

正方晶 $\text{Pb}(\text{Zr},\text{Ti})\text{O}_3$ 薄膜における $\text{Zr}/(\text{Zr}+\text{Ti})$ 比のドメイン構造への影響

Effect of $\text{Zr}/(\text{Zr}+\text{Ti})$ Ratio on Domain Structure in Tetragonal $\text{Pb}(\text{Zr},\text{Ti})\text{O}_3$ Thin Film

一ノ瀬大地¹, 中島崇明¹, 江原祥隆¹, 清水荘雄¹, 坂田修身^{1,2,3}, 山田智明^{4,5}, 舟窪浩¹

(¹東工大, ²NIMS, ³SPRING-8, ⁴名大, ⁵PRESTO)

Daichi Ichinose¹, Takaaki Nakashima¹, Yoshitaka Ehara¹, Takao Shimizu¹, Osami Sakata^{1,2,3},

Tomoaki Yamada^{4,5}, and Hiroshi Funakubo¹

(¹Tokyo Tech, ²NIMS, ³SPRING-8, ⁴Nagoya Univ., ⁵PRESTO)

【緒言】 $\text{Pb}(\text{Zr},\text{Ti})\text{O}_3$ (PZT)は代表的な強誘電体および圧電体材料であり、強誘電体メモリや微小電気機械システムなどに幅広く応用されている。正方晶(100)/(001)配向 $\text{Pb}(\text{Zr}_x\text{Ti}_{1-x})\text{O}_3$ (PZT)薄膜は、(100)/(010)配向(a ドメイン)及び(001)配向(c ドメイン)で構成されており、そのドメイン構造は、特性を大きく左右する。我々はこれまでに、(100)KTaO₃ 基板上に作製した(100)/(001)配向した正方晶 PZT エピタキシャル膜において、 $\text{Zr}/(\text{Zr}+\text{Ti})$ 比を変化させることによる膜面内の歪の効果で、室温のドメイン構造が変化することを報告してきた。今回は得られた膜のドメイン構造の温度依存性を調査し、常誘電体相から強誘電体相への相転移のキュリー温度(T_C)に加えて、強誘電体相内での“ドメイン構造転移”を観察したので報告する。

【結果, 考察】 Fig. 1 に(100)KTaO₃ 基板上に作製した正方晶 $\text{Pb}(\text{Zr}_{0.15}\text{Ti}_{0.85})\text{O}_3$ および $\text{Pb}(\text{Zr}_{0.22}\text{Ti}_{0.78})\text{O}_3$ 薄膜の格子定数の温度依存性を示している。図中には同じ組成の粉末および基板の格子定数の温度変化も合わせて示した。 $x=0.15$ では、相転移温度 T_C が粉末と一致しているのに対し、 $x=0.22$ では、 T_C が粉末よりも高くなっている。また、 T_C 以下の温度 T_D において、格子定数の不連続な変化が見られた。この温度では(001)配向から(100)と(001)の混合配向に変化することが確認でき、 T_D はドメイン構造が変化する温度であることが確認できた。Fig. 2 は Kukhar らと Sheng らの予測をもとに計算した膜中の温度と $\text{Zr}/(\text{Zr}+\text{Ti})$ 比による相転移温度 T_C 及びドメイン構造転移温度 T_D の関係を表したものである。 $\text{Zr}/(\text{Zr}+\text{Ti})$ 比は膜に発生する格子歪に対応しており、 $\text{Zr}/(\text{Zr}+\text{Ti})=0.15$ のとき格子歪 $S_m=0\%$ となる。図中には粉末の場合と、実験で求められた膜厚 30 nm の(100)KTaO₃ 基板上に作製した正方晶 $\text{Pb}(\text{Zr}_x\text{Ti}_{1-x})\text{O}_3$ 薄膜の T_C 及び T_D も合わせて示した。 T_C の実験値は予想とよく一致しており、 $\text{Zr}/(\text{Zr}+\text{Ti})=0.15$ ($S_m=0\%$)で最小となっている。更に $\text{Zr}/(\text{Zr}+\text{Ti})=0.22$ ($S_m=-0.5\%$)での T_D も計算値とほぼ一致しているのがわかった。これらの結果は、正方晶 $\text{Pb}(\text{Zr}_x\text{Ti}_{1-x})\text{O}_3$ 薄膜において、膜に対して微小な歪が発生する場合、 T_C 以下でドメイン構造が変化するということを示しており、ドメイン構造に大きく左右される圧電特性を考える上で重要な知見であるといえる。

【参考文献】 1) V. G. Kukhar, *et al.*, Phys. Rev. B73, 214103 (2006) 2) G. Sheng, *et al.*, J. Appl. Phys., 104, 054105 (2008).

【謝辞】 本研究一部は JSPS 科研費 26220907 および 15H04121 の助成を受けたものです。

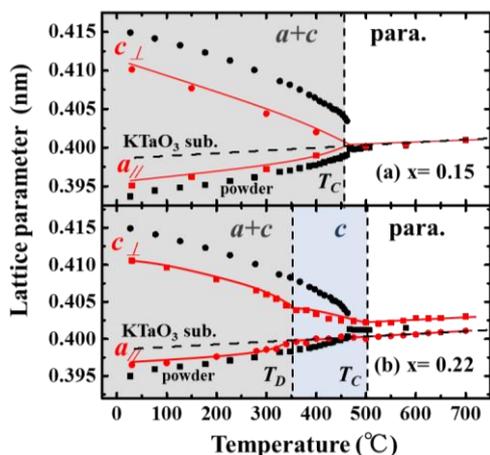


Fig. 1 Temperature dependence of the lattice parameters of 30 nm-thick (a) $\text{Pb}(\text{Zr}_{0.15}\text{Ti}_{0.85})\text{O}_3$ and (b) $\text{Pb}(\text{Zr}_{0.22}\text{Ti}_{0.78})\text{O}_3$ films grown on (100)KTaO₃ substrates.

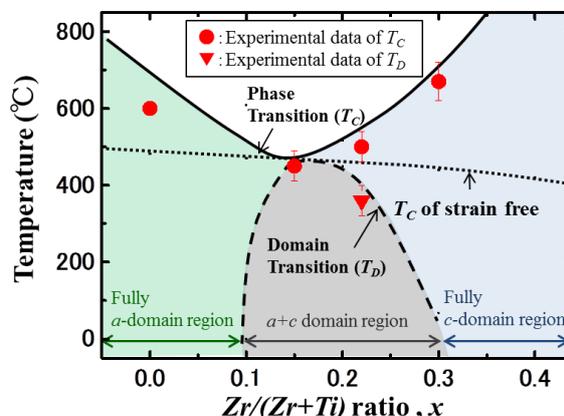


Fig. 2 Phase Transition (T_C) and Domain Transition (T_D) calculated from the theoretical data as a function of the $\text{Zr}/(\text{Zr}+\text{Ti})$ ratio (x). Theoretically predicted was calculated based on the data by Kukhar *et al.* and Sheng *et al.*