

令和 2 年 5 月 17 日現在

機関番号：15401

研究種目：基盤研究(B) (一般)

研究期間：2017～2019

課題番号：17H02776

研究課題名(和文) 交流電場下での強誘電体の時分割構造解析による誘電緩和現象の動力学可視化

研究課題名(英文) Visualization of dielectric relaxation in ferroelectrics by time-resolved structural analysis under AC electric field

研究代表者

黒岩 芳弘 (Kuroiwa, Yoshihiro)

広島大学・理学研究科・教授

研究者番号：40225280

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 13,800,000円

研究成果の概要(和文)：ペロブスカイト型強誘電体に対して、AC電場を印加しながら時間分解X線結晶構造解析を行うことができる計測システムをアップグレードし、電場による原子変位と誘電物性を一対一対応させ、構造相転移や物性の発現機構を議論することのできる計測システムの構築を目指した。オフセンター配置した鉛等を含み、誘電緩和を示すリラクサー強誘電体等を中心に電場印加下での瞬間の結晶構造を調べ、非鉛圧電体へと研究を展開させた。また、関連するいくつかの強誘電体の構造物性についても研究を行った。

研究成果の学術的意義や社会的意義

申請者らが先導してきた時分割実験と精密構造解析の手法を進展させ、うまく融合させることができれば、卓抜した立場で誘電体の構造物性研究分野を牽引することができると考えた。また、このような構造解析の対象は誘電体に限らないので、外場応答する物質の相転移や準安定状態を電子論の立場から実空間で議論するという実験研究分野が開拓できると期待する。一方、圧電アクチュエータには、高い振動レベルで励振しても破砕や疲労の生じないハイパワー材料が求められている。動作している電子デバイス内部の材料の挙動を非破壊で構造評価できるようになれば、実用材料開発や故障解析の観点において、産業界への波及効果も高いと思われる。

研究成果の概要(英文)： We have upgraded the measurement system of time-resolved X-ray crystal structural analysis for perovskite-type ferroelectrics under applied AC electric field. The mechanisms on structural phase transitions and emergence of dielectric properties are discussed to establish one-to-one corresponding between atomic displacements by electric field and dielectric properties. We have succeeded in capturing the structural changes of relaxer ferroelectrics which contain off-centered lead ions and show dielectric relaxation. We also study the materials structure physics of lead-free piezoelectric materials and some related ferroelectrics.

研究分野：構造物性

キーワード：誘電体物性 ペロブスカイト X線回折 電場印加実験 時分割実験 結晶構造解析 放射光

様式 C-19、F-19-1、Z-19 (共通)

1. 研究開始当初の背景

我々の生活を支える電子部品の中には数多くの誘電体が使用されている。コンデンサ、圧電素子、各種センサなど、応用範囲は幅広い。一般に誘電体は電場（電圧）が印加された状態で使用される。しかし、常に一定の DC 電場が印加されるとは限らない。適当な周波数の AC 電場下で使用されることが多く、材料に電気伝導性がある場合や周波数が高い場合には、分極が電場の時間変化に追従できなくなり、誘電率が周波数依存する誘電緩和（誘電分散）という現象が起こる。誘電緩和のしくみは単純でない場合もある。しかし、もし、電場による瞬間の原子変位パターンが可視化できれば、誘電緩和機構の理解の深化につながると期待されてきた。

我々のグループは、放射光実験施設 SPring-8 において、電場印加下の単結晶時分割 X 線回折実験により、マイクロ秒の時間分解能で強誘電体の格子定数の時間変化を計測できるシステムを開発してきた (H23-25 基盤 B, 代表: 黒岩)。この実験技術により、ペロブスカイト型構造をもつ強誘電体チタン酸バリウム BaTiO_3 (正方晶) に対して、分極を反転させる方向に急激に電場を印加した時、単位格子がバネのように伸縮を繰り返しながら一定のサイズに収束するという圧電による減衰振動の様子をアニメーションのように可視化することに初めて成功した (Jpn. J. Appl. Phys. **50** (2011) 09NE05)。このとき、圧電振動の一瞬に BaTiO_3 が通常ではありえない巨大な正方晶歪み (c/a 比) をもつことも同時に発見した。この成果は大変注目され、2012 年度の応用物理学学会優秀論文賞を受賞した。現在、この計測システムはアップグレードされ、50 ピコ秒の時間分解能で原子位置まで構造解析できるように改良された (H26-28 基盤 B, 代表: 黒岩)。あらためて BaTiO_3 のより精密な時分割 X 線回折データを再測定し、原子変位パターンの時間変化を構造解析したところ、一瞬にだけ現われる不安定な巨大正方晶歪みは分極方向のチタンイオンと酸素イオンの電子雲同士の反発により、酸素イオンがはじき飛ばされた結果生じたことが分かった。

一方、申請者らは強誘電体の電子状態を立脚点とする構造物性論の展開を目指して、SPring-8 で強誘電体酸化物固溶体の局所構造や不規則構造を反映した電子密度分布の異方性を可視化する研究も行ってきた (H26-27 挑戦的萌芽, 代表: 黒岩)。図 1 は、強誘電体 BaTiO_3 と BiFeO_3 の固溶体のペロブスカイト型擬立方晶構造の電子密度分布である。従来、A サイトには Ba イオンと Bi イオンが、B サイトには Ti イオンと Fe イオンがモル比の確率でそれぞれが単純に占有すると期待されていた。図 1 から、B サイトとは対照的に、A サイトの電子密度分布は球状ではなく、 $\langle 100 \rangle$ 方向に角の出た異方的な分布をしていることがわかる。これは、Ba イオンが A サイトにオンセンター配置する一方、Bi イオンは $\langle 100 \rangle$ 方向に約 0.5 \AA オフセンターした等価な 6 サイトにランダムに配置するために生じた電子密度分布の異方性に起因する。

このような、A サイトイオンのオフセンター配置は、 $(\text{Bi,Na})\text{TiO}_3$ (Jpn. J. Appl. Phys. **53** (2014) 09PD02) や $(\text{Ba,Gd})(\text{Ti,Mg})\text{O}_3$ (Jpn. J. Appl. Phys. **55** (2016) 10TC08) などでも見出している。これら時分割計測と電子密度研究の 2 つの成果により、2012 年開催の強誘電体応用国際シンポジウム (ISAF) や 2016 年開催の日中強誘電体応用会議 (JCFMA) で基調講演を行った。そこで、2 つの計測技術を融合することによる未踏の可視化研究分野の開拓が話題になり、我々のもつ構造解析技術の今後の展開に大きな期待が寄せられたことが、本研究の着想につながった。

誘電体の電場印加下での時分割 X 線回折実験については、薄膜材料に対する格子歪みの測定が多い。バルク材料に関する時分割実験の研究例は極めて少なく、格子歪みの解析がほとんどである。DC 電場下で原子位置を構造解析することも容易ではないことに加え、AC 電場下で誘電体材料の原子変位を時分割構造解析できる技術を発展させることは大変意義深いと考えた。

2. 研究の目的

主としてペロブスカイト型強誘電体に対して、交流電場下で、分極が電場の時間変化に対応できなくなり誘電緩和状態にある瞬間の原子配置を時間分解 X 線結晶構造解析で明らかにし、動的誘電物性の発現機構を電場による原子変位の動力学から議論する研究基盤を確立することが本研究の目的である。適当な DC バイアス電場印加下で AC 電場を印加しながら時分割構造解析を行うことができる計測システムを構築し、電場-温度相図を意識しながら、電場による原子変位と誘電物性を一対一対応させ、相転移や物性の発現機構を議論することを目指した。

対象として、特に、低周波領域で特徴的な誘電緩和を示すことが知られている $\text{Pb}(\text{Mg}_{1/3}\text{Nb}_{2/3})\text{O}_3$ (PMN) のようなリラクサーと呼ばれる物質系に注目した。PMN では、鉛イオンが単位格子の角 (A サイト) のまわりでオフセンター配置しており、このイオンの挙動が誘電物性に大きく係わることが指摘されている。本研究では、このようなオフセンター配置した鉛やビスマス等を含む誘電体について、鉛を含むリラクサー等強誘電体から実験を開始し、非鉛圧電体へと研究を展開することとした。また、関連するいくつかの強誘電体の構造物性についても研究を行った。

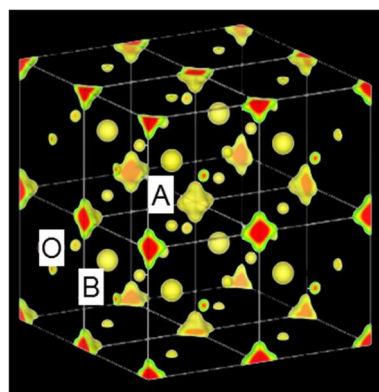


図 1. $0.7\text{BaTiO}_3\text{-}0.3\text{BiFeO}_3$ 固溶体の電子密度分布 (Appl. Phys. Lett. **103** (2013) 121907)。

3. 研究の方法

本研究では、研究代表者の黒岩（広島大学）と研究分担者の大沢（JASRI/SPring-8）および和田（山梨大学）が、お互いの得意分野で協力し、研究を推進した。黒岩は強誘電体の放射光構造物性研究の専門家であり、SPring-8 から単結晶構造解析ビームラインの利用者指定重点研究課題のパートナーユーザーに指定されてきた。大沢は時分割計測が得意分野であり、オリジナルの X 線チョッパーを改良しながら、数々の時分割実験に対応してきた。和田は強誘電体・圧電体材料合成の専門家であり、誘電特性や圧電特性の評価にも詳しい。

中心となる実験は、SPring-8 において、放射光を用いた X 線回折実験により行われた。SPring-8 での本実験に備えて、単結晶試料を加工し電極などを取り付ける環境や実験室の X 線回折装置で予備実験する環境を本研究の研究費で整備した。電場印加下での構造解析や時間分解 X 線結晶構造解析の実験は、単結晶構造解析ビームライン BL02B1 で行われた。AC 電場下でも十分な仕事率で電場印加するための大容量電源の導入や本研究の時分割実験に最適な X 線チョッパーの高度化は本研究の研究費により行われた。電子密度分布可視化の実験は、粉末構造解析ビームライン BL02B2 で行われ、BL02B1 での単結晶実験の実験結果と相補的に議論された。

4. 研究成果

数多くの研究成果が得られ、論文業績として公表した。また、現在投稿中の成果や投稿準備中のものもある。それらの成果により国内の学会や国際会議で招待講演等を行った。ここでは、いくつかの成果について紹介する。

(1) 時間分解 X 線結晶構造解析用 X 線チョッパーの高度化

リラクサー強誘電体に対する電場印加下での時間分解 X 線結晶構造解析を実現するために、X 線照射の繰り返しレートを最適化した X 線チョッパーを新たに設計し、SPring-8 の BL02B1 単結晶構造解析ビームラインに導入した。

図 2 に時分割システムの概略図を示す。SPring-8 のリング内を 208kHz で周回する H-mode 運転時におけるシングルバンチからの放射光パルス（時間分解能 50 ピコ秒）を X 線チョッパーで切り出し、AC 電場印加のタイミングに合わせて照射するシステムの構築に成功した。従来の X 線チョッパーは、放射光パルスを最高 52kHz の繰り返しレートでしか切り出せなかった。新しく設計した X 線チョッパーでは、最高 69.6kHz の繰り返しレートで X 線を切り出せる上に、X 線チョッパーディスクを換装することなく他に 38.8kHz と 2.6kHz の繰り返しレートを選択できる。高エネルギー X 線対応のチタン製チョッパーディスクを開発したことにより、早い緩和過程から非常に遅い緩和過程まで効率よく実験できるようになった。X 線チョッパーについては、国際誌に論文公表され、学会誌に解説記事が掲載された。

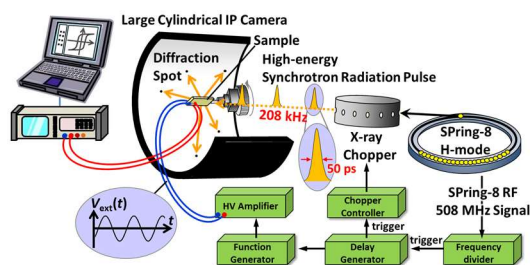


図 2. SPring-8 での電場印加下時間分解 X 線結晶構造解析実験の概念図。

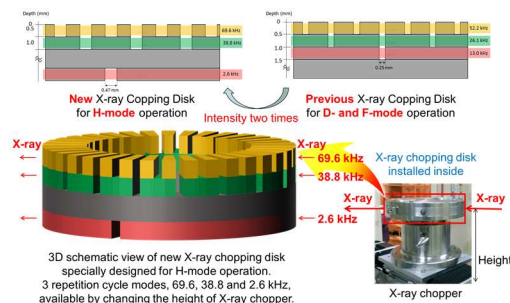


図 3. X 線チョッパーディスクの概略図。

(2) リラクサー強誘電体の電場印加下時分割 X 線構造解析

ペロブスカイト型酸化物 $\text{Pb}(\text{Mg}_{1/3}\text{Nb}_{2/3})\text{O}_3$ (PMN) と PbTiO_3 (PT) の固溶体であるリラクサー強誘電体 PMN-xPT に対して放射光単結晶回折実験を行い、DC 電場を印加したときの電場誘起構造相転移と AC 電場を印加したときの格子歪みと原子配置の周波数依存を調べた。実験では、PMN-30%PT の c 板単結晶の両面に金電極を付けた試料を作成した。SPring-8 のビームライン BL02B1 で電場印加下での結晶構造を様々な温度でその場観察した。温度変化には、窒素ガス吹き付け装置を用いた。

測定はポンプ-プローブ法で行った。放射光を使ったとしても、1 パルスの X 線による回折強度は非常に弱い。そこで、図 4 に示すように、AC 電場印加のタイミングに合わせて、構造解析できる統計精度まで何度も放射光パルスを照射して強度積算した。放射光パルスを照射するタイミングを Δt だけずらして同じ計測を繰り返すと、構造の時間変化を測定できる。繰り返し周波数や時間分解能にもよるが、数 10 分から数時間程度で一つの Δt に対して構造解析用データセットが得られた。図 4 のように、電場 0 のタイミングで A サイトの鉛イオンにオフセンター構造が観測されるとする。電場最大のタイミングで電場方向にイオン変位の偏りが生じる一方、

周波数を高くしていくと鉛イオンの変位が電場に追従しなくなることを予想した. PMN-30%PT の場合, 電場 0 では A サイトの鉛イオンが $\langle 110 \rangle$ 方向の 12 サイトにオフセンターしていることを見出した. AC 電場の周波数を高くしていくと予想通りにイオン変位の偏りが小さくなり, 最終的に電場最大のタイミングでも格子歪の変化を観測することができなくなった.

一方, PMN-30%PT 単結晶の立方晶相において電場誘起相転移しない温度-電場領域で DC 電場を印加したときの原子変位パターンが, 陽イオンと陰イオンが反対方向に変位する Slater 型の変位モードではなく, B サイトイオンと酸素イオンが同じ方向に変位する Last モード型になることを見出した. これは, BaTiO₃ の場合, 単純な Slater 型になることと対照的である. その起源を明らかにするために PMN-30%PT の立方晶相の電子密度分布を解析した. その結果, PMN-30%PT の場合, 電場印加しない状態でも鉛-酸素間に共有結合が形成されていることを見出した. この共有結合により電場印加下で酸素八面体全体が鉛方向にシフトし, Last モード型の原子変位パターンが実現すると考えられる.

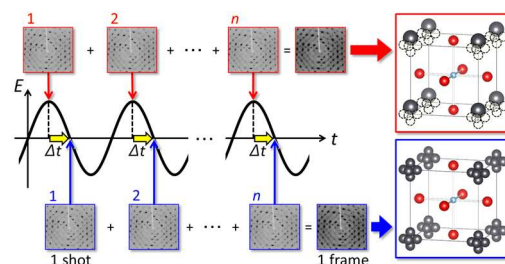


図 4. ポンプ-プローブ法での時分割実験の概念図.

(3) 非調和熱振動解析によるペロブスカイト型酸化物の構造相転移

化学式が ABO_3 と書けるペロブスカイト型強誘電体の構造相転移の多くは, 立方晶構造をプロトタイプ構造と考えたとき, 個々の物質に固有のソフトフォノンの凍結による対称性の低下として理解されてきた. すなわち変位型の相転移によるものと理解されてきた. $Pb(Mg_{1/3}Nb_{2/3})O_3$ (PMN) と BaTiO₃ (BT) はともに $[111]$ 方向に分極をもつ菱面体晶構造を最低温秩序相にもつ強誘電体であり, これらの物質の立方晶相の構造ゆらぎの特徴から相転移の機構を議論するために, 各イオンの非調和熱振動を解析し, 確率密度分布を可視化した.

PMN では, B サイトイオンの確率密度は単位格子の体心位置で最大になる一方, A サイトの鉛イオンの確率密度はコーナー位置から $\langle 111 \rangle$ 方向に約 0.22 Å 離れた位置で最大になることを見出した. この方向と大きさは菱面体晶構造の鉛イオンの自発変位量とよく一致した. 一方, BT では, A サイトのバリウムイオンの確率密度はコーナー位置で最大になるが, B サイトのチタンイオンの確率密度は $\langle 111 \rangle$ 方向に約 0.1 Å 離れた位置で最大になることを見出した. この方向と大きさも BT の菱面体晶構造のチタンイオンの自発変位量とよく一致した. PMN では A サイト原子, BT では B サイト原子が特異な熱ゆらぎを示すのは, 物質を構成する原子のイオン半径の関係によるものであり, PMN では A サイト, BT では B サイトまわりに空間のゆとりがあるためである. 確率密度分布に極大がみられたことは, これらの物質の相転移は従来の変位型相転移として単純に記述できるものではなく, 秩序-無秩序型相転移の様相も合わせもつことを意味し, 相転移機構について直接証拠を示すことができた.

(4) 擬立方晶構造をもつ非鉛強誘電体の巨大圧電効果発現機構の解明

立方晶系に帰属する点群の中に極性点群はない. したがって, 立方晶の物質に強誘電性は期待できない. しかし, 我々のグループでは, 一見して立方晶に見える非鉛系セラミックス $0.3BaTiO_3-0.1Bi(Mg_{1/2}Ti_{1/2})O_3-0.6BiFeO_3$ (BT-BMT-BF) が強誘電性を示し, PZT に匹敵する圧電特性を示すことを見出していた (図 5). この物質では, 電場誘起相転移はせずに, セラミックスグレインに如何なる方向から電場印加しても結晶格子が同じ程度大きく伸びる. 新奇的な機構で強誘電性が発現していることは明らかで, 電場印加下での構造変化が優れた圧電特性を示す起源と予想した. 粉末試料に対する電子密度解析およびセラミックス試料に対する電場印加下での回折強度の変化から電場印加下での結晶構造をシミュレーションした結果, A サイトのビスマスイオンのオフセンターの挙動が電場印加下で大きく変化し, ビスマスイオンが部分秩序することが巨大圧電効果の起源であると予想した. この成果に関して現在論文投稿中である.

今後, 単結晶試料を育成し, DC 電場印加下での結晶構造解析および AC 電場印加下での時分割構造解析により, この予想を確認することが課題と考えている.

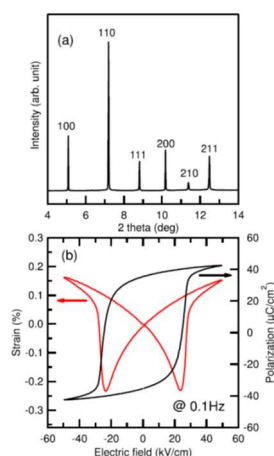


図 5. 擬立方晶構造をもつ BT-BMT-BF の X 線回折パターンと S-E, P-E ヒステリシス曲線 (Appl. Phys. Lett. **108** (2016) 172903).

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計14件（うち査読付論文 13件／うち国際共著 2件／うちオープンアクセス 2件）

1. 著者名 I. Fujii, S. Ariizumi, S. Ueno, C. Moriyoshi, Y. Kuroiwa and S. Wada	4. 巻 44
2. 論文標題 Fabrication and Piezoelectric Properties of BaTi03/BaTi03-Bi(Mg1/2Ti1/2)03-BiFe03 Composites	5. 発行年 2018年
3. 雑誌名 Ceram. Int.	6. 最初と最後の頁 10657-10662
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1016/j.ceramint.2018.03.094	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -
1. 著者名 A. Singh, C. Moriyoshi, Y. Kuroiwa and D. Pandey	4. 巻 123
2. 論文標題 Anomalous Atomic Displacement Parameters and Local Dynamics in the Curie Range of a Pb-free Relaxor Ferroelectric System (Bi1-xBax)(Fe1-xTix)03 (0.36 < x < 0.50)	5. 発行年 2018年
3. 雑誌名 J. Appl. Phys.	6. 最初と最後の頁 164103
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1063/1.5023726	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 該当する
1. 著者名 S. Kim, G. P. Khanal, H.-W. Nam, M. Kim, I. Fujii, S. Ueno, C. Moriyoshi, Y. Kuroiwa and S. Wada	4. 巻 126
2. 論文標題 In-situ Electric Field Induced Lattice Strain Response Observation in BiFe03-BaTi03 Lead-free Piezoelectric Ceramics	5. 発行年 2018年
3. 雑誌名 J. Ceram. Soc. Jpn.	6. 最初と最後の頁 316-320
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.2109/jcersj2.17259	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスとしている（また、その予定である）	国際共著 -
1. 著者名 Z.-G. Zhang, T. Abe, C. Moriyoshi, H. Tanaka and Y. Kuroiwa	4. 巻 11
2. 論文標題 Synchrotron-Radiation X-ray Diffraction Evidence of the Emergence of Ferroelectricity in LiTaO3 by Ordering of a Disordered Li Ion in the Polar Direction	5. 発行年 2018年
3. 雑誌名 Appl. Phys. Express	6. 最初と最後の頁 71501
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.7567/APEX.11.071501	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 Z.-G. Zhang, T. Abe, C. Moriyoshi, H. Tanaka and Y. Kuroiwa	4. 巻 57
2. 論文標題 Study of Materials Structure Physics of Isomorphic LiNbO3 and LiTaO3 Ferroelectrics by Synchrotron Radiation X-ray Diffraction	5. 発行年 2018年
3. 雑誌名 Jpn. J. Appl. Phys.	6. 最初と最後の頁 11UB04
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.7567/JJAP.57.11UB04	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 S. Aoyagi, H. Osawa, K. Sugimoto, Y. Nakahira, C. Moriyoshi, Y. Kuroiwa, H. Takeda and T. Tsurumi	4. 巻 57
2. 論文標題 Time-resolved Structure Analysis of Piezoelectric Crystals by X-ray Diffraction under Alternating Electric Field	5. 発行年 2018年
3. 雑誌名 Jpn. J. Appl. Phys.	6. 最初と最後の頁 11UB06
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.7567/JJAP.57.11UB06	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 Kim Sangwook, Khanal Gopal Prasad, Ueno Shintaro, Moriyoshi Chikako, Kuroiwa Yoshihiro, Wada Satoshi	4. 巻 122
2. 論文標題 Revealing the role of heat treatment in enhancement of electrical properties of lead-free piezoelectric ceramics	5. 発行年 2017年
3. 雑誌名 Journal of Applied Physics	6. 最初と最後の頁 14103
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1063/1.4991492	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 Takeda Shoichi, Zhang Zhi-Gang, Moriyoshi Chikako, Kuroiwa Yoshihiro, Honda Atsushi, Inoue Noriyuki, Higai Shin'ichi, Ando Akira	4. 巻 56
2. 論文標題 Structure fluctuation in Gd- and Mg-substituted BaTiO3 with cubic structure	5. 発行年 2017年
3. 雑誌名 Japanese Journal of Applied Physics	6. 最初と最後の頁 10PB10
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.7567/JJAP.56.10PB10	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 Kim Sangwook, Khanal Gopal Prasad, Nam Hyun-Wook, Fujii Ichiro, Ueno Shintaro, Moriyoshi Chikako, Kuroiwa Yoshihiro, Wada Satoshi	4. 巻 122
2. 論文標題 Structural and electrical characteristics of potential candidate lead-free BiFeO ₃ -BaTiO ₃ piezoelectric ceramics	5. 発行年 2017年
3. 雑誌名 Journal of Applied Physics	6. 最初と最後の頁 164105
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1063/1.4999375	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 Osawa Hitoshi, Kudo Togo, Kimura Shigeru	4. 巻 56
2. 論文標題 Development of high-repetition-rate X-ray chopper system for time-resolved measurements with synchrotron radiation	5. 発行年 2017年
3. 雑誌名 Japanese Journal of Applied Physics	6. 最初と最後の頁 48001
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.7567/JJAP.56.048001	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスとしている(また、その予定である)	国際共著 -

1. 著者名 大沢仁志, 工藤統吾, 木村 滋	4. 巻 31
2. 論文標題 高繰り返しX線チョッパーの開発	5. 発行年 2018年
3. 雑誌名 放射光	6. 最初と最後の頁 32~36
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) なし	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 Noda Shota, Yokoi Yuto, Nakahira Yuki, Abe Tomohiro, Fujii Ichiro, Wada Takahiro, Moriyoshi Chikako, Kuroiwa Yoshihiro	4. 巻 58
2. 論文標題 Structural fluctuation of Pb(Mg _{1/3} Nb _{2/3})O ₃ in the cubic phase	5. 発行年 2019年
3. 雑誌名 Japanese Journal of Applied Physics	6. 最初と最後の頁 SLLA06
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.7567/1347-4065/ab389e	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 Aoyagi Shinobu, Aoyagi Ayumi, Osawa Hitoshi, Sugimoto Kunihisa, Nakahira Yuki, Moriyoshi Chikako, Kuroiwa Yoshihiro, Iwata Makoto	4. 巻 101
2. 論文標題 Rotational intersite displacement of disordered lead atoms in a relaxor ferroelectric during piezoelectric lattice straining and ferroelectric domain switching	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 Physical Review B	6. 最初と最後の頁 64104
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1103/PhysRevB.101.064104	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 B. Iversen, J. Overgaard, Y. Kuroiwa and E. Nishibori	4. 巻 25
2. 論文標題 Application of Synchrotron Radiation in Materials Crystallography	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 SPRing-8/SACLA利用者情報誌	6. 最初と最後の頁 96~102
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) なし	査読の有無 無
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 該当する

〔学会発表〕 計50件 (うち招待講演 15件 / うち国際学会 22件)

1. 発表者名 S. Aoyagi, H. Osawa, K. Sugimoto, Y. Nakahira, C. Moriyoshi, Y. Kuroiwa, H. Takeda and T. Tsurumi
2. 発表標題 Time-resolved Structure Analysis of Piezoelectric Crystals by X-ray Diffraction under Alternating Electric Field
3. 学会等名 2018 IEEE International Symposium on Applications of Ferroelectrics (国際学会)
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 Z.-G. Zhang, C. Moriyoshi, H. Tanaka and Y. Kuroiwa
2. 発表標題 Electron Charge Density Studies on Isomorphic LiNbO3 and LiTaO3
3. 学会等名 2018 IEEE International Symposium on Applications of Ferroelectrics (国際学会)
4. 発表年 2018年

1 . 発表者名 S. Kim, G. P. Khanal, N.-W. Nam, I. Fujii, S. Ueno, C. Moriyoshi, Y. Kuroiwa and S. Wada
2 . 発表標題 Coherence between Material Softening and Crystallographic Structural Parameter in BiFeO ₃ -BaTiO ₃ Lead-Free Piezoelectric Ceramics
3 . 学会等名 2018 IEEE International Symposium on Applications of Ferroelectrics (国際学会)
4 . 発表年 2018年

1 . 発表者名 T. Abe, Z.-G. Zhang, C. Moriyoshi, Y. Kuroiwa and H. Tanaka
2 . 発表標題 Electron Density Study on BiFeO ₃ -type Oxides using Synchrotron Radiation X-ray Diffraction
3 . 学会等名 The 12th Japan-Korea Conference on Ferroelectrics (国際学会)
4 . 発表年 2018年

1 . 発表者名 Y. Yokoi, Y. Nakahira, S. Noda, C. Moriyoshi and Y. Kuroiwa
2 . 発表標題 Electric Field Induced Phase Transition of PMN-PT by Single Crystal Synchrotron Radiation X-ray Diffraction
3 . 学会等名 The 12th Japan-Korea Conference on Ferroelectrics (国際学会)
4 . 発表年 2018年

1 . 発表者名 S. Noda, C. Moriyoshi, Y. Kuroiwa, I. Fujii and T. Wada
2 . 発表標題 Anharmonic Thermal Vibration in Relaxor Ferroelectric Pb(Mg _{1/3} Nb _{2/3})O ₃ by High Energy Synchrotron Radiation X-ray Diffraction
3 . 学会等名 The 12th Japan-Korea Conference on Ferroelectrics (国際学会)
4 . 発表年 2018年

1. 発表者名 S. Aoyagi, H. Osawa, K. Sugimoto, Y. Nakahira, C. Moriyoshi, Y. Kuroiwa, H. Takeda and T. Tsurumi
2. 発表標題 Transient Crystal Structure of Piezoelectric Oscillators Vibrating under Alternating Electric Field
3. 学会等名 The 12th Japan-Korea Conference on Ferroelectrics (国際学会)
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 Y. Kuroiwa
2. 発表標題 Ferroelectric Phase Transitions in LiNbO ₃ Family Crystals Studied by Synchrotron Radiation X-ray Diffraction
3. 学会等名 The 10th Japan-China Symposium on Ferroelectric Materials and their Applications (招待講演) (国際学会)
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 黒岩芳弘
2. 発表標題 誘電体の温故知新 - 構造解析と新材料開発 -, 終わりに
3. 学会等名 日本物理学会2018年秋季大会 (招待講演)
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 青柳忍, 大沢仁志, 杉本邦久, 中平夕貴, 森吉千佳子, 黒岩芳弘, 武田博明, 鶴見敬章
2. 発表標題 交流電場下時分割 X 線回折による共振している圧電結晶の過渡構造解析
3. 学会等名 日本結晶学会 2018年度年会
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 S. Kim, I. Fujii, S. Ueno, C. Moriyoshi, Y. Kuroiwa and S. Wada
2. 発表標題 Origin of Material Softening in Bi-based Lead-free Piezoelectric Ceramics
3. 学会等名 第38回エレクトロセラミックス研究討論会
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 黒岩芳弘
2. 発表標題 放射光X線回折による誘電体材料の構造評価技術の進展
3. 学会等名 日本材料科学会関西・中国支部第1 回支部講演会（招待講演）
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 横井優人, 野田翔太, 中平夕貴, 森吉千佳子, 黒岩芳弘
2. 発表標題 PMN-PTの電場誘起構造の放射光単結晶構造解析
3. 学会等名 第57回セラミックス基礎科学討論会
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 野田翔太, 横井優人, 森吉千佳子, 黒岩芳弘, 藤井一郎, 和田隆博
2. 発表標題 Pb(Mg _{1/3} Nb _{2/3})O ₃ -PbTiO ₃ 固溶体の立方晶相にみられる鉛イオンオフセンター
3. 学会等名 日本物理学会第74回年次大会
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 Y. Kuroiwa
2. 発表標題 Materials Structure Physics of Perovskite-type Ferroelectrics
3. 学会等名 Seminar in College of Chemistry, Chemical Engineering and Materials Science, Soochow University, China (招待講演) (国際学会)
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 B. Iversen, J. Overgaard, Y. Kuroiwa and E. Nishibori
2. 発表標題 Activities at BL02B1 in PU project 0078
3. 学会等名 SPring-8シンポジウム2018
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 Y. Kuroiwa
2. 発表標題 Visualization of Chemical Bonding in Functional Ferroelectrics and Their Solid Solutions by SXRD
3. 学会等名 12th Pacific Rim Conference on Ceramic and Glass Technology (PACRIM 12) (招待講演) (国際学会)
4. 発表年 2017年

1. 発表者名 S. Kim, G. P. Khanal, C. Moriyoshi, Y. Kuroiwa and S. Wada
2. 発表標題 In-situ Electric Filed Induced Lattice Strain Observation and Crystallographic Structures of BiFeO ₃ -BaTiO ₃ Lead-free Ceramics
3. 学会等名 12th Pacific Rim Conference on Ceramic and Glass Technology (PACRIM 12) (国際学会)
4. 発表年 2017年

1 . 発表者名 Y. Kuroiwa
2 . 発表標題 Synchrotron Radiation Evidence on Off-centered Lone-pair Cations Revealed in Cubic Structure of Perovskite-type Oxides
3 . 学会等名 The 9th China-Japan Symposium on Ferroelectric Materials and their Applications (招待講演) (国際学会)
4 . 発表年 2017年

1 . 発表者名 Q. Zhao, T. Abe, C. Moriyoshi, Y. Kuroiwa and H. Sun
2 . 発表標題 Electronic Charge Order in Double Perovskite BaBiO ₃ Visualized by Synchrotron Radiation Powder Diffraction
3 . 学会等名 The 9th China-Japan Symposium on Ferroelectric Materials and their Applications (国際学会)
4 . 発表年 2017年

1 . 発表者名 T. Abe, C. Moriyoshi and Y. Kuroiwa
2 . 発表標題 Valence Electron Density Analysis of Perovskite-Type Ferroelectric PbTiO ₃ and BaTiO ₃ by SXRD
3 . 学会等名 2017 Korean-Japanese Student Workshop (Pusan National University - Hiroshima University) (国際学会)
4 . 発表年 2017年

1 . 発表者名 S. Noda, C. Moriyoshi and Y. Kuroiwa
2 . 発表標題 Crystal Structural Change of Pb(Mg _{1/3} Nb _{2/3})O ₃ Associated with Ferroelectric Phase Transition by Synchrotron Radiation X-ray Diffraction
3 . 学会等名 2017 Korean-Japanese Student Workshop (Pusan National University - Hiroshima University) (国際学会)
4 . 発表年 2017年

1. 発表者名 I. Fujii, T. Aizawa, S. Ueno, N. Kumada, C. Moriyoshi, Y. Kuroiwa and S. Wada
2. 発表標題 Piezoelectric properties and electric-field-induced lattice deformation of Bi(Mg _{1/2} Ti _{1/2})O ₃ -modified BaTiO ₃ -BiFeO ₃ ceramics
3. 学会等名 JSPM International Conference on Powder and Powder Metallurgy (国際学会)
4. 発表年 2017年

1. 発表者名 竹田翔一, 森吉千佳子, 黒岩芳弘, 本多淳史, 井上徳之, 檜貝信一, 安藤陽
2. 発表標題 相転移が抑制されたチタン酸バリウム系固溶体(Ba _{0.8} Gd _{0.2})(Ti _{0.9} Mg _{0.1})O ₃ の構造ゆらぎの特徴
3. 学会等名 第34回強誘電体応用会議(FMA-34)
4. 発表年 2017年

1. 発表者名 安部友啓, 水流大地, 森吉千佳子, 黒岩芳弘, 田中宏志
2. 発表標題 ペロブスカイト型ランタノイド酸化物の放射光精密構造解析
3. 学会等名 日本物理学会2017年秋季大会
4. 発表年 2017年

1. 発表者名 青柳忍, 青柳鮎美, 大沢仁志, 杉本邦久, 中平夕貴, 森吉千佳子, 黒岩芳弘, 岩田真
2. 発表標題 Pb(Zn _{1/3} Nb _{2/3})O ₃ -PbTiO ₃ の交流電場下時分割結晶構造解析
3. 学会等名 日本物理学会2017年秋季大会
4. 発表年 2017年

1. 発表者名 田畑里歩, 北中佑樹, 野口祐二, 宮山勝, 中平夕貴, 森吉千佳子, 黒岩芳弘
2. 発表標題 Li置換AgNbO ₃ 単結晶の分極特性および電場誘起相転移
3. 学会等名 日本セラミックス協会第30回秋季シンポジウム
4. 発表年 2017年

1. 発表者名 黒岩芳弘
2. 発表標題 放射光X線回折による強誘電体の静的・時分割構造物性研究の進展
3. 学会等名 第33回 分析電子顕微鏡討論会 (招待講演)
4. 発表年 2017年

1. 発表者名 黒岩芳弘
2. 発表標題 放射光X線回折による構造可視化の現状と展望
3. 学会等名 第37回エレクトロセラミックス研究討論会 (招待講演)
4. 発表年 2017年

1. 発表者名 安部友啓, 森吉千佳子, 黒岩芳弘, 田中宏志
2. 発表標題 ペロブスカイト型ランタノイド酸化物の精密電子密度解析
3. 学会等名 第31回日本放射光学会年会
4. 発表年 2017年

1. 発表者名 青柳忍, 青柳鮎美, 大沢仁志, 杉本邦久, 中平夕貴, 森吉千佳子, 黒岩芳弘, 岩田真
2. 発表標題 Pb(Zn _{1/3} Nb _{2/3})O ₃ -PbTiO ₃ の分極反転に伴う構造ダイナミクスの計測
3. 学会等名 日本物理学会第73回年次大会
4. 発表年 2017年

1. 発表者名 黒岩芳弘
2. 発表標題 電子密度解析で観るペロブスカイト型酸化物の局所構造
3. 学会等名 豊田理化学研究所特定課題研究研究会 (招待講演)
4. 発表年 2017年

1. 発表者名 黒岩芳弘, 木村滋
2. 発表標題 構造物性研究会: 最近の研究成果の紹介
3. 学会等名 SPring-8シンポジウム2017
4. 発表年 2017年

1. 発表者名 B. Iversen, J. Overgaard, Y. Kuroiwa and E. Nishibori
2. 発表標題 Activities at BL02B1 in PU project 0078
3. 学会等名 SPring-8シンポジウム2017
4. 発表年 2017年

1 . 発表者名 S. Kim, I. Fujii, S. Ueno, C. Moriyoshi, Y. Kuroiwa and S. Wada
2 . 発表標題 Role of Bi ion off-centering in Bi-based lead-free piezoelectric ceramics
3 . 学会等名 2019 IEEE International Symposium on Applications of Ferroelectrics (ISAF) (国際学会)
4 . 発表年 2019年

1 . 発表者名 Y. Kuroiwa
2 . 発表標題 Synchrotron Radiation Structural study of Ferroelectric Thick Films Fabricated by Aerosol Deposition Method
3 . 学会等名 The 11th China and Japan Symposium on Ferroelectric Materials and Their Applications (CJFMA11) (招待講演) (国際学会)
4 . 発表年 2019年

1 . 発表者名 L. Wu T. Abe C. Moriyoshi Y. Kuroiwa M. Suzuki R. Aoyagi and J. Akedo
2 . 発表標題 Structural Characteristics of PbTiO ₃ Aerosol Deposition Films Evaluated by Synchrotron Radiation X-ray Diffraction
3 . 学会等名 The 11th China and Japan Symposium on Ferroelectric Materials and Their Applications (CJFMA11) (国際学会)
4 . 発表年 2019年

1 . 発表者名 Q. Zhao T. Abe C. Moriyoshi A. Taguchi H. Moriwake H.-T. Sun and Y. Kuroiwa
2 . 発表標題 Charge Order of Bi Ions and Chemical Bonding in Double Perovskite BaBiO ₃ visualized by Synchrotron Radiation X-ray Diffraction
3 . 学会等名 The 11th China and Japan Symposium on Ferroelectric Materials and Their Applications (CJFMA11) (国際学会)
4 . 発表年 2019年

1. 発表者名 T. Abe, L. Wu, C. Moriyoshi, Y. Kuroiwa, M. Suzuki, R. Aoyagi and J. Akedo
2. 発表標題 Structural Characteristics of Ferroelectric PbTiO ₃ AD Films by Synchrotron Radiation X-ray Diffraction
3. 学会等名 The 13th Pacific Rim Conference of Ceramic Societies (PACRIM13) (国際学会)
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 T. Abe, L. Wu, C. Moriyoshi, Y. Kuroiwa, M. Suzuki, R. Aoyagi and J. Akedo
2. 発表標題 Structural Characteristics of Ferroelectric Lead Titanate Aerosol Deposition Films Evaluated by Synchrotron Radiation X-ray Diffraction
3. 学会等名 16th Conference of the Asian Crystallographic Association (AsCA 2019) (国際学会)
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 S. Kim, I. Fujii, S. Ueno, C. Moriyoshi, Y. Kuroiwa, S. Wada
2. 発表標題 Material Softening Behaviors with Bi Ion Off-Centering in Bi-Based Ceramics
3. 学会等名 第35回強誘電体応用会議(FMA-34)
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 野田翔太, 横井優人, 森吉千佳子, 黒岩芳弘, 藤井一郎, 和田隆博
2. 発表標題 Pb(Mg _{1/3} Nb _{2/3})O ₃ の立方晶相の構造ゆらぎ
3. 学会等名 第35回強誘電体応用会議(FMA-34)
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 黒岩芳弘
2. 発表標題 放射光 X 線回折実験による構造の静的・動的構造計測手法の紹介
3. 学会等名 セラミックコーティング研究体研究会（招待講演）
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 黒岩芳弘
2. 発表標題 酸化物強誘電体の化学結合とエアロゾルデポジションの特徴
3. 学会等名 2019年第80回応用物理学会秋季学術講演会（招待講演）
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 S. Kim , I. Fujii , S. Ueno , S. Wada , C. Moriyoshi , Y. Kuroiwa
2. 発表標題 Material Design using A-site ion Off-centering for Electrical Properties Enhancement in Bi-based Ceramics
3. 学会等名 第39回電子材料研究討論会
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 黒岩芳弘
2. 発表標題 放射光による多結晶膜の階層構造評価のための計測手法の提案
3. 学会等名 セラミックコーティング研究体研究会（招待講演）
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 黒岩芳弘
2. 発表標題 放射光で観たエアロゾル薄膜成長
3. 学会等名 第67回応用物理学会春季学術講演会（招待講演）
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 山内礼士，安部友啓，森吉千佳子，黒岩芳弘，和田智志，藤井 一郎，上野慎太郎
2. 発表標題 aTiO3多面体微粒子の結晶構造と相転移
3. 学会等名 日本セラミックス協会2020年年会
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 B. Iversen, J. Overgaard, Y. Kuroiwa and E. Nishibori
2. 発表標題 Activities at BL02B1 in PU Project 0078
3. 学会等名 SPring-8シンポジウム2019
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 黒岩芳弘
2. 発表標題 放射光で観たペロブスカイト型強誘電体の機能発現に関する構造科学
3. 学会等名 東北大学金属材料研究所共同利用・共同研究ワークショップ（招待講演）
4. 発表年 2019年

〔図書〕 計0件

〔産業財産権〕

〔その他〕

広島大学 大学院理学研究科 物理科学専攻 構造物性研究室(黒岩芳弘)ホームページ
<http://www.xtalphys.hiroshima-u.ac.jp/index.html>

6. 研究組織

	氏名 (ローマ字氏名) (研究者番号)	所属研究機関・部局・職 (機関番号)	備考
研究分担者	大沢 仁志 (Osawa Hitoshi) (00443549)	公益財団法人高輝度光科学研究センター・分光・イメージング推進室・研究員 (84502)	
研究分担者	和田 智志 (Wada Satoshi) (60240545)	山梨大学・大学院総合研究部・教授 (13501)	