

一軸性圧力によって誘起される不均一な誘電状態のイメージング観察

[1] 要旨

強誘電体に一軸方向から圧力を加えると、その方向と格子の歪み量に応じて自発分極が誘起できることが知られている。さらに一軸性圧力が大きくなると転位の増大や移動によって、静水圧では到達不可能な大きな格子歪みを局所的に集中させることができる。しかし応力や格子歪みは結晶内で不均一に広がり、さらに転位の発生は試料依存性も大きいことが、実験上の大きな問題となっていた。本研究は、量子常誘電体 SrTiO_3 に一軸性圧力を加えながら複屈折量の二次元像を取得することで、局所的な格子の歪み量や強誘電状態の分布を評価することに成功した。

[2] 本文

強誘電体はコンデンサとして大きな電荷を蓄えることができる材料だけでなく、電場を用いた分極方向の制御による不揮発性メモリー(FeRAM)への応用や、(逆)圧電効果を利用した圧電素子やアクチュエータなどへも広く応用されている。バルク試料 SrTiO_3 では構造相転移温度(105 K)以下まで温度を下げると、強誘電性の発現が量子ゆらぎによって抑制されるため、量子常誘電性を示す。しかし一軸方向から圧力を加えると量子ゆらぎが弱まり、強誘電状態が発現することも古くから調べられてきた。一方、2000年以降、 SrTiO_3 の界面や表面において強誘電性が発現し、室温でも自発分極が出現すると多数報告されてきた。この原因は、界面における格子不整合によって SrTiO_3 の格子が局所的に歪むためとされている。バルク試料と界面や表面で出現する強誘電転移機構は必ずしも同じではないが、一軸性圧力下のバルク試料で発現する強誘電性が再び注目されている。

結晶に圧力(外力)を印可する方法として、静水圧(hydrostatic pressure)と一軸性圧力(uniaxial pressure)がある。静水圧の場合には、外力が結晶全体に均一に加わるため格子歪みも結晶内で一様に発生し、特定の方向にだけ格子を歪ませることは難しい。一方、一軸性圧力の場合には、特定の方向に外力を加えることによって格子歪みの方向が制御しやすくなり、さらに静水圧では到達不可能な大きな格子歪みも誘起できる。ところで一軸方向から外力を加えると、作用反作用の法則によって結晶内に内力が発生する。この内力のことを一般に応力(stress)と呼ぶため、一軸性圧力の事を(一軸)応力と呼ぶこともある。外力が小さい弾性域(elastic region)では、バネ運動と同様に応力と歪みとの間には線形性があるため、加えた外力の大きさから格子の歪み量が容易に推測できる。しかし外力が大きくなると転位(dislocation)が増え始め、応力が降伏点(yield point)を超え塑性域(plastic region)に入ると、その線形性が消失するため、加えた外力の情報は意味をなさなくなる。さらに転位の移動にともなって応力や歪みが局所的に集中するため、格子歪みが結晶内で不均一に分布する。このような不均一状態を定量評価するためには、新たな実験技術の開発が望まれていた。

最近、鹿児島大学大学院理工学研究科と鈴鹿工業高等専門学校の研究グループでは、複屈折イメージング技術を用いて、量子常誘電体 SrTiO_3 に外力を加えながら複屈折量の二次元像を 300~13 K の間で連続的に取得することに成功した。その結果、外力を加える方向によって、格子歪みの大きさだけでなく、歪みが集中する様子が全く異なる事が示された。また約 20 K において、応力誘起強誘電転移の観測にも成功した。この成果は JPSJ の 2022 年 8 月号に掲載された。

本研究では複屈折イメージング測定から位相差と、2つの偏光成分のうち屈折率が低い方向である速軸方位の二次元像を同時に取得しており、位相差からは格子の歪み量について、速軸方位からは格子が歪んでいる方向について考察している。(110)面を研磨したバルク試料 SrTiO_3 に[001]方向

から外力を加えた場合には垂直応力しか発生しないため、図 1(a)に示すように、試料が破断する直前の 231 MPa まで外力をかけても、ほぼ様な位相差像が得られた。図 1(b)には領域 A における位相差の温度依存性を示しており、構造相転移によって $T_c = 114.7$ K に、強誘電転移によって $T_F = 22.8$ K に、位相差の折れ曲がりが見られている。メッシュ状に試料の解析領域を分割した結果、[001]方向に外力を加えると、ほぼ様な強誘電状態が約 20 K 以下で実現していることが明らかにされた。

一方、[1-10]方向に外力を加えた場合には垂直応力だけでなく、せん断応力も発生する。図 1(c)と 1(d)には試料が破断する直前の 73 MPa まで外力を加えた時の結果を示すが、位相差像や速軸方位像に複数のすべり面が見られている。図 1(e)には構造相転移温度 (T_c) の二次元分布を示すが、 T_c 値が約 10% も分布していることが明らかにされた。図 1(c)で示す領域 E 近傍は T_c 値が高い領域であり、また速軸方位像から格子歪みが集中していることも分かることから、格子の歪み量の増大に比例して T_c 値が上昇することも明らかにされた。このように弾性域や塑性域を問わず、局所的な格子の歪み量を T_c 値から見積もる方法を確立したことによって、再現性の高い実験が可能となり、今後、一軸性圧力を用いた様々な物性研究が発展していくことを期待する。

この研究成果は、同グループがこれまでに開発してきた複屈折イメージング技術の利点を生かした成果である。統計学や AI を駆使してこのような膨大なイメージングデータから効率的にデータを採掘 (マイニング) する研究も同時に進んでいけば、図 1(c)や 1(d)に示すような複雑な結果から、新たな物性現象が見つかる可能性があり、今後の研究の発展も注目していきたい。

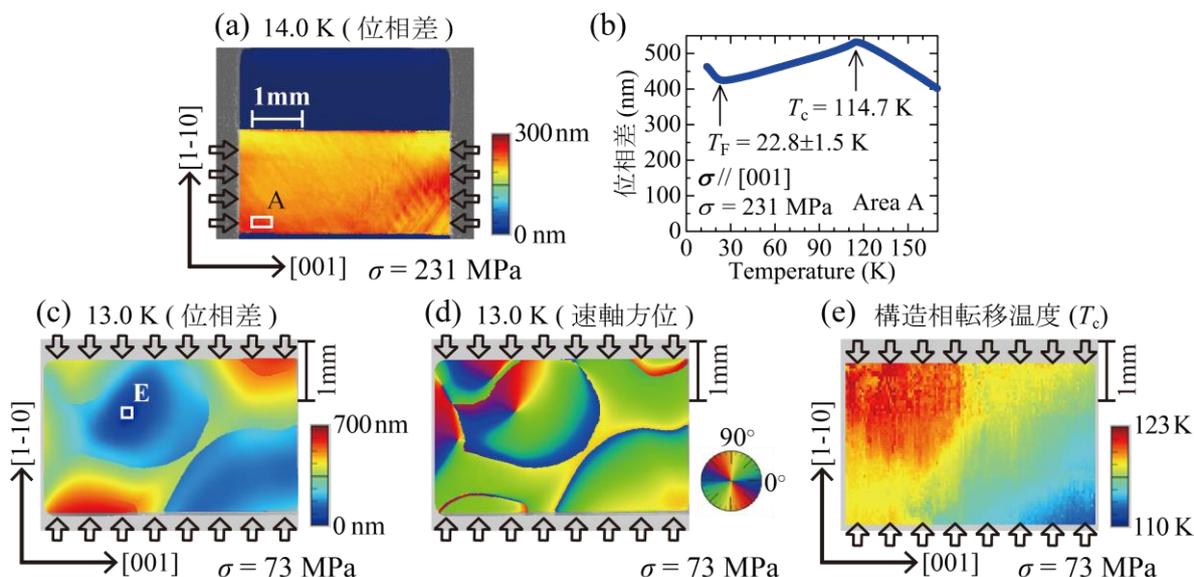


図 1. (a) SrTiO₃(110)の[001]方向に一軸性圧力を加えながら測定した位相差像。(b) 領域 A における位相差の温度依存性。[1-10]方向に一軸性圧力を加えながら測定した、(c) 位相差像と(d) 速軸方位像。(e) 構造相転移温度(T_c)の二次元分布。白抜きの大矢印は外力の方向を表す。

原論文 (2022 年 7 月 27 日公開済)

Microscopic Observation of Ferroelectric and Structural Phase Transitions in SrTiO₃ under Uniaxial Stress Using Birefringence Imaging Techniques

H. Manaka, K. Uetsubara, S. Korogi, and Y. Miura, J. Phys. Soc. Jpn. **91**, 084704 (2022).

<情報提供：真中 浩貴 (鹿児島大学大学院理工学研究科) >