

時間解放射光 X 線回折を用いた菱面体晶 PZT における 非 180°ドメインスイッチングの周波数応答特性の評価

Characterization of Frequency Dispersion of Non-180° Domain Switching
in Rhombohedral PZT by Time-Resolved Synchrotron Radiation X-ray diffraction

東工大¹, 名古屋大², 高輝度光科学センター³, 物材機構⁴

○清水 荘雄¹, 江原 祥隆¹, 三村 和仙¹, 安井 伸太郎¹, 山田 智明²,

今井 康彦³, 勝矢 良雄⁴, 坂田 修身⁴, 舟窪 浩¹,

Tokyo Tech.¹, Nagoya Univ.², JASRI³, NIMS⁴

○Takao Shimizu¹, Ehara Yoshitaka¹, Takanori Mimura¹, Shintaro Yasui¹, Tomoaki Yamada²,

Yasuhiko Imai³, Yoshio Katsuya⁴, Osami Sakata⁴, Hiroshi Funakubo¹

E-mail: shimizu.t.aa@m.titech.ac.jp

【緒言】 Pb(Zr,Ti)O₃ (PZT) は代表的な強誘電・圧電体材料であり、強誘電体メモリから微小電気機械システム(MEMS)まで広く応用されている物質である。PZT においては、それぞれ Ti-rich の組成で正方晶相、と Zr-rich の組成において菱面体晶相の構造を取り、それらの相境界において非常に優れた圧電特性を示すことが知られている。特に圧電応用においては、このモルフォトロピック相境界(MPB)組成を持つ PZT が利用されている。PZT の圧電性については、MPB 組成を含めて intrinsic な圧電応答だけではなく、ドメインスイッチングや電場誘起相転移などの extrinsic な成分が重要な役割を果たしていることが明らかになりつつある。我々はこれまでに、放射光を用いた電界下 x 線回折(XRD)によって、正方晶構造・菱面体晶構造の PZT における電界による結晶構造変化の直接観察について、報告を行ってきた。その結果、正方晶組成については、印加したパルス電界に対して、遅延なしに 90°ドメインが応答することが分かった。一方で、菱面体晶組成については電界の印加に対して、ドメインがほぼ遅延なく立ち上がるのに対して、電界を取り除く場合においては、電界の立下りに遅れてドメインが戻っていた。MPB 組成に近い菱面体晶相の PZT においては、(111)/(-111)の非 180°ドメインスイッチングは圧電性に大きく寄与することがわかっている一方で、菱面体晶相では、特に大きな誘電率の周波数分散が報告されており、このドメインスイッチングとの関連が指摘されている。このような周波数分散は、圧電 MEMS デバイスの動作速度を決めるという点で非常に重要である。従来の測定においては、単一の周波数(1.25 MHz)において繰り返しパルス電圧を印加していたが、最近我々はより広い周波数での測定ができる装置を組み立てている²⁾。本講演では、いくつかの繰り返し周波数で測定を行うことによりドメインスイッチングの周波数特性について評価したのでこれを報告する。

【実験方法】 実験試料は、MOCVD 法によって作製した(111)KTaO₃上のエピタキシャル PZT 薄膜を用いた。下部電極として、SrRuO₃層を基板と PZT の間に挿入している。電界印加下における結晶構造変化の解析は、上部 Pt 電極上に X 線を集光させて測定を行った。なお、印加する電圧には 10 V の矩形のパルス波を用い、パルス幅および繰り返し周波数を変化させることで非 180°ドメインスイッチングの周波数応答依存性を調べた。

【結果】 Figure 1 には、測定を行う前およびパルス幅 200 ns, 1.25 MHz の条件における電界印加 XRD 測定中における XRD パターンを示している。測定中の XRD においては、電界下および電界がない場合のパターンの両方を示した。電界印加中には、(111)ドメインが増加していることが示されており、過去の結果と矛盾しない。一方で、繰り返し測定中においては、電界印加をしていない時間においても、測定前よりも(111)ドメインが増加していることが示されている。講演では、異なる条件で印加した結果について、詳細な報告を行う。

【謝辞】 本研究の一部は、科研費(26220907, 17K14807)の支援を受けて行われた。また、放射光実験は、SPring-8 BL13, BL15 においてそれぞれ課題 2017B1574, 2018A4905 にて行った。

【参考文献】

- 1) Y. Ehara et al., *Sci. Rep.* 7 9641 (2017).
- 2) T. Sato et al., *Jpn. J. Appl. Phys.* in press.

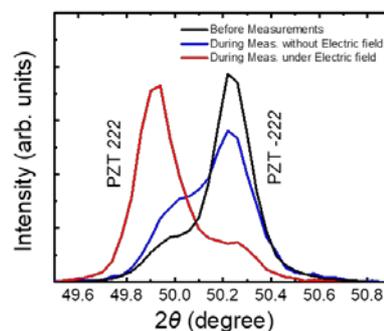


FIG. 1 XRD patterns recorded for the PZT 222 and -222 reflections before time-resolved measurements (black) and during time-resolved measurements without (blue) and under (red) electric field.