

RF スパッタ法により作製した PZT 系エピタキシャル薄膜の MPB 特性

MPB property of PZT epitaxial thin films fabricated by RF magnetron sputtering

○(M1)野田 隆太^{1,2}, 清水 貴博^{1,2}, 和佐 清孝³, 柳谷 隆彦^{1,2,4}

(¹早大院・先進理工,²材研,³横浜市大,⁴JST さきがけ)

○Ryuta Noda^{1,2}, Takahiro Shimidzu^{1,2}, Kiyotaka Wasa³ and Takahiko Yanagitani^{1,2,4}

(¹Waseda Univ.,²ZAIKEN,³Yokohama City Univ.,⁴JST PRESTO)

E-mail: j_msvl@toki.waseda.jp / yanagitani@waseda.jp

1. まえがき

Pb(Zr_xTi_{1-x})O₃ (PZT)セラミックスは $x=0.53$ 付近に正方晶と菱面体晶のモルフォトロピック相境界(MPB)が存在する。一般的に PZT セラミックスは MPB 近傍で圧電・誘電特性が増大することが知られている[1,2]。しかしながら、我々のスパッタ法によるエピタキシャル薄膜においては純粋な PbTiO₃ ($x=0$)の方が MPB の PZT より再現性良く k_t^2 が大きくなる[3]。スパッタ PZT エピ膜では成膜中の高速酸素負イオン照射による膜中の欠陥が原因なのかバルクのキュリー温度を超えた 550°C においても、高い k_t^2 を維持することがわかっている[4]。この先行研究のようなスパッタエピ膜とバルクセラミックスの性質の違いが MPB 特性発現に影響を及ぼしている可能性がある。

そこで本研究では、スパッタ法により様々な組成比の PZT 薄膜共振子を作製し、格子定数、 k_t^2 、誘電特性および抗電界を評価し、バルクと同様に MPB が現れるかを検証する。

2. PZT 系薄膜の作製

RF マグネトロンスパッタ装置を用いて、様々な組成比($x=0, 0.2, 0.3, 0.4, 0.45, 0.5, 0.53, 0.55, 0.6, 0.7, 0.8, 0.9, 0.95, 1$)の 14 種の PZT 薄膜を作製した。成膜圧力は 0.5 Pa (Ar/O₂=20), RF 電力は 100 W, 基板-ターゲット間距離は 35 mm である。基板には、導電性 La-SrTiO₃ (STO) 両面研磨単結晶を用いた。PZT は STO と格子定数が近いこと、エピタキシャル薄膜が得られる。スパッタターゲットには PbZrO₃ と PbTiO₃ を組成に応じて混合し、さらに PbO を 10 mol% 加えた粉末を用いた[5]。

3. PZT 系薄膜の特性評価

X 線回折装置を用いて PZT 薄膜の結晶配向性を評価した。各サンプルの(002)面におけるロックンガープ半値幅は全てのサンプルにおいて 0.5°以下となり、良好な配向性を有していることを確認した。PZT エピ薄膜における組成と As grown における電気機械結合係数 k_t^2 について述べる。バルク PZT において圧電特性

は MPB 近傍で増大することが知られている[2]。しかしながら圧電特性の極大化は見られず、MPB が観測されないことを確認した。次に PZT エピ薄膜における組成と比誘電率 ϵ の関係を述べる。バルク PZT は誘電特性においても圧電特性と同様に MPB 近傍で増大することが知られている。しかしながら誘電特性の極大化は見られず、MPB が観測されないことを確認した。次に PZT エピ薄膜における組成と抗電界の関係を述べる。抗電界は一般的に Zr 濃度の増加に伴い減少する。本実験では Zr 濃度の増加による抗電界の減少具合から特異的な変化が確認できれば MPB が存在するとした。しかしながら PZT エピ薄膜の抗電界は Zr 濃度の増加に伴い単調減少したため MPB 特性はないと判断した。これらの結果から GHz 帯の PZT スパッタエピ膜において MPB 特性は現れないことを確認した。MPB が発現しない原因としては成膜中の高速酸素負イオン照射による膜中のダメージによるものだと考えられる。

[1] D. A. Berlincourt, C. Cmolik, and H. Jaffe, "Piezoelectric Properties of Polycrystalline Lead Titanate Zirconate Compositions," Proc. IRE., vol. 48, pp. 220-229, Feb. 1960.

[2] B. Jaffe, W. R. Cook Jr. and H. Jaffe, "Piezoelectric Ceramics," Gould Inc., pp. 92, 1971

[3] 清水 貴博, 森剛志, 柳谷隆彦, 和佐清孝, 「抗電界差による基本モード/高次モード周波数切替可能な PZT/PT エピ膜分極反転共振子」, 圧電材料・デバイスシンポジウム 2017, pp. 107-112, Feb. 2017.

[4] T. Yanagitani, K. Katada, M. Suzuki, and K. Wasa, "High electromechanical coupling in PZT epitaxial thick film resonator at 550°C," Proc. IEEE. Freq. Contr. Symp., pp. 121-123, May 2014.

[5] K. Wasa, S. Ito, K. Nakamura, T. Matsunaga, I. Kanno, T. Suzuki, H. Okino, T. Yamamoto, S. H. Seo, and D. Y. Noh, "Electromechanical coupling factors of single-domain 0.67Pb(Mg_{1/3}Nb_{2/3})O₃-0.33PbTiO₃ single-crystal thin film," Appl. Phys. Lett. vol. 88, pp. 122903, Mar. 2006.