17p-PA4-7

低融点酸化物を添加した $BaTiO_3$ 薄膜の作製と評価

Fabrication and characterization of low-melting-point oxide-added $BaTiO_3$ thin films

名大エコトピア研 [1]，（株）リコー[2]　○小林 将也 [1]，林 幸壱朗 [1]，坂本 渉 [1]，
秋山 善一 [2]，余語 利信 [1]

Nagoya Univ. [1], Ricoh Co., Ltd.[2],　°Masaya kobayashi[1], Koichiro Hayashi[1], Wataru Sakamoto[1],
Yoshikazu Akiyama[2], Toshinobu Yogo[1]

E-mail: sakamoto@esi.nagoya-u.ac.jp

【緒言】　現在、広く実用化されている圧電デバイスに使用される圧電材料の主流は $Pb(Zr,Ti)O_3$ 系化合物であり、酸化鉛を主成分として含んでいる。世界的に有害元素含有材料の規制が進められているが、鉛含有圧電セラミックスは代替材料が未だ存在しないため、規制の対象から除外されている。このような状況であっても高性能無鉛圧電セラミックスの開発は急務の課題である。一方、近年の電子デバイスの小型化・高集積化に伴い、圧電セラミックスのような機能性材料においても薄膜化が求められている。しかし、薄膜においては一般に諸特性がバルク材料よりも劣るという問題点がある。本研究では代表的な無鉛圧電体である $BaTiO_3$ 系化合物に注目した。ここでは、$BaTiO_3$ 薄膜の電気的特性の向上を目的とし、化学溶液法により薄膜を作製する際の熱処理温度が $BaTiO_3$ 薄膜の結晶性および電気的特性に及ぼす効果について調べ、さらに高結晶性薄膜をより低いプロセス温度で得るために、熱処理中に $BaTiO_3$ 薄膜の結晶粒成長を促進する B_2O_3 系の低融点酸化物成分を添加した薄膜を作製し、各種特性に及ぼす影響について検討した。

【実験と結果】　$Ba(OEt)_2$, $Ti(O^iPr)_4$, LiOEt, $B(OEt)_3$ を出発原料として選択し、2-メトキシエタノールを主溶媒として 18 時間の還流処理により均一かつ安定な $BaTiO_3$ 前駆体溶液を調製した。この前駆体溶液を $Pt/TiO_x/SiO_2/Si$ 基板上にスピンコートし、乾燥、仮焼、結晶化処理を繰り返すことにより膜厚約 500 nm の薄膜を作製した。

添加物無しの $BaTiO_3$ 前駆体溶液を用い、750-900°C での結晶化処理で作製した薄膜はすべてペロブスカイト単相となった。AFM 観察結果より、作製したすべての薄膜が平滑な表面微構造（RMS 値で約 10 nm 以下）を有していることがわかった。また、熱処理温度を 750℃から 900℃まで上昇させることにより、粒径 50 nm 以下の微粒から約 150 nm まで粒径が増加し、強誘電特性は残留分極値が 10 μC/cm^2 以下から 30 μC/cm^2 以上にまで向上することがわかった。一方、$Pt/TiO_x/SiO_2/Si$ 基板に対して薄膜作製時と同様の熱処理を行ったところ、950°C 以上では Pt 層の著しい焼結の進行が確認された。そこで、高結晶性の薄膜を得るためのプロセス温度を低下させるため、700-750°C での温度域で液相を生成することで、粒成長促進剤として働くことが期待できる $2B_2O_3$-$3Li_2O$ 酸化物成分[1)]の添加について検討を行った。$BaTiO_3$ に対して $2B_2O_3$-$3Li_2O$ を 3 mol% 添加した組成の薄膜では粒成長が著しく促進されることがわかった(Fig. 1)。このような B_2O_3 系成分を添加した薄膜の結晶相および諸特性の詳細については当日報告予定である。

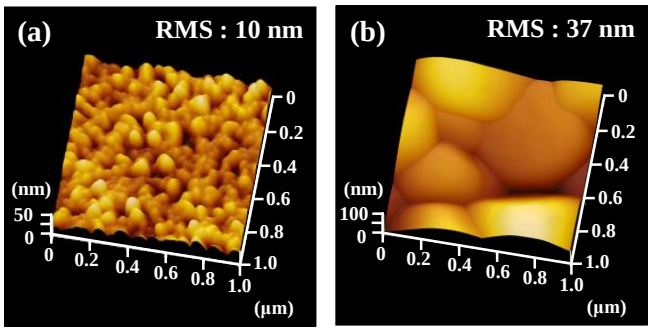

Fig. 1 AFM images of (a) $BaTiO_3$ and (b) 3 mol% $2B_2O_3$-$3Li_2O$ added $BaTiO_3$ thin films crystallized at 750°C.

1) A. P. Rollet and Roger Bouaziz, *Compt. rend.*, **240**, 2417-19 (1955).

© 2014 年　応用物理学会