

BaTiO₃ 薄膜の陽イオン微小変位計測によるナノドメイン構造解析

Analysis for nano domain structure of BaTiO₃ film

by detecting slight cation displacements

°小林俊介¹, 加藤丈晴¹, 幾原雄一^{1,2}, 山本剛久^{1,3} (1. JFCC, 2. 東大総研, 3. 名大工)

°S. Kobayashi¹, T. Kato¹, Y. Ikuhara^{1,2} and T. Yamamoto^{1,3}

(1. JFCC, 2. Univ. Tokyo, 3. Nagoya Univ.)

E-mail: s_kobayashi@jfcc.or.jp

【緒言】

B サイト変位型強誘電体である BaTiO₃ は 403 K (130 °C : 立方晶↔正方晶), 278 K (5 °C : 正方晶↔斜方晶), 183 K (-90 °C : 斜方晶↔菱面体晶)において逐次相転移をする。ここで、基板との格子不整合性を利用し、結晶に圧縮歪みを加える事で BaTiO₃ 薄膜では相転移温度が変化し、室温においては立方晶ではなく、バルクにおける低温相である斜方晶と似た分極軸となる[1]。すなわち、BaTiO₃ 薄膜においてドメイン構造が存在することが予測されるが、これまでの透過型電子顕微鏡を用いた研究報告から、そのドメイン構造は不明確であった[2]。そこで、本研究では、高精度に取得した HAADF-STEM 像を用いた解析により、BaTiO₃ 薄膜において形成されるドメイン構造を明らかにすることを目的とした。これまで、困難であった僅か数 pm の変位量を観察し、定量的な解析を実施することにより、不明確であった BaTiO₃ 薄膜のドメイン構造は非常に微小なナノドメイン構造を有すること明らかにした。

【実験方法】

BaTiO₃ 薄膜はパルスレーザー堆積法により作製した。成膜基板には(110) GdScO₃ を使い、下部電極として SrRuO₃ 薄膜を用いた。薄膜の構造解析には高温 XRD によるドメイン構造の消失および、STEM により数 pm の原子変位の直接観察を実施した。

【結果・考察】

XRD 測定 より作製した BaTiO₃ 薄膜の膜厚は 189 nm であり面内の格子定数は基板と一致し、各界面は原子レベルで平坦であることを STEM 観察より確認した。さらに、誘電率、自発分極および高温 XRD 測定より、室温においては立方晶ではなく、バルクにおける低温相である斜方晶と似た分極軸となることを確認した。ここで、低倍の TEM 観察および STEM 観察では斜方晶系に依存したドメイン構造は観察されなかった。このことは、BaTiO₃ 薄膜中に形成されるドメイン構造は非常に微小なナノドメイン構造を形成していることを意味している。このナノドメイン構造を明らかにするため、高精度に HAADF-STEM 像を取得し (図 1(a))、2 次元ガウシアンフィッティングにより求めた各原子サイトの座標から、図 1(b)に示す様に、各陽イオンサイトの変位量解析を行った。図 1(a)に示す HAADF STEM 像から、上述した解析を実施した結果、BaTiO₃ 薄膜中のドメイン構造は、5~6 ユニットセルほどの大きさであることが明らかとなった(図 1(b), (c))。さらに、分極軸は物性測定および XRD 測定が予測される通り、c 軸方向ではなく、面内方向を向いているという事実も本解析から明確にすることに成功した(図 1(b))。本研究は、数多くの研究成果報告がなされてきた BaTiO₃ 薄膜において、僅か数 pm の変位量を高い精度により測定することで、本質的な構造を明らかにすることに成功した成果である。さらに、代表的な強誘電体 BaTiO₃ 薄膜において、基板の拘束が与える影響を詳細に検討していく上で非常に重要な知見を与える成果であると結論づけられる。

【参考文献】 [1] 第 76 回応用物理学会秋季学術講演会 13p-2h-15、小林俊介等 [2] Y. B. Chen *et al.*, Appl. Phys. Lett. 91, 252906 (2007).

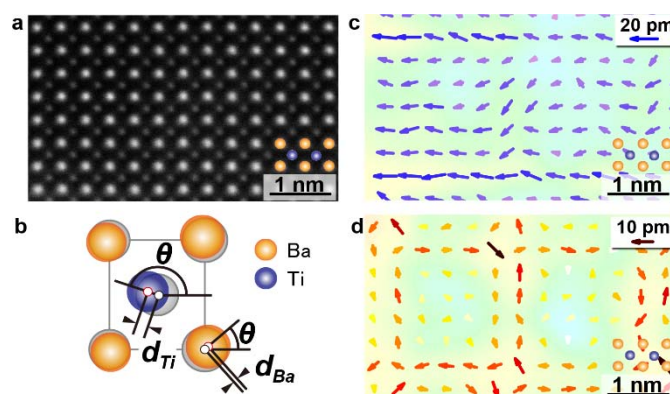


図.1 (a)BaTiO₃ 薄膜の HAADF-STEM 像。(b) Ba と Ti サイトの変位モデル。(c)Ti サイト変位および(d)Ba サイト変位ベクトルマッピング像。