

Pb 過剰(Pb,La)(Zr,Ti)O₃ 薄膜の結晶粒巨大化とその電気特性評価

Abnormal grain growth of Pb-excess (Pb,La)(Zr,Ti)O₃ thin films and their electrical properties

東理大理¹, 防衛大², 産総研³

○倉持 裕介¹, 橋爪 洋一郎¹, 中嶋 宇史¹, 山本 孝² 岡村 総一郎¹, 飯島 高志³

Tokyo Univ. of Sci.¹, National Defense Academy², AIST³

°Yusuke Kuramochi¹, Yoichiro Hashizume¹, Takashi Nakajima¹, Takashi Yamamoto²,

Soichiro Okamura¹ and Takashi Iijima³

E-mail: i1513613@ed.tus.ac.jp

【はじめに】強誘電体薄膜の強誘電性、圧電性を向上させる方法として、薄膜の結晶配向制御が挙げられる。我々は、従来のエピタキシャル成長法と異なる方法で大面積の結晶配向制御薄膜を作製するために、巨大な結晶粒からなる単結晶薄膜の作製を目指している。これまで、化学溶液堆積法による(Pb,La)(Zr,Ti)O₃ (115/3/65/35)において、熱処理条件最適化による結晶粒巨大化について検討し、平均粒径約 40 μm の薄膜の作製に成功している¹⁾。今回は、パイロクロア相の抑制と更なる結晶粒巨大化を目指し、(Pb,La)(Zr,Ti)O₃ (x/3/65/35)前駆体溶液の Pb 過剰量が結晶成長および強誘電性に及ぼす影響について検討したので、その結果を報告する。

【実験結果および考察】前駆体溶液として 25, 30, 35%Pb 過剰の(Pb,La)(Zr,Ti)O₃ (x/3/65/35, x=125, 130, 135)を用いた。前駆体溶液を Pt/Ti/SiO₂/Si 基板上にスピンコートし、150°C、1 分間の乾燥、350°C、3 分間の仮焼成を行った。これらの工程を 3 回繰り返した後、0.4 MPa の酸素雰囲気中で、昇温速度を 1°C/min とし 650°C で 10 分間焼成し、膜厚約 230 nm の PLZT 薄膜を作製した。Fig. 1 に Pb 過剰量と平均粒径の関係を示す。平均粒径 40 μm のこれまでの PLZT 薄膜(15%Pb 過剰)に比べて、Pb 過剰量が 25, 30, 35%と増加するに従い PLZT 薄膜の平均粒径は 50, 62, 72 μm と増加し、パイロクロア相を抑制することに成功した。次に電気特性の観点からの最適な Pb 過剰量を検討するため、直径 10 μm の上部 Pt 電極を用い、個々の結晶粒の強誘電性およびリーク電流特性を測定した。その結果を、Fig. 2, 3 に示す。25%Pb 過剰の PLZT 薄膜は、残留分極値(2P_r) 57 μC/cm²を示すと同時に、印加電界 348 kV/cm 時にリーク電流密度 6.7×10⁻⁶ A/cm²を示した。30, 35%Pb 過剰のものと比較すると、平均粒径は 10 μm 以上減少するが、残留分極値(2P_r)が 10 μC/cm²程度増加すると同時に、リーク電流密度も 2 桁以上低減した。よって、巨大な結晶粒からなる(Pb,La)(Zr,Ti)O₃ (x/3/65/35)単結晶薄膜の作製には、25%Pb 過剰(x=125)の前駆体溶液が適していると示唆された。

1)倉持 他, 2013 年 第 74 回 応用物理学会秋季学術講演会 18a-P1-6

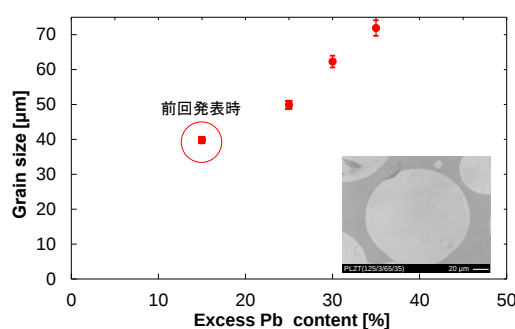


Fig. 1 Relation between excess Pb content and average grain size.

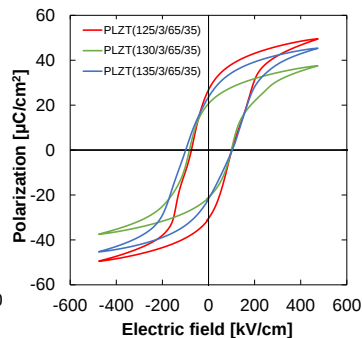


Fig. 2 Effect of excess Pb contents on P-E hysteresis curves.

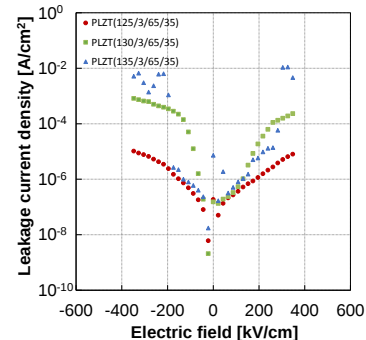


Fig. 3 Effect of excess Pb contents on Leakage current properties.