非鉛強誘電体厚膜構造に与えるプロトンダメージの検討

Structural Damages of Lead-free Ferroelectric Thick-Films by Proton Beam Irradiation

¹芝浦工大工,²芝浦工大 RCGI · ³八戸工大工 ⁰山口正樹^{1,2}, 増田陽一郎³, 平出惇¹ Shibaura Inst. of Tech., *Hachinohe Inst. of Tech., ⁰M. Yamaguchi, Y. Masuda* and J. Hirade E-mail: yamag@sic.shibaura-it.ac.jp

<u>1. はじめに</u>

強誘電/圧電材料の応用は多岐にわたり,近年 では 3D プリンタによる構造体形成に関する発表 が行われるなど,数μm 厚の材料加工技術の開発 も期待されるようになった.

我々は、収束プロトンビームによる厚膜の高ア スペクト比パターン加工を目指している.そのな かで、誘起反応による直接パターニングでは基板 からの剥離と組成ずれが生じること、¹⁾結晶化膜 の改質効果では一定量以上のドーズによる漏れ 電流特性の改善効果が認められること²⁾を報告し てきた.しかし、プロトン照射による結晶改質の メカニズムについては不明であったため、今回は 結晶構造解析の立場から、これの解明に取り組ん だので報告する.

2. 実験方法

本報告において対象とする非鉛強誘電体材料は, 既報^{1,2)}のとおり層状構造化合物の代表であるチ タン酸ビスマス($Bi_4Ti_3O_{12}$)である. Bi および Ti 塗布原料は市販の MOD 溶液とし,溶液組成は 12.5%Bi 過剰となるように混合した. これを Si(100)基板上にディップコートにより成膜した のち,大気中 250°Cで5分間の乾燥を行った. こ れを所定の回数だけ繰り返し,一括して大気中 500°Cで10分間の仮焼成,酸素中 750°Cで15分 の結晶化処理を行った. 結晶化処理後の c 軸配向 $Bi_4Ti_3O_{12}$ 膜に対し,加速電圧 1 MeV のプロトン ビームを照射した. ビーム照射量による結晶構造 変化を X 線回折により評価し,理論計算結果との 比較により, 改質メカニズムについて検討した.

<u>3.</u>結果および考察

作成した Bi₄Ti₃O₁₂膜の結晶構造は,図1に示す ようなプロトン照射量依存性を示す.最密充填方 位である(117)面強度はほぼ一定で, c 軸の特定回 折強度のみ大きく減少する.図2は顕著な例であ る,Bi(1)サイトの占有率を 70%としたときの理 論回折パターンである.ここから明らかなように, (006), (008), (0010)面の回折線強度などが低下 する. このような現象は, Bi(2)あるいは Ti サイ トの欠損では認められなかった. したがって, 誘 起反応により Bi(1)サイトの結合が優先的に切ら れるが, 原子の脱離には至らず, 高濃度照射によ るアニール効果により, 結晶構造が改善されるも のと考える.

謝辞

本研究の一部は、芝浦工大 RCGI の助成により行われました.また、 プロトンビームの照射にあたり、芝浦工大の西川宏之教授、澁谷泰一 氏にご協力を頂きました.ここに記して感謝いたします.

参考文献

- 1) 渡辺他, 第61回応用物理学会春季学術講演会, 17p-PG8.
- 2) 山口他, 第76回応用物理学会秋季学術講演会, 14a-PA1-1.



Fig. 1. XRD patterns of BIT film with various PB irradiation values.



Fig. 2. Theoretical analysis results of the XRD pattern with various film compositions.