

水熱合成(Bi,K)TiO₃ 薄膜作成における原料の影響Effect of raw material concentration on preparation of (Bi, K) TiO₃ thin films
by hydrothermal method

東工大

○窪田るりか, 館山明紀, 伊東良晴, 白石貴久, 黒澤実, 舟窪浩
Tokyo Tech.

○R. Kubota, A. Tateyama, Y. Ito, T. Shiraishi, M. Kurosawa, and H. Funakubo

E-mail : kubota.r.ac@m.titech.ac.jp

【緒言】 (Bi,K)TiO₃ (以下の文章中では BKT と記載する) は 370°C 以上の高いキュリー温度を有し、同じ正方晶を有する BaTiO₃ 等と比較して大きな結晶異方性(*c/a*)を有するため、非鉛強誘電多い及び圧電体としての応用が期待されている。構成元素の揮発性により密度の高い膜を作製することは困難とされてきたが^[1]、我々は水熱合成法を用いることで高品質な BKT 薄膜の作製に成功した。しかし、水熱合成法を用いて作製した BKT 薄膜はバルクよりも *c* 軸方向に伸張した格子を有しており、製膜温度によりその値は変化する^[2]。原因として Ti サイトへの K の混入や、原料溶液由来の H₂O や OH 基の存在が考えられた。従って、本研究では原料溶液である KOH の影響を調べるために、KOH 水溶液濃度、Bi および Ti 原料の濃度等を検討し、得られた膜の組成、結晶構造および電気特性の評価を行った。

【実験方法】 原料に KOH 水溶液、Bi(NO₃)₃ · 5H₂O、TiO₂(anatase 型)粉末の混合物を用いて 240°C で製膜を行った。基板には(100)SrTiO₃ を選択し、予めスパッタリング法により下部電極用バッファ層として(100)_cSrRuO₃ を製膜した。得られた膜は蛍光 X 線装置を用いて組成分析を、XRD 回折装置を用いて結晶構造評価を行った。また、インピーダンスアナライザ及び半導体パラメータ装置を用いて電気特性の評価を行った。

【結果と考察】 Fig.1 には原料の K、Bi および Ti の原料濃度条件を変えた場合の構成相をまとめた。図中の黒丸の記号で示す条件下では、結晶性の良い単相の BKT エピタキシャル膜が得られた。一方、赤丸の記号で示す条件下では、Bi₄Ti₃O₁₂ 結晶相やアモルファス相が確認され BKT 単相は得られなかった。Fig.2 には Bi と Ti の原料濃度がそれぞれ 0.5 mmol と 1.9 mmol の条件下で KOH 水溶液濃度を変化させて作製した膜の XRD 回折ピークを示す。KOH 濃度が低下するにつれ BKT 膜の面外格子定数の値が大きくなり、濃度が 1M になったところで Bi₄Ti₃O₁₂ 相が主相となって現れた。このことから、出発原料濃度が結晶構造に影響を及ぼすことが明らかとなった。当日は結晶構造の変化に加えて電気特性の評価を含めて議論する。

【謝辞】 本研究の一部は、JST (A-STEP) [JPMJTS1616] の支援により行われました。

【参考文献】 [1] Y. Nemoto, et al., Jpn. J. Appl. Phys., 55, 10TA13 (2016)

[2] 伊東良晴 第 67 回応用物理学会秋季学術講演会予稿集(8p-Z17-5)

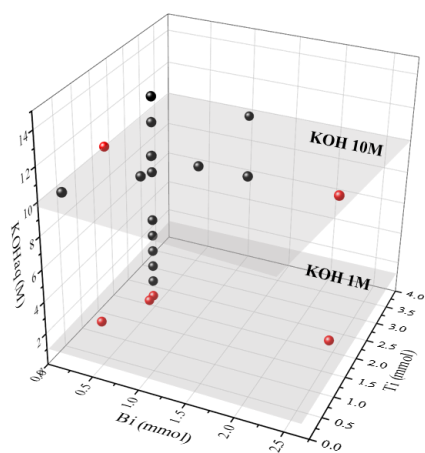


Fig.1 Constituent phase of film prepared under various K, Bi and Ti source concentrations, (●)BKT single phase and (●)BIT or amorphous phase.

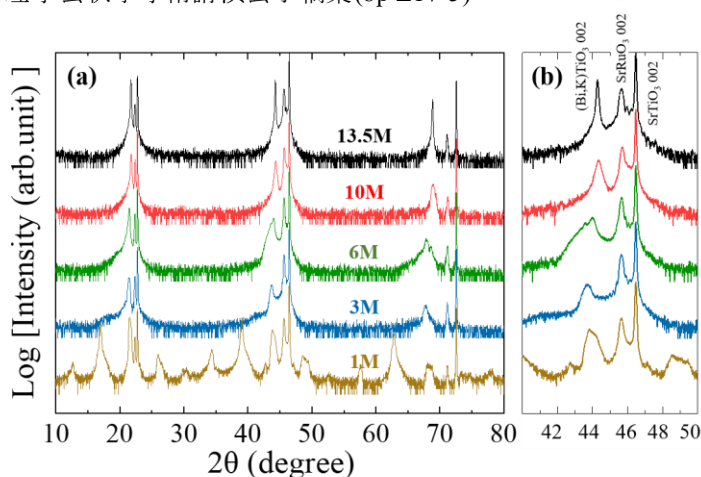


Fig.2 XRD patterns of films prepared under various KOH concentration. (a) 2θ = 10-80° and (b) 2θ = 40-50°.