

## 応力を制御した(Na,Bi)TiO<sub>3</sub>—BaTiO<sub>3</sub> エピタキシャル薄膜の結晶構造と圧電特性

### Crystal structure and piezoelectricity in strain-controlled (Na,Bi)TiO<sub>3</sub>-BaTiO<sub>3</sub> epitaxial thin films

パナソニック デバイス社<sup>1</sup>, パナソニック 先端研<sup>2</sup>, 静大工<sup>3</sup>

○田中良明<sup>1</sup>, 張替貴聖<sup>1</sup>, 足立秀明<sup>2</sup>, 藤井映志<sup>2</sup>, 坂元尚紀<sup>3</sup>, 脇谷尚樹<sup>3</sup>, 鈴木久男<sup>3</sup>

ID Company, Panasonic Corp.<sup>1</sup>, ATRL, Panasonic Corp.<sup>2</sup>, Fac. of Eng., Shizuoka Univ.<sup>3</sup>

°Y. Tanaka<sup>1</sup>, T. Harigai<sup>1</sup>, H. Adachi<sup>2</sup>, E. Fujii<sup>2</sup>, N. Sakamoto<sup>3</sup>, N. Wakiya<sup>3</sup>, and H. Suzuki<sup>3</sup>

E-mail: tanaka.yoshiaki001@jp.panasonic.com

【はじめに】強誘電体や圧電体の特性は、導入される応力状態に強く依存する [1]。それは、応力によりドメイン配列や結晶構造が変化するため、と考えられる。最近、我々は非鉛材料として注目を集めている (1-x)(Na,Bi)TiO<sub>3</sub> - xBaTiO<sub>3</sub> (NBT-BT) について、MgO 基板上に高品位のエピタキシャル薄膜を作製することで、鉛系材料に匹敵する高い圧電定数を実現した [2]。また、MgO(110)上では、基板の面内軸方向での圧電性能が大きく異なる、圧電異方性を新たに見出した [3]。NBT-BT 薄膜は、基板との熱膨張係数(TEC)の違いに起因する熱応力(圧縮応力)によって、out-of-plane 方向に歪んでいた。この熱応力による構造変化が、特異な圧電性能の起源になっていると推察される [4]。

そこで、熱膨張係数の異なる種々の基板上に NBT-BT 薄膜を作製し、薄膜に導入される応力を制御することで、結晶構造や強誘電・圧電特性への影響を調査した。

【結果と考察】MgAl<sub>2</sub>O<sub>4</sub>(MAO; TEC=7.5 ppm/K), SrTiO<sub>3</sub>(STO; 11 ppm/K), MgO (14 ppm/K) 各基板上に下部電極としてエピタキシャル Pt を形成し、結晶相境界組成の NBT-BT エピタキシャル薄膜(膜厚約 3 μm)を RF スパッタ法にて作製した [2-4]。

NBT-BT 薄膜に導入される熱応力の見積りでは、MAO, STO, MgO 基板で、それぞれ+440, 0, -380 MPa であった。すなわち、MAO では引張応力、MgO では圧縮応力が作用し、STO では応力フリーとなることを意味する。基板のそりから算出した実測値はこの見積りと良く一致していた。

(100)基板上では正方晶構造が観測されたものの基板種によってテトラゴナリティが大きく異なっていた。圧電定数  $e^{*}_{31}$  は基板 TEC とともに増加し、MgO 上で最大となった。これは、導入された圧縮応力により  $c$ -ドメインの割合が増加し、残留分極値が最大化したことによる。

一方、(110)基板上では斜方晶構造(Fig. 1(a))が観測された。引張応力が導入された MAO 上の薄膜においても、圧縮応力下の MgO 上の場合と同様に、面内方向での圧電異方性を発現したが、 $a_0$  軸方向の  $e^{*}_{31}$  の符号は、MgO と比較して反転していた(Fig. 1(b)-(e))。MgO 上では out-of-plane 方向に、MAO 上では in-plane 方向に歪んだ斜方晶構造を有していることから、圧電異方性はドメイン配列の方位に強く依存していることが判明した。

[1] K. J. Choi *et al.*, *Science* **306** (2004) 1005.

[2] T. Harigai *et al.*, *Appl. Phys. Express* **3** (2010) 111501.

[3] H. Adachi *et al.*, *Appl. Phys. Express* **4** (2011) 051501.

[4] Y. Tanaka *et al.*, *J. Am. Ceram. Soc.* **95** (2012) 3547.

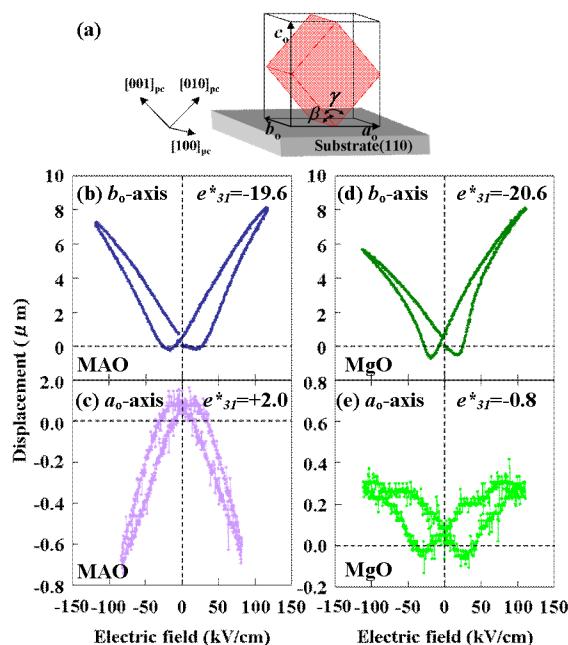


Figure 1 Schematic of crystal structure with orthorhombic lattice parameters and its crystallographic axes (a) and displacement-electric field curves for the orthorhombic NBT-BT thin films on MAO(110) (b)-(c) and on MgO(110) (d)-(e); (b)&(d) and (c)&(e) represent the curves along the  $b_0$ -axis and  $a_0$ -axis, respectively.