

# (100)/(001)配向正方晶 $\text{Pb}(\text{Zr},\text{Ti})\text{O}_3$ 膜における圧電応答の周波数依存性

## Frequency dependence of piezoelectric response for (100)/(001)-oriented tetragonal $\text{Pb}(\text{Zr},\text{Ti})\text{O}_3$ films

東工大<sup>1</sup>, 東大<sup>2</sup>, NIMS<sup>3</sup>, JASRI<sup>4</sup>, 名古屋大<sup>5</sup>, 東工大 MDX<sup>6</sup> ○(D)中畑 美紀<sup>1</sup>, 岡本 一輝<sup>1</sup>,  
石濱 圭佑<sup>2</sup>, 清水 荘雄<sup>3</sup>, 小金澤 智之<sup>4</sup>, Rosantha Kumara<sup>4</sup>, 仲谷 友孝<sup>4</sup>, 池田 理<sup>4</sup>,  
坂田 修身<sup>4</sup>, 山田 智明<sup>5,6</sup>, 舟窪 浩<sup>1</sup>

Tokyo Tech.<sup>1</sup>, Univ. Tokyo,<sup>2</sup> NIMS<sup>3</sup>, JASRI<sup>4</sup>, Nagoya Univ.<sup>5</sup>, MDX Tokyo Tech.<sup>6</sup> ○M. Nakahata<sup>1</sup>,  
K. Okamoto<sup>1</sup>, K. Ishihama<sup>2</sup>, T. Shimizu<sup>3</sup>, T. Koganezawa<sup>4</sup>, R. Kumara<sup>4</sup>, T. Nakatani<sup>4</sup>,  
O. Ikeda<sup>4</sup>, O. Sakata<sup>4</sup>, T. Yamada<sup>5,6</sup>, H. Funakubo<sup>1</sup> E-mail: nakahata.m.aa@m.titech.ac.jp

【緒言】 $\text{Pb}(\text{Zr}, \text{Ti})\text{O}_3$ (PZT)薄膜は圧電 MEMS 応用で広く使用されている<sup>[1]</sup>。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<sup>[2-3]</sup>。(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により複雑な挙動を示すと考えられるが、これまで結晶構造の詳細な解析は十分に検討されていない<sup>[4]</sup>。例えば、基板拘束のある膜においては、電界印加時に面外方向の格子収縮が確認されているが<sup>[5,6]</sup>、その機構は未だ不明である。本研究では、(100)/(001)配向した正方晶 PZT エピタキシャル膜の圧電応答を電界下 X 線回折(XRD)により評価した。電界印加下でのドメインの面外格子定数およびドメインの体積分率の変化の観察を行い、内因的・外因的圧電応答について周波数を変えて解析を行った。

【実験方法】パルスレーザー堆積法により膜厚 1400 nm の(100)/(001)配向した正方晶  $\text{Pb}(\text{Zr}_{0.4}\text{Ti}_{0.6})\text{O}_3$  エピタキシャル膜を(100)<sub>c</sub>SrRuO<sub>3</sub>//(100)Pt//(100)ZrO<sub>2</sub>//(100)Si 基板上に作製した。得られた PZT 膜上に直径 200  $\mu\text{m}$  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、DC および 10 kHz のパルス波を用いて電界印加中の XRD 測定を行い、電界印加中の面外および面内の格子定数の解析を含めた結晶構造評価を行った。

【結果と考察】膜厚 1400 nm の  $\text{Pb}(\text{Zr}_{0.4}\text{Ti}_{0.6})\text{O}_3$  膜について、印加電界による(001)配向ドメイン(c-ドメイン)および(100)配向ドメイン(a-ドメイン)の面外および面内格子定数の変化率を Figure1 に示す。面外方向の c-および a-ドメインの格子定数は共に電界印加中に収縮していることが確認できた。一方、面内方向の格子定数は電界印加中にすべて伸長していた。この膜では、電界印加時に a-ドメインから c-ドメインへのドメインスイッチングが観察され、スイッチングによって発生する膜全体の面内方向の歪みを、面内格子伸長によって緩和している可能性が示唆された。さらに、電界印加方向に分極軸をもつ c-ドメインの格子変形には、周波数依存性があることが明らかとなった。

【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。放射光実験は SPring-8 一般研究課題 2023B1892, 2024A1778 で行われました。

### 【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] T. Shimizu *et al.*, *ACS Appl. Mater. Interfaces* **13**, 57532 (2021).  
[4] E.P. Houwman, *et al.*, *Correlated Functional Oxides*, (Springer, Berlin 2017), p. 29.  
[5] Y. Ehara *et al.*, *Sci. Rep.* **7**, 9641 (2017). [6] Lyndsey M. Denis-Rotella *et al.*, *IEEE T-UFFC* **68**, NO. 2 (2021).

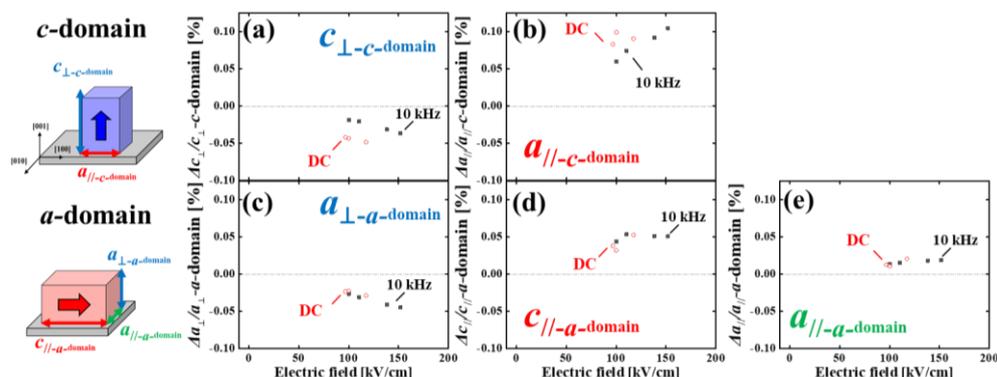


Fig. 1 Change in (a)out-of-plane lattice parameter of c-domain, (b)in-plane lattice parameters of c-domain, (c)out-of-plane lattice parameter of a-domain and (d)(e)in-plane lattice parameters of a-domain as a function of applied electric field with DC and 10 kHz pulse wave.