

XRD 測定による (100)/(001) 配向正方晶 $\text{Pb}(\text{Zr}, \text{Ti})\text{O}_3$ 膜の 電界印加下の結晶構造変化の定量分析

Quantitative Analysis of Crystal Structure Changes Under Electric Field by XRD

Measurement for (100)/(001)-oriented Tetragonal $\text{Pb}(\text{Zr}, \text{Ti})\text{O}_3$ Films

大島 直也¹・清水 荘雄¹・中島 光雅¹・江原 祥隆¹・及川 貴弘¹・
内田 寛²・○舟窪 浩¹ (東工大¹, 上智大²)

Naoya Oshima¹, Takao Shimizu¹, Mitsumasa Nakajima¹, Yoshitaka Ehara¹, Takahiro Oikawa¹,

Hiroshi Uchida² and ○Hiroshi Funakubo¹ (1. Tokyo Tech, 2. Sophie Univ.)

E-mail: funakubo.h.aa@m.titech.ac.jp

【緒言】 $\text{Pb}(\text{Zr}, \text{Ti})\text{O}_3$ (以下 PZT) 薄膜に代表される圧電体薄膜は、ピエゾ MEMS 応用で検討されてきた。これまで、PZT 薄膜は正方晶と菱面体晶の組成相境界である $\text{Zr}/(\text{Zr}+\text{Ti})$ 比が約 0.5 の組成で圧電特性が最大となることが知られているが^[1]、この組成は比誘電率も大きいためセンサーや振動発電の応用には必ずしも最適ではないとされている^[2]。一方、我々は従来あまり検討されていなかった正方晶組成において、比誘電率が低いままで高い圧電特性が得られることを報告している^[3]。従来の圧電体の研究では、製膜直後の X 線回折(XRD)測定による結晶構造解析と、分極後の圧電性の関係が議論されてきた。しかしこの研究方法は、分極処理による結晶構造変化や、電界印加下の結晶構造変化を十分に考慮できていない。これまでに我々は電界印加におけるラマン散乱測定などを通して、電界印加による結晶構造の変化を定性的に議論してきた。本研究では、電界印加中の XRD 測定を用いることで、正方晶 PZT 薄膜における圧電性の定量的理解を試みたので報告する。

【実験方法】膜厚約 2 μm の $\text{Pb}(\text{Zr}_{0.40}\text{Ti}_{0.60})\text{O}_3$ 膜を MOCVD 法により作製した。(100)/(001)に配向したエピタキシャル膜を(100)Si 基板上に堆積させた。強誘電特性および圧電特性の評価は PZT 薄膜上に Pt 電極を作製して行った。電界印加前後の結晶構造は、図 1 に示すような装置を用いて、上部電極上に X 線を集光させて得た XRD 測定結果を解析し決定した^[4]。

【結果】図 2 に製膜後、分極処理後、および分極処理後の電界印加下で測定した XRD の結果を示す。製膜直後の薄膜では(100)配向が比較的強かったが、分極処理後は(001)配向に大きく変化していることが分かる。また、図 2(c)より、分極後の電界印加下では、(001)配向由来のピーク位置が低角側に移動し、結晶格子の伸長が確認された。さらにこのとき(100)配向由来のピーク強度の低下が観測され、(001)配向にスイッチングしていることが確認された。こうした変化から見積もられた圧電特性は実測された値と一致していた。このことから、従来の製膜直後の結晶構造のみでなく、ポーリング後、さらには電界印加時の結晶構造を評価することによって、圧電特性がより良く理解できることが明らかになった。

【参考文献】 [1] S. Yokoyama *et al.*, J. Appl. Phys. **98**, 094106 (2005). [2] T. Kobayashi *et al.*, Jpn. J. Appl. Phys. **52**, 09KA01 (2013). [3] Kim *et al.*, Appl. Phys. Lett. **88**, 25904 (2006). [4] A. Wada *et al.*, Mater. Res. Soc. Proc. 1507 (2013).

【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。

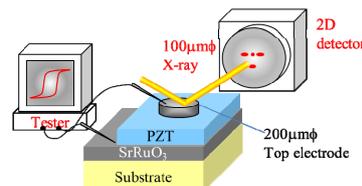


図 1 電界印加時の XRD 測定のセットアップ

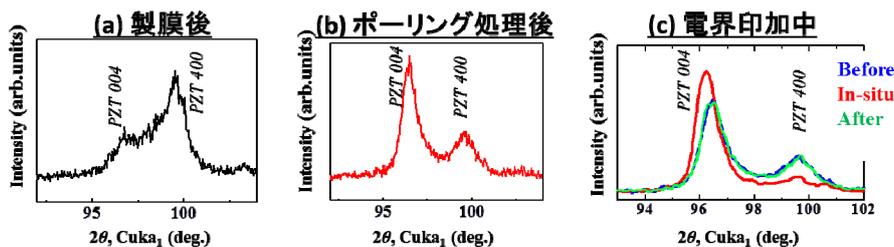


図 2 Si 基板上に作製した(100)/(001)配向 $\text{Pb}(\text{Zr}_{0.40}\text{Ti}_{0.60})\text{O}_3$ 膜の(a)製膜後、(b)分極処理後および(c)電界印加中における XRD 図形の変化