

水熱電着法を用いたペロブスカイト型酸化物薄膜の合成と構造解析

松代大

近年、薄膜作製技術において省エネルギーの観点からソフト溶液プロセスが注目されている。本研究グループは、ソフト溶液プロセスの1つである新規的な薄膜合成法"水熱電着法"を提案している。これは、水熱法と電着法を組み合わせた方法であり、 100°C 前後の比較的低温で簡易かつ安価な装置で合成を行える手法である。本論文では、強誘電性などの優れた機能性セラミックスであるペロブスカイト型酸化物に着目し、水熱電着法により、同じペロブスカイト構造をもつ(100)配向単結晶基板上にペロブスカイト型酸化物をエピタキシャル成長させ、合成した薄膜を構造解析した。

本論文では、ペロブスカイト型酸化物であるチタン酸鉛 (PbTiO_3)、ジルコン酸チタン酸鉛 ($\text{PbZr}_x\text{Ti}_{1-x}\text{O}_3$, PZT)、ニオブ酸カリウム (KNbO_3)、タンタル酸カリウム (KTaO_3)、ニオブ酸タンタル酸カリウム ($\text{KTa}_{1-x}\text{Nb}_x\text{O}_3$, KTN) について合成を行い、 PbTiO_3 や KTaO_3 の2成分系において合成のための反応温度や溶媒のKOH濃度を明らかにし、PZTやKTNの3成分系において調製条件による膜組成の制御を試みた。また、調製条件を変えることにより、合成した膜の結晶構造や表面形態がどのように変化するかを検討し、水熱電着法の成長機構の検討に結びつけた。

PbTiO_3 とPZTは $90\sim 110^{\circ}\text{C}$ でそれぞれKOH濃度4~10 M, 6~10 M、 KTaO_3 とKTNは $90\sim 110^{\circ}\text{C}$ でKOH濃度18.5 M、 KNbO_3 は 110°C KOH濃度18.5 Mで水熱電着法により合成可能であることがわかった。この条件は今まで報告されている液相プロセスの中でもより低い合成温度である。さらに、PZT薄膜においてTEMによる微構造観察を行い、PZT薄膜は2~15 nmの微粒子によって生成されていることを確認した。このことから、水熱電着法の成長機構は、溶液中で形成したコロイド微粒子の付着によるものであることが実証できた。