

水熱合成(K_xNa_{1-x}) NbO_3 膜の作製と結晶構造評価Growth and Analysis of Crystal Structure for Hydrothermally (K_xNa_{1-x}) NbO_3 Film東工大¹, 桐蔭横浜大学², 上智大³○ 白石貴久¹金子折之¹, 柴西弘¹, 石河睦生^{1,2}, 黒澤実¹, 内田寛³, 舟窪浩¹Tokyo Tech.¹, Toin Univ. Yokohama², Sophia.³○Takahisa Shiraishi¹, Noriyuki Kaneko¹, Hiro Einichi¹, Mutsuo Ishikawa^{1,2}, Minoru Kurosawa¹,Hiroshi Uchida³ and Hiroshi Funakubo¹

E-mail: shiraishi.t.aa@m.titech.ac.jp

【緒言】 (K_xNa_{1-x}) NbO_3 は非鉛圧電体の一つとして注目されているが、揮発性の高い元素を含むため特性の高いサンプルの作製が難しいことが指摘されている。水熱合成法は他の作製法と比較して低温度での(K_xNa_{1-x}) NbO_3 作製が可能であり、揮発の問題がほとんど無い。我々はこれまでに水熱合成(K_xNa_{1-x}) NbO_3 膜の作製と電気特性評価を行ってきた¹⁾。水熱合成(K_xNa_{1-x}) NbO_3 は粉体やそれを用いたバルクの研究は多くあるものの、膜の作製報告は非常に少ない²⁾。また、 $x=0.5$ 付近の組成では、水熱合成後に高温熱処理を必要とし、水熱合成のみで(K_xNa_{1-x}) NbO_3 単相を作製した例はない。本研究では水熱合成法で作製した(K_xNa_{1-x}) NbO_3 エピタキシャル膜について、詳細な結晶構造評価を行ったので報告する。

【実験方法】 (K_xNa_{1-x}) NbO_3 膜は Nb_2O_5 の粉末 9×10^{-4} mol 及び 7 mol/dm^3 の KOH と NaOH の混合溶液 20ml を用いて 240°C で作製した。基板には(100) $Nb-SrTiO_3$ 単結晶を用いた。得られた膜の組成は波長分散型蛍光 X 線 (PANalytical PW2404) を用いて評価し、結晶構造の温度依存性は多機能高分解能 X 線回折装置 (BRUKER D8 DISCOVER) と高温測定用チャンバー (Anton Paar DHS1100) を用いて評価した。

【結果】 Figure 1 に ($K_{0.86}Na_{0.14}$) NbO_3 膜の(003)における逆格子空間マッピングの温度依存性と、そこから見積もった格子定数の温度依存性を示す。逆格子空間マッピングの結果より、温度変化に伴いスポット位置が変化していることが分かった。特に $200\text{--}450^\circ\text{C}$ において新たなピーク (P2) が現れた。また、P2 は 3 つにスプリットしており、温度上昇に伴い 3 つのスポット間は縮まり、 450°C 以上で消えることも分かった。これより見積もった格子定数からも、 $200\text{--}450^\circ\text{C}$ において格子定数が大きな変化を示すことが分かった。また、温度上昇に伴う基板の格子定数変化は、報告されている変化と良い一致を示す。(K_xNa) NbO_3 は温度上昇に伴い orthorhombic-tetragonal-cubic の順で構造変化することが知られており、その温度は 200°C 及び 400°C 近傍である³⁾。従って、Fig. 1 の温度上昇に伴う変化は構造変化を表していると考えられる。

1) T. Shiraishi et al., *Jpn. J. Appl. Phys.*, **50**, 09ND11-1-4

(2011).

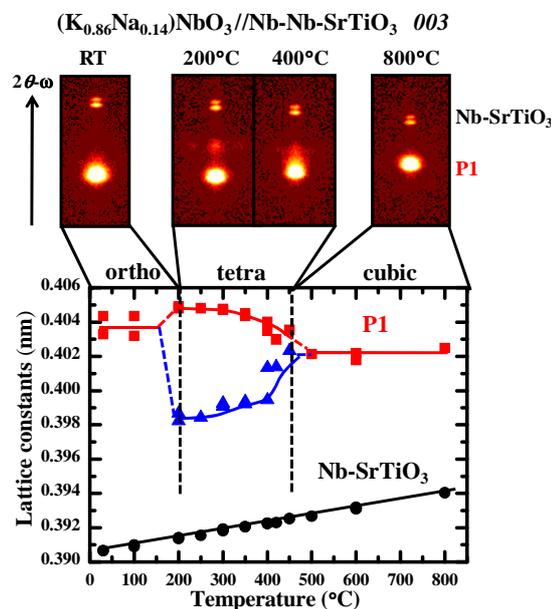
2) G. K. L. Goh et al., *J. Mater. Res.*, **18**, No2 (2003).3) D. W. Baker et al., *Appl. Phys. Lett.*, **95** 091903 (2009).

Fig. 1 Temperature dependency of the out of lattice constants estimated from the reciprocal space mapping.

P1 and P2 are derived from ($K_{0.86}Na_{0.14}$) NbO_3 film.

■ : P1, ▲ : P2, ● : Nb-SrTiO₃