マテリアル先端リサーチインフラ利用報告書
ARIM User's Report

【Release：2023.07.28】　【Update：2023.10.23】

課題データ / Project Data

課題番号 Project Issue Number	22HK0014
利用課題名 Title	酸窒化物誘電体厚膜の作製とその微細構造観察
利用した実施機関 Support Institute	北海道大学 / Hokkaido Univ.
機関外・機関内の利用 External or Internal Use	内部利用（ARIM事業参画者以外）/Internal Use (by non ARIM members)
ARIM半導体基盤PF 関連課題 Related to ARIM-SETI	指定なし / No Designation
横断技術領域 Cross-Technology Area	計測・分析/Advanced Characterization
重要技術領域 Important Technology Area	量子・電子制御により革新的な機能を発現するマテリアル/Materials using quantum and electronic control to perform innovative functions
キーワード Keywords	電子顕微鏡/Electron microscopy,集束イオンビーム/Focused ion beam,表面・界面・粒界制御/ Surface/interface/grain boundary control

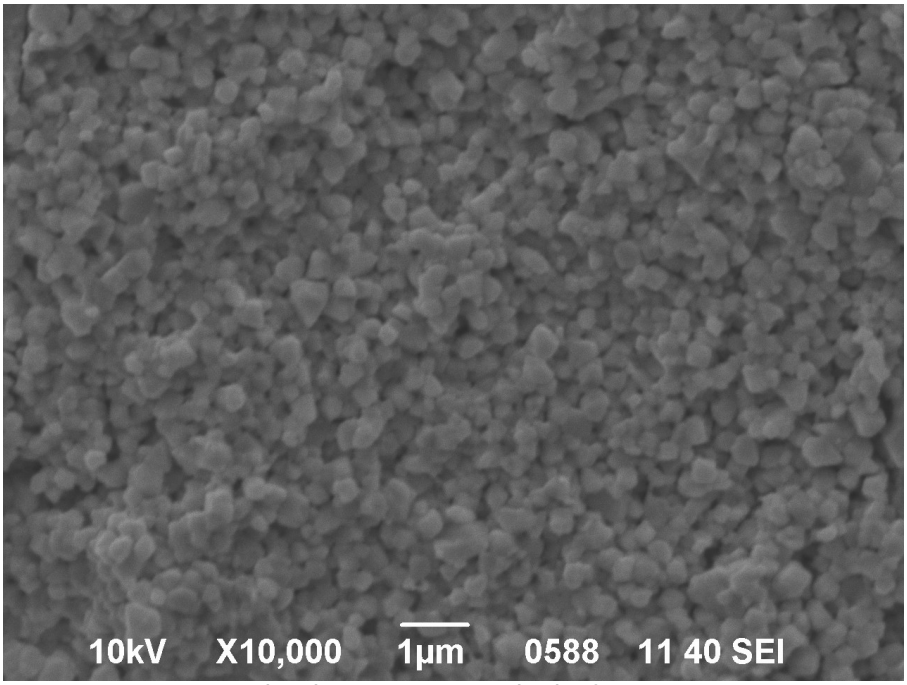
利用者と利用形態 / User and Support Type

利用者名（課題申請者） User Name (Project Applicant)	鱒渕 友治
所属名 Affiliation	北海道大学大学院工学研究院応用化学部門 構造無機化学研究室
共同利用者氏名 Names of Collaborators Excluding Supporters in the Hub and Spoke Institutes	竹内 大登,辻 侑希,草野 晴香
ARIM実施機関支援担当者 Names of Supporters in the Hub and Spoke Institutes	内田悠,澤厚貴
利用形態 Support Type	技術補助/Technical Assistance,機器利用/Equipment Utilization

利用した主な設備 / Equipment Used in This Project

利用した主な設備 Equipment ID & Name	HK-302：電界放出形走査電子顕微鏡 HK-304：集束イオンビーム加工・観察装置

報告書データ / Report

概要（目的・用途・実施内容） Abstract (Aim, Use Applications and Contents)	ペロブスカイト型酸窒化物は300程度の比較的高い比誘電率を比較的高い温度域まで示すことから、高温用途のコンデンサなどへの応用が期待されている。しかし、1000℃以上の焼結時に窒素の一部を放出して半導体化するため、緻密な焼結体の作製が困難だった。本研究では、電気泳動堆積法を用いてペロブスカイト型酸窒化物の厚膜成形体を作製し、B_2O_3焼結助剤の共存下で焼結さらに再窒化することで緻密でかつ窒素欠損の無い焼結体を得ることを目的とした。B_2O_3焼結助剤および再窒化反応が焼結体の微細組織に与える影響を調査した。
実験 Experimental	ペロブスカイト型酸窒化物$SrTaO_2N$と$BaTaO_2N$はアンモニア窒化法で作製した。それぞれ$SrCO_3$または$BaCO_3$を少量混合した懸濁液を作製し電気泳動堆積することで膜厚100μmの厚膜成形体を作製した。B_2O_3と一緒に厚膜成形体を0.2MPaのN_2雰囲気中、1400℃で4ｈ焼結した。得られた焼結体はアンモニア気流中アニールすることで焼結時に放出された窒素量を戻した。試料の微細組織はFE-SEM(JSM-6500F, jeol）で観察した。
結果と考察 Results and Discussion	電気泳動堆積法で作製した$SrTaO_2N$厚膜成形体を1400℃で焼結すると相対密度93%まで緻密化したが、NH_3中の再窒化反応で粒界から割れた。$SrTaO_2N$は正方晶系であり、再窒化反応による格子の異方的な膨張によって粒界割れを起こしたと考えられる。一方、立方晶系の$BaTaO_2N$はB_2O_3の共存下で焼成すると92%まで緻密化し、さらに焼結後の再窒化反応でも焼結体が割れることはなかった。厚さ100μmの$BaTaO_2N$厚膜焼結体を相対密度89%で得ることができた（図１）。室温における誘電特性を評価したところ、10^4Hzにおいて比誘電率390、誘電損失0.08を示した。
図・表・数式 1 Figures, Tables and Equations 1	 Fig. 1 SEM image of the dense $BaTaO_2N$ thick-film ceramic.
その他・特記事項（参考文献・謝辞等） Remarks(References and Acknowledgements)	特になし

成果発表・成果利用 / Publication and Patents

DOI（論文・プロシーディング）[1] DOI (Publication and Proceedings)	Hiroto Takeuchi, Preparation of thick dense ceramic films of dielectric BaTaO2N through electrophoretic deposition, *Ceramics International*, **49**, 21825-21829(2023). DOI: 10.1016/j.ceramint.2023.04.004

DOI（論文・プロシーディング）[2] DOI (Publication and Proceedings)	Akira Hosono, Ferroelectric BaTaO2N perovskite — Towards structure-property relationship study on high-quality crystals and ceramics prepared with the aid of liquid phase, *Solid State Sciences*, **144**, 107310(2023). DOI: 10.1016/j.solidstatesciences.2023.107310
口頭発表、ポスター発表および、その他の論文[1] Oral Presentations etc.	竹内大登、宮本大生、鱒渕友治、樋口幹雄、石井健斗（NIMS)、打越哲郎（NIMS）、電気泳動堆積法を用いたBaTaO2N厚膜焼結体の作製（口頭）、日本セラミックス協会2023年年会
口頭発表、ポスター発表および、その他の論文[2] Oral Presentations etc.	竹内大登, 宮本大生, 鱒渕友治, 樋口幹雄, 石井健斗（NIMS), 打越哲郎（NIMS)、ペロブスカイト型酸窒化物 ATaO2N (A=Sr, Ba)誘電体の高密度化（口頭）、第61回セラミックス基礎科学討論会
口頭発表、ポスター発表および、その他の論文[3] Oral Presentations etc.	Y. Masubuch, H. Takeuchi, X. Wen, M. Higuchi, Dielectric properties of BaTaO2N perovskite ceramics, 11th International Symposium on Nitrides (Saint-Malo, France) 2023/5/2-5.
口頭発表、ポスター発表および、その他の論文[4] Oral Presentations etc.	Y. Masubuch, H. Takeushi, X. Wen, M. Higuchi, Preparation of dielectric oxynitride BaTaO2N dense ceramic films through electrophoretic deposition, International Conference on Sintering 2023 (Gifu, Japan) 2023/8/27-31.
特許出願件数 Number of Patent Applications	0件
特許登録件数 Number of Registered Patents	0件