

酸素スプレー法を用いた反応性スパッタリングによる $\text{Ba}(\text{Zr}_{1-x}\text{Ti}_x)\text{O}_3$ 膜の作製

Fabrication of $\text{Ba}(\text{Zr}_{1-x}\text{Ti}_x)\text{O}_3$ film by reactive sputtering method using oxygen spray

防衛大 牧野 碧, 篠原 崇之, 砂岡 裕基, 西田 謙

National Defense Academy, Ao Makino, Takayuki Shinohara, Yuki Sunaoka and Ken Nishida

E-mail: em57004@nda.ac.jp

1 はじめに

近年、チタン酸バリウム BaTiO_3 (BT) の Ti サイトを Zr 置換した $\text{Ba}(\text{Zr}_{1-x}\text{Ti}_x)\text{O}_3$ (BZT) のセラミックスが高誘電率、低誘電損失及びチューナブル特性を有することが考えられ、新しい誘電材料として注目されている。我々は基板上で金属材料と反応性ガスと反応させることで、結晶性に優れ、緻密で密着性の高い膜を作製できる反応性スパッタリング法^[1]を用いて製膜作業を行っている。この際、金属ターゲットを用いると同時に、反応性ガスを直接基板に吹き付けることで、ターゲットの酸化の抑制及び基板上的酸化速度の向上を両立する、酸素スプレー法を用いている。これにより従来手法で作成したものと同様の結晶性を維持しつつ、製膜速度が改善されたことを BT の製膜において確認した。

今回は酸素スプレー法を用いた製膜法において、BZT 膜の製膜速度の向上は可能か検証すると同時に、作製した BZT 膜の評価を行った。

2 実験方法

2.1 製膜装置

本研究では、RF マグネトロンスパッタ法を用いる。また、ターゲットの酸化の抑制及び基板の酸化速度の向上を両立するために、酸素側のノズルホルダー付近まで延長する酸素スプレー法を用いた。スパッタリング装置内部の改良前後の比較図を図 1 に示す。

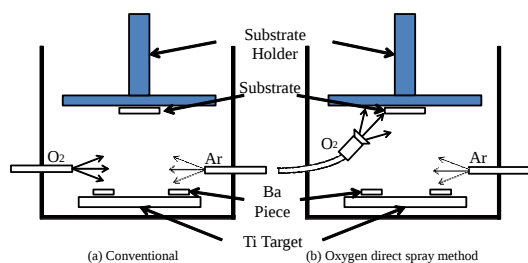


Fig.1 Schematic drawing of sputtering equipment

2.2 強誘電体 BZT 膜の作製・評価

本研究では、前述したスパッタリング装置を用いて Pt/Si 基板上に BZT 膜を作製した。スパッタのターゲットには反応性が高く、低温成長が望める Ba 金属小片及び Zr 金属小片を Ti 金属円板上に配置したものを用いた。BZT 膜の製膜に使用する基板は、Pt/Si 基板を用いた。製膜条件については、製膜時間 1~5 時間、基板温度 600 °C、RF 電力 100 W、成長圧力 0.2 ~ 5 Pa、Ba 片及び Zr 片は 1 辺 10 mm のものをそれぞれ 4 片使用し、中心に向かって放射状に配置した。アルゴンと酸素の流量比については、1 : 1 とした。製膜後、結晶学的及び電気的特性について評価を行った。

3 実験結果及び考察

従来手法で作製した BT と酸素スプレー法で作成した BT 及び BZT の XRD パターンを図 2 に、ラマンスペクトルを比較したもの図 3 に、ヒステリシス特性の比

較図を図 4 に示す。XRD より (002) 及び (200) のピークが分離していることから正方晶であることが分かる。ラマンスペクトルからも同様に正方晶のスペクトルが観察できた。しかしながらヒステリシス特性においては、ループが小さくなっており、常誘電性が強くなっていた。これらは Zr 置換の影響によるものと考えられる。SEM で断面観察した結果、化合物モードでの BZT 膜は、70 nm/h の製膜速度であったが、酸素スプレー法を用いることにより 1 時間で 180nm/h と約 2 倍以上の速度で製膜できていることが分かった。このことから酸素スプレー法を用いることで従来作成に長時間を要していた BZT 膜の製膜速度を高速化することができた。

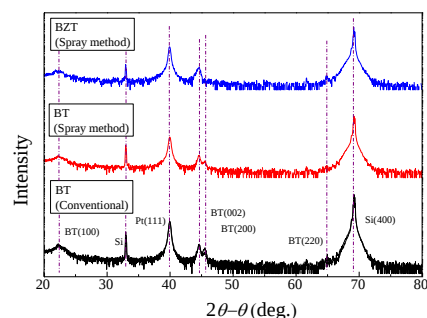


Fig.2 XRD pattern of BT and BZT film

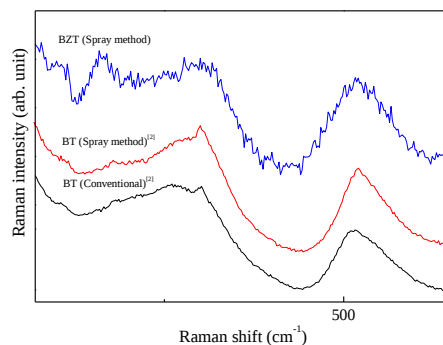


Fig.3 Raman spectra of BT and BZT film

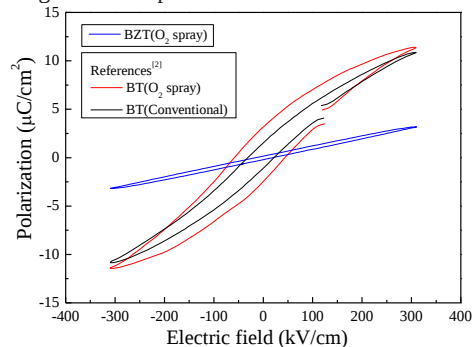


Fig.4 P-E hysteresis characteristics of BT and BZT film

参考文献

- [1] J. Musil *et al.* Thin Solid Films **475**(2005) pp. 208-218
- [2] 牧野 他: 第 66 回春季応物予稿集, 10a-3PA-5(2019)