

新規手法による配向性チタン酸バリウム膜の形成機構と配向制御に関する研究

企画管理部産学官連携推進担当 坂井雄一*1 機械電子研究所 二口友昭*2

1. 緒言

強誘電体材料は、さまざまな電子部品に使用されているが、配向性を付与することで特性を向上させることが期待されるため、種々の手法が検討されている。これまで、パターン形成が容易、量産性、コストといった点で優位性のあるスクリーン印刷法での配向性BaTiO₃厚膜の形成について検討してきた。¹⁾通常、BaTiO₃は正方晶であるが、配向膜形成過程において六方晶BaTiO₃が形成され、配向に重要な役割を果たしている可能性があった。今回、六方晶BaTiO₃を添加し、配向膜形成への影響および類似の組成系の配向膜形成方法について検討した。

2. 実験方法

BaTiO₃のTiの一部をMnに置換して六方晶にしたもの(以下、BT_{Mn})、BaTiO₃を還元雰囲気中で熱処理して六方晶としたもの(以下、BT_{red})の2種類の六方晶BaTiO₃粉末を作製した。通常の正方晶BaTiO₃にBT_{Mn}もしくはBT_{red}を混合した。この粉末にエチルセルロース系のビヒクルと溶剤を混練し、スクリーン印刷用のペーストとした。基板にはジルコニア基板を用い、Ptペーストにて下部電極を形成した。この基板に作製したペーストをスクリーン印刷し650°Cで脱バイндаの後、1370°Cで焼成を行った。印刷から焼成の工程を3回繰り返すことで厚膜を形成した。

3. 実験結果

BT_{Mn}、BT_{red}を混合したBaTiO₃ペーストで厚膜を形成したところ、001/100方位への配向率は、それぞれ、0.9、0.1であり、BT_{Mn}を用いた場合は配向が進んだ一方で、BT_{red}を用いた場合は十分に配向が進まなかった。それぞれのペーストを1000~1370°Cで10分焼成し、X線回折測定を行い、六方晶BaTiO₃相と正方晶BaTiO₃相のピーク強度比を計算した結果を図1に示す。BT_{red}を含むペーストを使用した場合は、

1000°C以上で六方晶相が急速に消失した。一方、BT_{Mn}を含むペーストを使用した場合は、焼成温度である1370°Cでも六方晶相が残った。さらに1370°Cで焼成を続けるとBT_{Mn}を含むペーストでも六方晶相は消失した。BaTiO₃は1200°C以上で焼結が進み、このときに六方晶が残っていることが配向膜形成の重要な要因と考えられた。²⁾また、これまでスクリーン印刷と焼成を3回繰り返すことで配向膜を形成していたが、図2のように1層目にBT_{Mn}を添加した正方晶BaTiO₃を、2,3層目をBa(TiZr)O₃や正方晶BaTiO₃で厚膜形成を行った結果、表1に示すように、配向性のBa(TiZr)O₃膜やBaTiO₃膜が形成された。

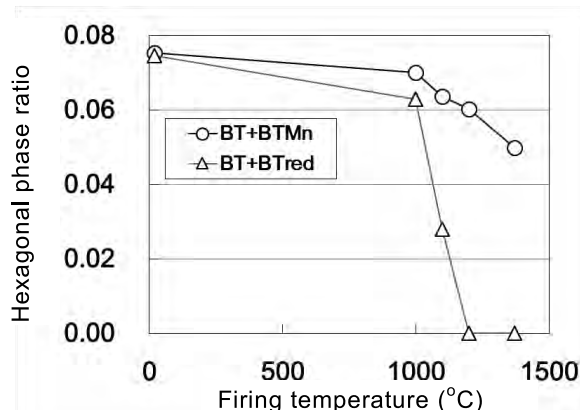


Fig. 1 Firing temperature dependence of hexagonal phase ratio.



Fig. 2 Schematic image of thick film.

Table1 Orientation degrees for 001/100 direction of thick films.

	Ba(TiZr)O ₃	Ba(TiZr)O ₃	BaTiO ₃
2, 3層目	Ba(TiZr)O ₃	Ba(TiZr)O ₃	BaTiO ₃
1層目	Ba(TiZr)O ₃	BaTiO ₃ +BT _{Mn}	BaTiO ₃ +BT _{Mn}
配向率	0	0.85	0.82

参考文献

- 坂井ほか:富山県工業技術センター研究報告27(2013)3.
- Y. Sakai *et al.*: Jpn. J. Appl. Phys. 52 (2013) 09KA12.

謝辞

本研究は、JSPS科研費25820130の助成を受けたものです。

*1現 ものづくり研究開発センター *2現 中央研究所