. . . . . 37 3.4 Φ角掃描實驗步驟. . . . . 41 3.5 薄膜應變量測實驗步驟. . . . . 45 第四章　結果與討論 4.1 薄膜樣品成長參數與結構分析. . . . . 47 4.2 薄膜樣品之傳輸關係. . . . . 63 4.3 薄膜樣品應變分析. . . . . 70 第五章　結論. . . . . 76 參考文獻. . . . . 78 附錄A. . . . . 79 附錄B. . . . . 93 圖目錄 圖1.1 鈦酸鑭(LaTiO3)晶格結構圖. . . . . 2 圖1.2 SrxLa1-xTiO3薄膜成長於LAO基座上，電阻率與溫度關係圖. . 4 圖1.3 SrxLa1-xTiO3薄膜成長於不同基座(a) LAO (b) STO (c) MgO 基座，電阻率與溫度關係圖. . . . . 5 圖1.4 LTO薄膜成長於GSO、DSO與STO基座上，電阻率與溫度關係圖. . 7 圖1.5 絕緣性與金屬性對W ?-1寬度與之間關係圖. . . . . 9 圖1.6 sin2Ψ 對 ε Ψ[001]作圖(a)LSMO/MgO (b) LSMO/LAO. . . 10 圖2.1 布拉格晶格繞射示意圖. . . . . 12 圖2.2 Φ方向掃瞄示意圖. . . . . 13 圖2.3 Φ角掃瞄時，樣品平面法線、繞射面法線關係圖. . . . . 13 圖2.4 Φ角掃瞄硬體設置示意圖. . . . . 14 圖2.5 二重對稱晶向. . . . . 15 圖2.6 四重對稱晶向. . . . . 15 圖2.7 45?對稱晶向. . . . . 16 圖2.8 隨機(Random)不對稱晶向. . . . . 17 圖2.9 應力之座標系統圖. . . . . 20 圖2.10 四點量測示意. . . . . 21 圖3.1　(a)濺鍍實驗裝置圖 (b) 實際機台 . . . . . 24 圖3.2　第一次燒結時間示意圖 . . . . . 26 圖3.3　第二次燒結時間示意圖 . . . . . 27 圖3.4　高溫實驗爐 (a)溫控器 (b)電源開關 (c)樣品室. . . . . 27 圖3.5　實驗流程圖. . . . . 28 圖3.6　四點量測示意圖. . . . . .

. . . . . 31 圖3.7　電阻對溫度量測系統. . . . . 31 圖3.8　片電阻率ρs之推導方式. . . . . 33 圖3.9　Van der Pauw接線示意圖. . . . . 33 圖3.10 (a)場發射掃描式電子顯微鏡(FE-SEM) (b) X-ray能量散佈分析儀(EDS). . . . . 34 圖3.11 (a)為本實驗所用之XRD系統 (b)為內部裝置圖. . . . . 36 圖3.12 ΦScan硬體電路圖. . . . . 39 圖3.13 ΦScan實體電路. . . . . 40 圖3.14 ΦScan 裝置於XRD機台. . . . . 40 圖3.15 ΦScan設備. . . . . 41 圖3.16 θ－2θ繞射示意圖. . . . . 42 圖3.17 Φ角與強度關係圖. . . . . 42 圖3.18 實際Φ角與強度關係圖. . . . . 43 圖3.19 XRD內建軟體. . . . . 43 圖3.20 Φ角掃瞄圖. . . . . 46 圖3.21 Gauss law fitting 圖. . . . . 46 圖4.1 不同成長壓力下Sr1-xLaxTiO3 / Si薄膜XRD圖. . . . . 48 圖4.2 不同成長溫度下SrxLa1-xTiO3 / LaAlO3薄膜XRD圖. . . . . 49 圖4.3 LaTiO3成長於GdScO3基座XRD圖. . . . . 50 圖4.4 LaTiO3成長於DyScO3基座XRD圖. . . . . 51 圖4.5 (a)GSO與(b)DSO基座角掃瞄圖. . . . . 53 圖4.6 LTO薄膜成長於(a)GSO與(b)DSO基座上角掃瞄圖. . . . . 53 圖4.7 在GSO(011)與DSO(011)基座成長LTO薄膜的晶格結構圖. . . . . 54 圖4.8 LaTiO3薄膜成長於SrTiO3(001)基座，鍍膜時間(a)120 min (b) 60 min下，不同退火速率. . . . . 55 圖4.9 STO基座Φ角掃瞄圖. . . . . 57 圖4.10 LTO薄膜成長於STO基座，相同鍍膜時間120 min，(a)退火速率快 (b) 退火速率慢之Φ角掃瞄圖. . . . . 57 圖4.11 LTO薄膜成長於STO基座，相同鍍膜時間60 min，(a)退火速率快 (b) 退火速率慢之Φ角掃瞄圖. . . . . 58 圖4.12 LaTiO3薄膜成長於LaAlO3(001)基座，鍍膜時間(a)120 min (b) 60 min下，不同退火速率. . . . . 59 圖4.13 LAO基座Φ角掃瞄圖. . . . . 61 圖4.14 LTO薄膜成長於LAO基座，相同鍍膜時間120 min，(a)退火速率快 (b) 退火速率慢之Φ角掃瞄圖. . . . . 61 圖4.15 LTO薄膜成長於LAO基座，相同鍍膜時間60 min，(a)退火速率快 (b) 退火速率慢之Φ角掃瞄圖. . . . . 62 圖4.16 在STO(001)與LAO(001)基座成長LTO薄膜的晶格結構圖. . . . . 62 圖4.17 LaTiO3/GdScO3薄膜之電阻率對溫度關係圖. . . 65 圖4.18 LaTiO3/DyScO3薄膜之電阻率對溫度關係圖. . . 65 圖4.19 LaTiO3/SrTiO3薄膜時間120 min之電阻率對溫度關係圖. . . . . 66 圖4.20 LaTiO3/SrTiO3薄膜時間60 min之電阻率對溫度關係圖. . . . . 67 圖4.21 LaTiO3/LaAlO3薄膜時間120 min之電阻率對溫度關係圖 . . . . . 68 圖4.22 LaTiO3/LaAlO3薄膜時間60 min之電阻率對溫度關係圖 . . . . . 68 圖4.23 LaTiO3薄膜於鍍膜時間120 min下，不同基座電阻率對溫度關係圖. . . . . 69 圖4.24 LTO薄膜於GSO基座之應變與sin2Ψ關係圖. . 71 圖4.25 LTO薄膜於DSO基座之應變與sin2Ψ關係圖. . 72 圖4.26 LTO/STO鍍膜時間120 min下不同退火速率之應變與sin2Ψ關係圖. . . . . 72 圖4.27 LTO/STO鍍膜時間60 min下不同退火速率之應變與sin2Ψ關係圖. . . . . 73 圖4.28 LTO/LAO鍍膜時間120 min下不同退火速率之應變與sin2Ψ關係圖 . . . . . 74 圖4.29 LTO/LAO鍍膜時間60 min下不同退火速率之應變與sin2Ψ關係圖. . . . . 75 表目錄 表1.1 LTO薄膜成長於不同基座，平面與c軸關係表. . . . 6 表1.2 RTiO3能帶寬度與Ti-O-Ti鍵角關係表. . . . . 8 表3.1 晶格常數對照表 . . . . . 24 表3.2 實驗粉末 . . . . . 25 表4.1 LTO薄膜在不同基座之晶格不配度. . . . . 47 表4.2 LTO薄膜(002)方向晶格常數. . . . . 51 表4.3 LTO薄膜於GSO與DSO基座上角掃瞄參數. . . . . 52 表4.4 STO基座下不同條件下之薄膜晶格常數. . . . . 56 表4.5 LAO基座下不同條件下之薄膜晶格常數. . . . . 60 表4.6 片電阻在不同基座下與不退火速率比較. . . . . 64 表4.5 LAO基座下不同條件下之薄膜晶格常數. 59

REFERENCES

[1]S. Leoni, L. Craco, A. Ormeci, and H. Rosner, Solid State Sciences 8, 1138-1143 (2006) [2]Masatoshi Imada, Atsushi Fulimori, Yoshinori Tokura, Rev. Mod. Phys., Vol. 70, No14. (2008) [3]B. Vilquin, T. Kanki, T. Yanagida, H. Tanaka, T. Kawai, Applied Surface Science 244, 494-497 (2005) [4]C. C. Hays, J.-S. Zhou, J. T. Markert, and J. B. Goodenough, Phys. Rev. B 60, 10367 (1999) [5]Franklin J. Wong, Seung-Hyub Baek, Rajesh V. Chopdekar, Virat V. Mehta, Ho-Won Jang, Chang-Beom Eom, and Yuri Suzuki, Phys. Rev. B 81, 161101(R) (2010) [6]陳星宇, ”?鍶LaTiO3薄膜之磊晶成長與特性研究”, 大葉大學碩士論文, 2007 [7]林政學, ”應力對鈦酸鑭薄膜之傳輸特性研究”,大葉大學碩士論文, 2010 [8]T. Katsufuji, Y. Taguchi, and Y. Tokura, Phys. Rev. B 56, 10146 (1997) [9]Bing H. Hwang, S.Y. Chiou, Thin Solid Films 304, 286-293 (1997) [10]Lamartine Meda, Klaus H. Dahmen, Saaleh Hayek, Hamid Garmestani, Journal of Crystal Growth 263, 185- 191(2004) [11]吳翼貽, ”儀中心簡訊”, 第十三卷第六 期, 1992 [12]許樹恩、吳泰伯, ”X光繞射原理與材料結構分析”, 中國材料科學學會 [13]B. D. Cullity, S. R. Stock, ”Elements of X-ray diffraction” Pearson Prentice Hall, (2001) [14]美國國家標準和技術院(National Institute for Standards and Technology, NIST) [15]丁榮助,“在鈦酸鍶(110)基座上成長晶鑭鍶錳氧薄膜與X光Φ角繞射分析之研究”, 大葉大學碩士論文, 1994

[16]張義和, “ 例說8051 ” , 新文京開發出版股份有限公司, 2005 [17]楊明豐, “ 8051單晶片設計實務(組合語言版) ” , 碁峰資訊股份有限公司, 2003 [18] C. H. Ma, J. H. Huang, Haydn Chen, Thin Solid Films 481, 73-78 (2002)