

ゾル-ゲル法により作製した(Na,K)NbO₃ 薄膜の EPMA 分析

EPMA Analyses of Alkoxy-Derived (Na,K)NbO₃ Thin Films

○田中清高, 山崎陽子, 玉岡悟司, 柿本健一 (名古屋工業大学)

○K. Tanaka, Y. Yamazaki, S. Tamaoka, and K. Kakimoto (Nagoya Institute of Technology)

E-mail: tanaka.kiyotaka@nitech.ac.jp

【はじめに】無鉛系の圧電 MEMS やフレキシブルデバイスへの応用を目的とした(Na,K)NbO₃(以下 NKN)系薄膜の研究が再び活発に行われている¹⁾。我々は、ゾル-ゲル法により作製した NKN 薄膜の微構造と電気特性との関係を以前報告した²⁻³⁾。特に揮発性の高い Na と K の出発原料の仕込み組成を検討した結果、過剰比の異なる Na/K=58/52 の溶液から単相の NKN 薄膜が得られ(Fig. 1), 誘電率 725, 誘電損失 8.4%と比較的良好な電気特性を示すことも分かった³⁾。しかし、化学量論比組成溶液などから作製した NKN 薄膜には K₄Nb₆O₁₇と考えられる二次相が存在し、その所在や発生源はまだ分かっていない。今回は、電子プローブマイクロアナライザ(Electron Probe Micro Analyzer; EPMA)を用いて仕込み組成の異なる NKN 薄膜を分析することによって、二次相の分布や過剰溶液の有効性を再検討した。

【実験方法】スピコート手法により Pt/Ti/SiO₂/Si 基板上に 600℃で作製した NKN 薄膜³⁾を評価に用いた。なお、ゾル-ゲル法で調製した前駆体溶液の仕込み組成比は、Na/K=50/50, 52/52, 55/55, 58/52, 60/50 である。得られた薄膜の結晶性はX線回折(XRD), 表面状態は EPMA(日本電子 JXA-8530F)による二次電子像, 反射電子像, 元素マップで評価した。

【結果と考察】Fig. 2(a)の反射電子像に示す様に、化学量論比組成溶液から作製した NKN(50/50)薄膜には、直径 5~20μm の黒い領域と灰色の領域が存在し、これらの中には白い領域が存在した。加えて、灰色のコントラストが段階的に変化していた。同視野の元素マッピングを行ったところ、黒い領域は Na リッチ(Fig. 2(b)), 白い領域は K リッチ, そして Nb は均一に分布していることが分かった。一方、10mol%過剰溶液から作製した NKN(55/55)薄膜の表面は粒径数 100nm の微小な結晶粒で構成され、極端な元素の偏りも無いことが分かった(Fig. 3)。過剰に仕込んだ Na と K が熱処理中に揮発した分を補うことで、均一な結晶核の発生と粒成長が生じたと考えられる。以上より、(Na,K)を 10mol%過剰とした前駆体溶液は、高品質な NKN 薄膜を得るために有効である。

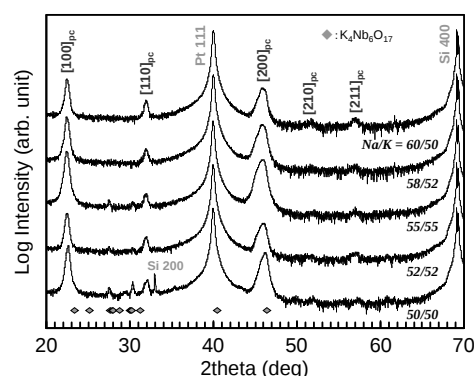


Fig. 1. XRD patterns of NKN/Pt/SiO₂/Si thin films fabricated from precursor solutions with various Na/K ratios.

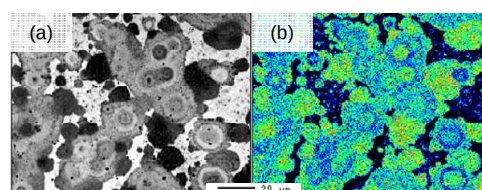


Fig. 2. Backscattered electron (a) and Na Kα (b) images of NKN(50/50) thin film.

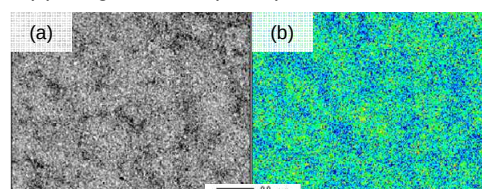


Fig. 3. Backscattered electron (a) and Na Kα (b) images of NKN(55/55) thin film.

1) 第 32 回強誘電体応用会議 21-S-02, 23-P-14 など 2) K. Tanaka, K. Kakimoto, and H. Ohsato, J. Cryst. Growth **294**, 209 (2006).など 3) K. Tanaka, H. Hayashi, K. Kakimoto, H. Ohsato, and T. Iijima, JJAP **46**, 6964 (2007).