

## 正方晶系 $(\text{Bi}_{1/2}\text{Na}_{1/2})\text{TiO}_3\text{-BaTiO}_3$ 単結晶の分極反転挙動

### Behaviors of the polarization switching for tetragonal $(\text{Bi}_{1/2}\text{Na}_{1/2})\text{TiO}_3\text{-BaTiO}_3$ crystals

(東大先端研) ○北中佑樹・小口岳志・野口祐二・宮山 勝・香川 豊

(広島大学) 森吉千佳子・黒岩芳弘 (高エネルギー加速器研究機構) 鳥居周輝・神山 崇  
(RCAST, The Univ. of Tokyo) °Y. Kitanaka\*, T. Oguchi, Y. Noguchi, M. Miyayama, Y. Kagawa,  
(Hiroshima Univ.) C. Moriyoshi, Y. Kuroiwa, (KEK) S. Torii, T. Kamiyama

\*E-mail: y-peichun@crm.rcast.u-tokyo.ac.jp

【緒言】  $(\text{Bi}_{1/2}\text{Na}_{1/2})\text{TiO}_3\text{-BaTiO}_3$  [(1-x)BNT-xBT] は、 $x = 6\text{--}7\%$  の構造相境界 (MPB) 組成において良好な圧電特性を示し<sup>[1]</sup>、有望な非鉛圧電材料として注目されている。材料の本質的な特性の理解には、粒界などの影響がない単結晶における研究が求められ、近年において単結晶育成の報告がなされている<sup>[2-5]</sup>。一方、高品質な BNT-BT 結晶の育成が困難なため、系統的な特性評価の報告例はほとんどない。本研究では、高压酸素下で育成した高品質 BNT-BT 単結晶<sup>[6]</sup> の分極反転過程において、高エネルギー放射光 X 線を用いた結晶構造解析および圧電応答顕微鏡 (PFM) を用いたドメイン構造解析を行い、結晶の分極反転挙動を調べた結果について報告する。

【実験方法】 高压酸素雰囲気 ( $P_{\text{O}_2} = 0.9$  MPa) における溶液引き上げ (TSSG) 法<sup>[6,7]</sup> を用いて、BNT-BT 単結晶 ( $x = 12\%$ ) を育成した。<100> 方向に種々の大きさの電界 ( $E_{\text{ex-situ}}$ ) を印加した結晶に対し、SPring-8 (BL02B1) において高エネルギー放射光 X 線 (35 keV) による X 線単結晶構造解析<sup>[8]</sup> を行い、ドメイン回転および相転移挙動を評価した。結晶内に形成されたドメイン構造の解析は、PFM (アサイラムテクノロジー、MFP-3D) を用いて行った。

【結果と考察】 放射光 X 線回折 (SR-XRD) の結果、分極処理 (100 kV/cm) 後の BNT-BT 単結晶 ( $x = 12\%$ ) は正方晶  $P4mm$  相単相であった。図 1 に、結晶の分極反転過程 ( $E_{\text{ex-situ}} = 45$  kV/cm) において観察された放射光 X 線回折像を示す。 $P4mm$  相の  $90^\circ$  ドメインに由来する回折スポットのスプリット [図 1(a)] とともに、 $P4bm$  相に由来する  $1/2\{o\ o\ e\}$  超格子反射 ( $o$ : odd,  $e$ : even) が観察された [図 1(b)]。この結果は、結晶が分極反転過程において  $P4mm$  と  $P4bm$  の混相状態となっていることを示している。図 2 に、 $E_{\text{ex-situ}} = 39$  kV/cm の電界印加により形成されたドメイン構造の PFM 像を示す。 $E_{\text{ex-situ}}$  によって結晶内に部分的に生じた分極反転領域 (図中破線下部) の内部に、微細なドメイン構造が形成していた。この微細構造は、自発分極の  $90^\circ$  回転により生じた  $a$ -domain ( $P4mm$  相) と、電界誘起相転移により生じた  $P4bm$  相の混相状態により形成されたと考えられる。BNT-BT 系材料の特性設計において、 $P4bm$  相を介する電界誘起相転移が重要である可能性が示された。

【参考文献】 [1] T. Takenaka *et al.*: *Jpn. J. Appl. Phys.* **30** (1991) 2236. [2] Y. M. Chiang *et al.*: *Appl. Phys. Lett.* **73** (1998) 3683. [3] H. Hosono *et al.*: *Jpn. J. Appl. Phys.* **40** (2001) 5722. [4] Q. Zhang *et al.*: *Appl. Phys. Lett.* **95** (2009) 102904. [5] N. Yasuda *et al.*: *Jpn. J. Appl. Phys.* **48** (2009) 09KC06. [6] H. Onozuka *et al.*: *Jpn. J. Appl. Phys.* **50** (2011) 09NE07. [7] Y. Kitanaka *et al.*: *Jpn. J. Appl. Phys.* **49** (2010) 09MC06, *Ferroelectrics* **414** (2011) 24. [8] C. Moriyoshi *et al.*: *Jpn. J. Appl. Phys.* **50** (2011) 09NE05.

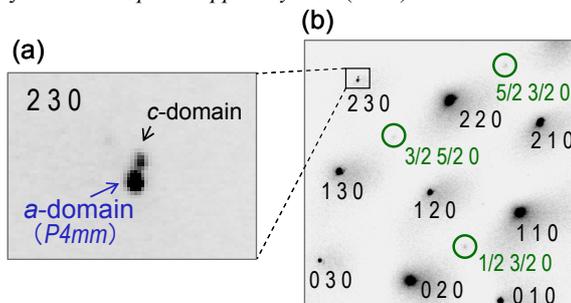


Fig. 1. X-ray diffraction patterns for BNT-12%BT single crystals after an  $E_{\text{ex-situ}}$  (45 kV/cm) was applied along the <100> axis: (a) splitting spots of the  $90^\circ$  domain structure, (b) superlattice reflections of the  $P4bm$  phase.

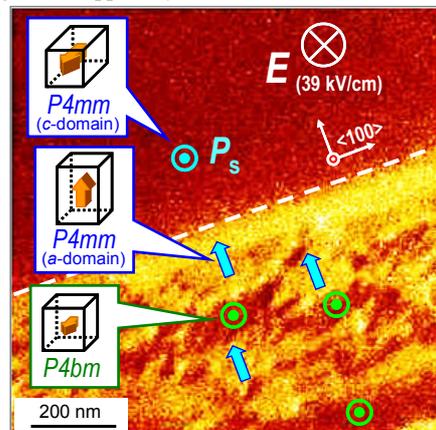


Fig. 2. In-plane PFM image on the (100) surface of BNT-12%BT single crystals after an  $E_{\text{ex-situ}}$  of 39 kV/cm was applied. Insets in the PFM image depict the assumed crystal phase of each domain.