

(100)/(001)配向正方晶 $\text{Pb}(\text{Zr,Ti})\text{O}_3$ 膜における電界下での結晶構造評価 Characterization of crystal structure under application of an electric field for (100)/(001)-oriented tetragonal $\text{Pb}(\text{Zr,Ti})\text{O}_3$ films

東工大¹, 名古屋大², 東工大 MDX 元素セ³ [○](M2)中畑 美紀¹, 岡本 一輝¹, 石濱 圭佑¹,
山田 智明^{2,3}, 舟窪 浩¹

Tokyo Tech.¹, Nagoya Univ.² MDX Tokyo Tech.³ [○]M. Nakahata¹, K. Okamoto¹, K. Ishihama¹,
T. Yamada^{2,3}, H. Funakubo¹

E-mail: nakahata.m.aa@m.titech.ac.jp

【緒言】 $\text{Pb}(\text{Zr,Ti})\text{O}_3$ (PZT)薄膜は圧電 MEMS 応用で広く使用されている。^[1]我々は組成相境界を用いない、正方晶の(100)/(001)膜のドメインスイッチングによる圧電性向上を提案してきた。^[2]PZT 膜の圧電・強誘電特性の計算は単純なドメイン構造では広く検討されてきたが^{[3][4]}、(100)/(001)配向のようなマルチドメイン構造を持つ系の場合には、ドメイン間の相互作用などの存在によりこれまで十分な検討が行われてこなかった。^[5]本研究では、膜厚の異なる (100)/(001)配向正方晶 PZT 膜をエピタキシャル成長させた。さらに、電界印加下におけるドメインの格子定数およびドメインの体積分率の変化を評価した。

【実験方法】パルスレーザー堆積(PLD)法により膜厚の異なる (100)/(001) 配向したエピタキシャル $\text{Pb}(\text{Zr}_{0.35}\text{Ti}_{0.65})\text{O}_3$ 膜を (100) SrRuO_3 /(100) Pt /(100) ZrO_2 /(100) Si 基板上に作製した。得られた PZT 薄膜上に直径 200 μm の Pt 上部電極を作製し、レーザー干渉計を用いて巨視的な圧電応答の測定を行った。また、電界印加中の結晶構造を X 線回折(XRD)測定により評価し、内因的及び外因的な圧電応答に分解した。

【結果と考察】Figure1 に最大印加電界(E_{max})に対する残留分極値(P_r)を示す。1700nm 及び 1000nm の PZT 膜の P_r は、 E_{max} が閾値を超えたとき急峻に増加することが観測された。これに対し、400nm の PZT 膜の P_r ではそのような変化は観察されなかった。 P_r の急峻な増加を hard poling と定義し、 E_{max} が hard poling 前後($E_{\text{max}}=150\text{ kV/cm}$)の条件における S - E カーブを Figure 2 に示した。hard poling 前の poling 処理ではほとんど観察できなかった歪みの膜厚依存性が hard poling 後は明確に観察された。Figure 3 に電界印可前後の XRD 測定から得られた実効圧電定数 d_{33}^* を示す。得られた d_{33}^* は、①面外方向の c -ドメインの伸長($d_{33,\text{int}(c)}^*$)、② a -ドメインの収縮($d_{33,\text{int}(a)}^*$)及び③ドメインスイッチングによる圧電応答($d_{33,\text{ex}}^*$)に分解した。hard poling 前は、すべての膜厚において c -ドメインの伸張よりも a -ドメインの収縮が支配的であるのに対し、hard poling 後では膜厚 1000 nm 及び 1700 nm の PZT 膜のみ a -ドメインの収縮の効果が消滅し、 c -ドメインの伸張の効果が発現している。しかし圧電応答全体に対するそれらの内因的応答の寄与は小さく、hard poling 前後とも c -ドメインの体積変化に起因する圧電応答の寄与が大きいことが明らかになった。

【謝辞】本研究の一部は、文部科学省データ 創出・活用型マテリアル研究開発プロジェクト事業 JPMXP1122683430 の助成を受けたものです。

【参考文献】

- [1] P. Muralt, *J. Am. Ceram. Soc.* **91**, 1385 (2008).
- [2] M. Nakajima *et al.*, *ACS Appl. Electron. Mater.* **2**, 1908 (2020).
- [3] N. A. Pertsev *et al.*, *Phys. Rev. Lett.* **80**, 1988 (1998).
- [4] V. Nagarajan *et al.*, *Appl. Phys. Lett.* **81**, 4215 (2002).
- [5] E.P. Houwman, *et al.*, *Correlated Functional Oxides*, (Springer, Berlin 2017), p. 29.

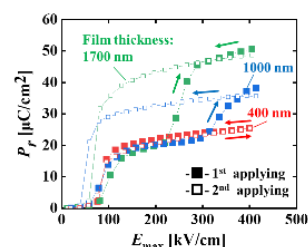


Fig. 1 Remanent polarization (P_r) as a function of maximum electric field (E_{max}) measured at 250 Hz for 400 nm-, 1000 nm- and 1700 nm-thick $\text{Pb}(\text{Zr}_{0.35}\text{Ti}_{0.65})\text{O}_3$ films.

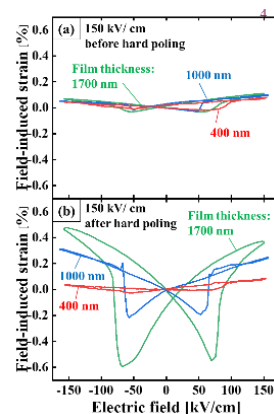


Fig. 2 S - E curves measured at 250 Hz (a) before and (b) after hard poling for 400 nm-, 1000 nm- and 1700 nm-thick $\text{Pb}(\text{Zr}_{0.35}\text{Ti}_{0.65})\text{O}_3$ films.

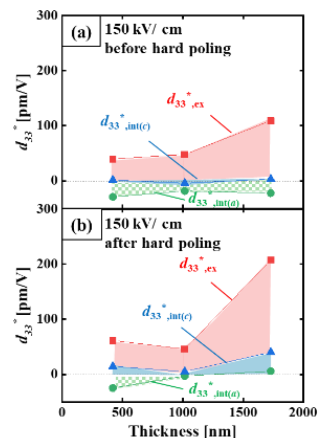


Fig.3 Contribution to the total d_{33}^* of the c -domain elongation, a -domain shrinkage and domain switching under applying an electric field of 150 kV/cm (a) before and (b) after the hard poling for 400 nm-, 1000 nm- and 1700 nm-thick PZT films.