18a-A11-4

エピタキシャル歪みによる ペロブスカイト型酸窒化物 $SrTaO_2N$ のアニオン配列制御

Control of anion arrangement in perovskite oxynitirde $SrTaO_2N$ with epitaxial strain

東大院理[1]，KAST[2]，JST-CREST[3]　○岡 大地[1]，廣瀬 靖[1,2,3]，神坂 英幸[1,3]，福村 知昭[1,2,3]，長谷川 哲也[1,2,3]

Univ. of Tokyo[1], KAST[2], JST-CREST[3], ○Daichi Oka[1], Yasushi Hirose[1,2,3], Hideyuki Kamisaka[1,2,3], Tomoteru Fukumura[1,2,3], Tetsuya Hasegawa[1,2,3]

E-mail: oka@chem.s.u-tokyo.ac.jp

【序】$SrTaO_2N$ や $BaTaO_2N$ などの d^0 ペロブスカイト型酸窒化物は常誘電体であるにも関わらず、2000 を超える比誘電率を示す有望な新奇誘電体材料である[1]。同じアニオンサイトを占める酸素と窒素には *cis* 型と *trans* 型を単位構造とする無数の配列が可能であり、誘電物性との関連が予想されている。しかし、現在のところ実験的にアニオン配列を制御した例はなく、両者の関係はほとんど明らかになっていない。

我々はこれまで窒素プラズマ支援パルスレーザー堆積（PLD）法を用いて酸窒化物薄膜の合成に取り組んできた。特に $SrTiO_3$ 基板上に成長させた $SrTaO_2N$ エピタキシャル薄膜がバルク体と異なり、電圧印加により強誘電体的な挙動を示すことを本学会でも報告した [2]。今回、詳細な分極構造観察と理論計算を行った結果、基板からの格子歪みがアニオン配列の決定とそれに基づく物性発現に重要な役割を果たすことを見出したので報告する。

【薄膜合成】$Sr_2Ta_2O_7$ 焼結体を原料ターゲットとし、プラズマソースで活性化した窒素を雰囲気中に導入した。基板には Nb:$SrTiO_3$(100)面を用いた。X 線回折構造解析および組成分析により、不純物のない $SrTaO_2N$ エピタキシャル薄膜の成長を確認した。薄膜の格子は部分的に緩和しながらも c/a = 1.02 の大きな正方晶歪みを有していた。これはバルク体（c/a = 1.002）に比べて大きく、格子ミスマッチ（−3.2 %）に由来する圧縮歪みが薄膜に導入されたことを示している。

【強誘電性挙動の観察】合成した $SrTaO_2N$ 薄膜を圧電応答顕微鏡により観察したところ、電圧未印加の状態でも 10^1–10^2 nm オーダーの微小領域が圧電応答を示しているのを発見した。この微小領域上で外部電場を掃引すると明瞭な強誘電性的ヒステリシス曲線を描いた（Fig. 1）[3]。第一原理計算により相安定性の比較を行ったところ、バルク体で見られる最安定な *cis* 型相が圧縮歪みにより不安定化するのに対し、強誘電性 *trans* 型準安定相は全エネルギーの変化が小さく相対的に安定化する傾向が見られた。これらの結果はエピタキシャル歪みにより *trans* 型構造が一部の微小領域で形成され、強誘電体的性質が実現したことを示唆している（Fig. 2）。今回得られた知見は今後の酸窒化物を対象とした材料開発に指針を与えるものである。

[1] Y.-I. Kim *et al.*, *Chem. Mater.* **16,** 1267–1276 (2004). [2] 岡他 第 72 回秋季応用物理学会 30p-D-1 [3] D. Oka *et al. Sci. Rep.* **4,** 4987 (2014).

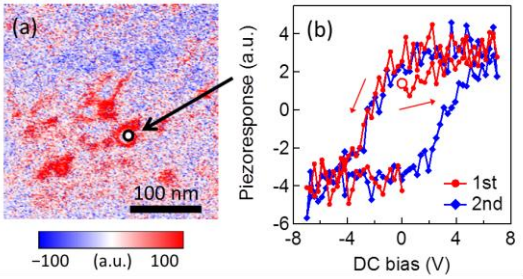

Fig. 1. (a) Piezoresponse force microscope image of the $SrTaO_2N$ epitaxial thin film. (b) Ferroelectric piezoresponse hysteresis curve measured at the point indicated in (a).

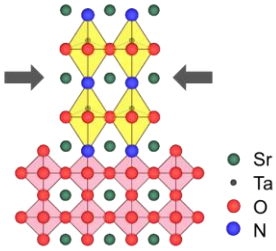

Fig. 2. Illustration of stabilization of the *trans* structure with epitaxial strain.

© 2014 年　応用物理学会