

面内分極配向した PbTiO_3 薄膜の a_1/a_2 ドメイン構造の膜厚依存 Thickness-dependent a_1/a_2 domain structure evolution of PbTiO_3 thin films with in-plane polarization

防衛大学校¹, 東工大² 名大³ ○江原 祥隆¹, 中島崇明², 一ノ瀬大地², 清水荘雄², 西田 謙¹,
山田智明³, 舟窪浩²

National Defense Academy¹, Tokyo Tech.², Nagoya Univ.³ ○Yoshitaka Ehara¹, T. Nakashima², D.
Ichinose², Takao Shimizu², K. Nishida¹, T. Yamada³, H. Funakubo²

E-mail: yoshieha@nda.ac.jp

【はじめに】強誘電体のドメイン構造は強誘電体の物性を大きく決定付することが知られている。代表的な材料である BaTiO_3 や PbTiO_3 において詳細なドメイン構造解析を数多くされている。特にそれらのナノロッドや極薄膜ではトロイダル構造等の特殊なドメイン構造が報告され、注目されている。^{1,2)} 我々は(100) KTaO_3 単結晶基板上に作製した PbTiO_3 薄膜で、約70nm以下の膜厚でそれぞれ完全(100)配向(a_1/a_2 ドメイン)していることを報告した。³⁾ Fig.1(a)に視斜角入射X線回折測定 (GI-XRD)を用いて評価した(100)配向した PbTiO_3 膜の面内ドメイン構造の解析結果を示しているが、 KTaO_3 400付近に面内 $\phi \neq 0$ 軸に PbTiO_3 膜の回折ピークが観察された。その結果より予想されるドメイン構造の模式図を Fig.1(b)に示した。 PbTiO_3 のユニットセルの[101]/[011]方向の面間隔 $[(a^2+c^2)^{0.5}=0.5696 \text{ nm}]$ が KTaO_3 の[110]方向の面間隔 $[(a^2+c^2)^{0.5}=0.5641 \text{ nm}]$ とよく一致しているが(格子不整合1.0%)、 KTaO_3 基板の[100][010]方向に PbTiO_3 膜が傾いて成長している。さらに膜厚が変化した場合、基板からの拘束が強くなりことから、ドメイン構造の傾きが小さくなり、それに伴い正方晶性 c/a も制御できることが考えられる。そこで、今回は膜厚による PbTiO_3 膜の結晶構造の変化および、面内分極 a_1/a_2 ドメイン構造の変化を報告する。

【実験】(100) KTaO_3 基板($a = 0.3989 \text{ nm}$)上に、膜厚約2 nmから70 nmの(100)配向したエピタキシャル PbTiO_3 膜をMOCVD法により作製した。結晶構造は視斜角入射X線回折測定 (GI-XRD)を用いてドメイン構造を評価した。

【結果】Figure2に膜厚による面内 a ドメインの $c_{\parallel}/a_{\parallel}$ 比と傾き角(α)を示した。膜厚の減少に伴い、 c/a 比が減少するのが確認され膜厚2nmでは約 $c/a=1.02$ とMPB組成に近い c/a 比になった。一方、 PbTiO_3 膜の[100]/[010]方向の傾き角も膜厚が2nmで最小値を示し、膜厚が増加して PbTiO_3 膜の c/a 比が増加するに従い、直線的に増加している。これらは幾何学的な式 $\{[2\tan^{-1}(c/a) - 90^\circ]/2 = \alpha\}$ によく一致していることがわかり、 PbTiO_3 の結晶構造およびドメイン構造が膜厚によって変化していることが確認された。

【参考】(1) K.S. Lee *et al.*, J. Appl. Phys. **90**, (2001) 4097. (2) A.Schilling *et al.*, Nano. Lett., **9**, (2010) 3359. (3) 碓山他, 秋季第67回応用物理学会学術講演会予稿集 31p-V-2, p523 (2006)

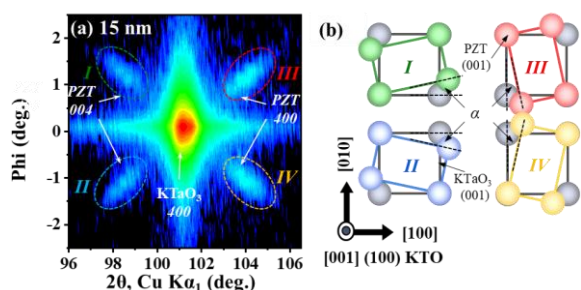


Figure 1 (a) In-plane grazing incidence XRD image measured around KTaO_3 400 diffraction for PbTiO_3 film on a KTaO_3 substrate. (b) Schematic plan-view of the diagonal-type rectangle-on-cube epitaxy of (100) PbTiO_3 on a (001) KTaO_3 substrate.

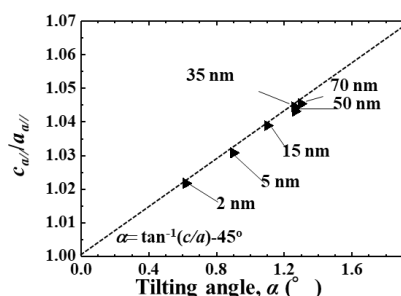


Figure 2 In-plane tilting angle (α) as a function of tetragonal distortion (c/a)