

令和 4 年 6 月 14 日現在

機関番号：13201

研究種目：基盤研究(C)（一般）

研究期間：2018～2021

課題番号：18K03490

研究課題名（和文）強誘電体の分極軸に垂直な電場により誘起される未知の分極

研究課題名（英文）Polarization induced by an electric field perpendicular to the polar axis of the ferroelectrics

研究代表者

喜久田 寿郎（KIKUTA, Toshio）

富山大学・学術研究部工学系・准教授

研究者番号：20313588

交付決定額（研究期間全体）：（直接経費） 3,300,000円

研究成果の概要（和文）：硫酸三グリシンに横電場を印加し続けると自発分極が小さくなる横電場効果に際し、横電場方向に現れる焦電気のようなものについて調べた。

横電場印加後には電流がほとんど流れず、ある待ち時間の後にある一定値へ増加していく様子が観測された。その後電場を切りししばらくした後に再び印加すると今度はすぐに一定値に落ち着く。待ち時間が自発分極の減少時間に類似するので、横電場で試料内に注入される電荷は分極を徐々に打ち消し、一度打ち消されてしまえば、そのまま試料を素通りするものと思われる。試料内に注入された電荷により横電場効果が起きていることが確認できた。

研究成果の学術的意義や社会的意義

強誘電性の発現には強誘電軸方向の電場が重要であり、それに垂直な方向の電場（横電場）は全く関与しないとされているが、横電場が強誘電性を完全に遮蔽できることがわかり、そのメカニズムの解明の一つとして本研究の実験がある。強誘電体の物性が試料によって異なることがしばしばあり、その原因には結晶の格子欠陥や不純物が挙げられている。本研究で調査する横電場効果は試料に加えた電場の履歴により物性が異なるもので、強誘電体を電気デバイスの素子などに応用する際に考慮しなければならない事柄である。

研究成果の概要（英文）：The pyroelectricity that appears along in the transverse electric field, in the case that the spontaneous polarization decreases with prolonged application of the transverse electric field to triglycine sulfate sample has been investigated.

It was observed that almost no current flowed after the application of the transverse electric field, and the current increased to a certain value after a certain waiting time. After that, when the electric field is turned off and applied again after a while, it immediately settles to a constant value. Since the waiting time is similar to the decrease time of spontaneous polarization, the charge injected into the sample by the transverse electric field gradually cancels the polarization, and once canceled, it seems that the charge passes through the sample as it is. It was confirmed that the transverse electric field effect was caused by the electric charge injected into the sample.

研究分野：物性物理学

キーワード：強誘電体 電場効果 自発分極 焦電気 エレクトレット

### 1. 研究開始当初の背景

硫酸三グリシンは 1956 年に発見された一軸性強誘電体である。強誘電相転移温度が 49°C であるために実験を行いやすく、典型的な 2 次相転移をすることから物理学的に興味を持たれ盛んに研究されてきた。通常、強誘電体の持つ特異な電気的特性の研究は、自発分極が現れる向き（分極軸）に平行な成分のみに注目して行われる。これは、現象論的に考えると、分極軸に垂直な電場（横電場）は強誘電性に影響を及ぼさないと結論できるからである。ところが、硫酸三グリシンの分極軸に横電場を長時間印加したあとに、自発分極を測定するために電場-分極の履歴曲線を観察すると、その大きさが横電場を印加する前に比べて縮小していることがわかり、自発分極の減少速度が横電場強度、結晶の電気伝導度、試料温度などに依存していることを見出した。

試料に横電場を印加し続けると履歴曲線が縮小して、最終的には自発分極を観測できなくなる。しかし、疲労現象とは異なり熱処理で元の特性を回復でき、減少した自発分極の大きさは横電場の印加を止めても温度を変えない限り維持される。強誘電体は自発分極を持ち、その向きを電場で反転できるのが特徴である。横電場により履歴曲線が縮小するのは、分極反転が阻害されたためだと思われるが、反転を妨げているものやメカニズムが不明であった。

### 2. 研究の目的

硫酸三グリシンの分極軸と異なる向きに直流電場を長時間印加すると分極軸方向に観測されていた自発分極の大きさが減少し、電場の印加をやめた後も温度を変えない限り新たな特性が維持されること（横電場効果）を発見した。そのメカニズムを明らかにするために電場や温度の依存性などを調べている際に、電場を印加した方向に焦電気のような電荷が発生していることを見出した。本研究では、横電場の影響を受けた試料が発生させる電荷と自発分極の大きさとの関係を明らかにする。

横電場は強誘電性に寄与しないとされているが、自発分極を観測困難となるまでに減少させることから、これまで関係がないだろうと無視してきた外場であっても影響があることを認識させた。これは従来の測定法や考え方を踏襲していただけでは得られなかったことであり、調べ尽くされた物質のなかにも新たな性質や現象が見つかることを期待している。

### 3. 研究の方法

試料は研究室で長年育成している硫酸グリシンの単結晶から作製した。横電場方向に電場を印加したり電流を測定したりするための電極と、分極軸方向の電流や分極を測定するための電極の 2 種類の電極を試料に取り付けた。電極として金を試料面に真空蒸着した。横電場方向には高圧電源と電流計を、分極軸方向には電流計を接続して、横電場の印加とそれぞれの軸方向の電流の測定を 5 秒間隔で行った。試料温度は温度コントローラで制御し、定温時には 0.02 K 以内に安定させ、昇温時には 0.2 K/min で温度を変化させた。焦電気の測定前には 30 分ほど電極をショートして試料に溜まっている電荷を放電させた。

初めに、横電場により流れる電流と自発分極の大きさの減少の関係を調べるため、温度を一定にしたままで横電場を印加して、横電場方向に流れる電流と分極軸方向の分極を同時に測定した。しかし、漏れ電流（表面電流）が多く、分極軸方向の電場が横電場方向にも漏れるため、うまく測定できなかった。対策を考えている間に、続いて、温度を変化させたときに横電場方向に流れる焦電電流と、分極軸方向に流れる焦電電流を測定して、横電場の印加時間により、それぞれの方向に発生する電荷がどのように変わるのかを調べることで横電場方向に生じる焦電気の起源と横電場効果との関連を考察した。最後に再び、温度を一定に保ち、横電場により流れる電流の時間変化を調べた。

### 4. 研究成果

最初に行った実験の、横電場方向に流れる電流と自発分極の時間変化の測定では、横電場方向に流れる電流が非常に大きくノイズも載っていたため、時間とともに電流が減少する様子が確認できたが、自発分極の大きさの減少の様子と緩和時間が全く異なっていたため、横電場方向の電流の減少は横電場効果を反映していないと判断した。横電場が数 kV/cm であり試料の体積抵抗がとても高いので、観測された電流はほとんど表面電流であったと思われる。

続いて行った実験では、横電場を印加した後に横電場方向と分極軸方向に温度を変化させたときに生じる電荷を同時に測定した。この実験では測定時に電圧発生源を含まな

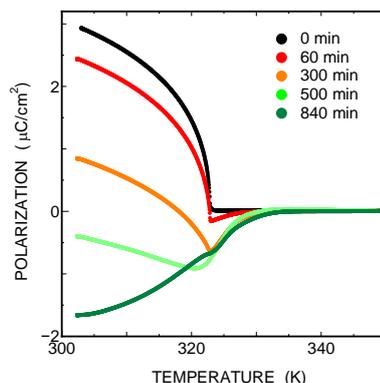


図1 分極軸方向の分極の温度依存性

いので、同時に2つの方向の電流を測定できた。横電場を印加しないときは、分極軸方向には通常の焦電電流が流れ、電流値の積分により温度の1/2乗に比例する分極の温度依存性を得ることができた。横電場方向にはほとんど電流を検出できなかった。横電場を、例えば、1時間印加した後の分極軸方向に現れる電荷は横電場を印加しないときに比べて小さく、横電場方向には相転移温度付近でのみ電流が流れた。図1に分極軸方向の、図2に横電場方向の焦電電流から求めた分極の温度依存性を示す。これらのことから横電場は分極の大きさを減少させ、横電場方向に分極を発生させる働きをすることがわかる。しかし、横電場方向の分極は強誘電相ではほぼ一定の値を示している。

最後の実験では横電場の印加で流れる電流を、表面を伝って流れる電流成分を除くために電極の配置を工夫してエレクトロメータで測定した。熱処理後に初めて横電場を印加するときには、電場印加後、暫くしてから電流が流れ始める様子が確認された。電場の印加を止めて、再び印加するときは印加直後すぐに電流が流れ始める。初めて横電場を印加するときの時間の遅れは、この間に分極軸方向の自発分極の大きさが減少しているためと思われる。再び印加する際は、自発分極の大きさが減少してしまっているため、電荷が自発分極の大きさを減少に使われることがないために、すぐに電流が流れ始めると考えられる。

本研究により、横電場効果が横電場の印加で試料内に浸入した電荷が自発分極の大きさを減少させ、電荷が試料内にとどまるために、横電場の印加を止めても自発分極の大きさが元に戻らないという現象を起こしていると結論される。また、実験の途中で、横電場の方向により流れる電流の大きさが異なるという結果を得たので、さらに詳しいメカニズムを考えていく必要がある。

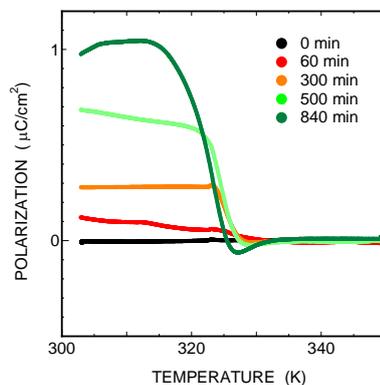


図2 横電場方向の分極の温度依存性

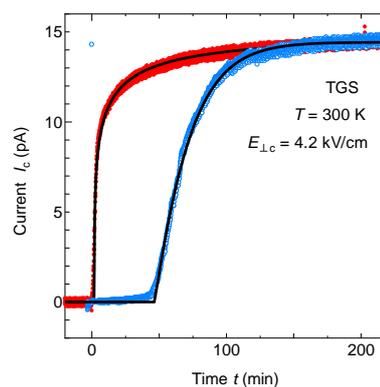


図3 横電場下での電流の時間変化

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計0件

〔学会発表〕 計4件（うち招待講演 0件 / うち国際学会 0件）

1. 発表者名 喜久田 寿郎, 奥田 裕哉, B. Fugiel
2. 発表標題 硫酸グリシンの強誘電軸に垂直な方向に生じる電荷
3. 学会等名 日本物理学会
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 奥田 裕哉, 喜久田 寿郎
2. 発表標題 硫酸グリシンの横電場下での電流
3. 学会等名 日本物理学会北陸支部
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 喜久田 寿郎
2. 発表標題 硫酸三グリシンの強誘電軸に垂直な方向の電場の影響
3. 学会等名 日本物理学会北陸支部
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 喜久田 寿郎
2. 発表標題 硫酸グリシンの強誘電軸に垂直な方向に流れる電流
3. 学会等名 日本物理学会
4. 発表年 2022年

〔図書〕 計0件

〔産業財産権〕

〔その他〕

-

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
--	---------------------------	-----------------------	----

7. 科研費を使用して開催した国際研究集会

〔国際研究集会〕 計0件

8. 本研究に関連して実施した国際共同研究の実施状況

共同研究相手国	相手方研究機関
---------	---------