

平成 22 年 6 月 4 日現在

研究種目：若手研究 (B)
 研究期間：2007 ～ 2009
 課題番号：19740186
 研究課題名 (和文) 放射光 X 線による準静的温度変化下におけるチタン酸バリウムの動的構造観察
 研究課題名 (英文) Dynamical structural analysis on BaTiO₃ under highly stabilized temperature using synchrotron X-ray diffraction
 研究代表者
 米田 安宏 (YONEDA YASUHIRO)
 独立行政法人日本原子力研究開発機構・量子ビーム応用研究部門・研究副主幹
 研究者番号：30343924

研究成果の概要 (和文)：
 2007年度においては、交付された助成金をもとにできるだけ精密に温度をコントロールすることが可能な電気炉を製作した。2008年度はこの電気炉を用いての手法開発を行った。そして、最終年度である2009年度ではチタン酸バリウムを用いて相転移近傍でのドメイン観察をX線トポグラフィを用いて行った。チタン酸バリウムの強誘電的ドメインにおいては格子歪みがドメイン境界に局在しており、ドメインを安定化させていることがわかった。

研究成果の概要 (英文)：

An electric furnace was produced based on the delivered subsidy in FY 2007. Then, an electric furnace where the temperature can be controlled as precisely as possible was produced. The technique that used the developed electric furnace to experiment on the barium titanate (BaTiO₃) was developed in FY 2008. The domain observation around the phase transition temperature was performed in FY 2009. In strong dielectric domain of the BaTiO₃, it has been understood that the lattice strain has stabilized and the domain to the domain boundary.

交付決定額

(金額単位：円)

	直接経費	間接経費	合計
2007 年度	1,900,000	0	1,900,000
2008 年度	500,000	150,000	650,000
2009 年度	500,000	150,000	650,000
年度			
年度			
総計	2,900,000	300,000	3,200,000

研究分野：数物系科学

科研費の分科・細目：物理学・物性 I

キーワード：強誘電体、ドメイン、放射光、相転移

1. 研究開始当初の背景

強誘電体における相転移的とは、常誘電相の結晶構造の対称性が下がることによって分極が発生し、強誘電相へと変化することを

いう。例えば典型的な強誘電体のチタン酸バリウムは常誘電相の立方晶構造から強誘電相の正方晶相へと構造変化する。相転移点を境に長距離レンジの結晶構造(平均構造)が

劇的に変化するためこれら相転移点を挟んだ2相の結晶構造を解くことで強誘電的相転移が理解されてきた。

しかし、近年、Pair Distribution Function (PDF) という最新の結晶構造解析手法を用いて強誘電体の短距離・中距離レンジの構造(局所構造)を明らかにしたところ、相転移をまたぐ2つの局所構造は驚くほどよく似ており、一般に理解されているような単純な構造相転移だけではなく、バラエティーに富んだ構造変化を起こしている可能性を示した。

2. 研究の目的

本研究はチタン酸バリウムを対象としている。チタン酸バリウムの強誘電的相転移が立方晶から正方晶への平均構造だけで理解されてきた固定観念を打ち破るのが第一の目的である。さらに相転移近傍の第三の構造の発現機構がわかれば、相転移近傍での局所構造の類似性をいかした新たなドメインエンジニアリング手法が確立できる。強誘電体や強磁性体においてはドメイン構造が物性に決定的な影響を及ぼすことがあるため、ドメイン制御は重要な研究課題である。

3. 研究の方法

本研究はチタン酸バリウムの動的構造を放射光X線によって観察するために、まず、サンプルの温度安定化に必要なミリケルビン制御セルをビームラインハッチ内に製作した。次にX線トポグラフィによるドメイン観察に必要なビームラインの光源調整を行い、チタン酸バリウムの強誘電的相転移近傍の測定を行なった。そして従来の平均構造だけで議論されてきた強誘電体の相転移の再検討を行ない、ドメインエンジニアリングに必要な手がかりをつかむことができた。

4. 研究成果

チタン酸バリウムの強誘電的ドメインにおいては格子歪みがドメイン境界に局在しており、ドメインを安定化させていることがわかった。従って、X線非弾性散乱や光散乱によって得られるフォノンの異常が強誘電的相転移のごく近傍だけでなく、転移温度から離れた温度で観測されるのは、ドメインの格子歪みがドメイン境界からドメイン内部へと緩和する過程を反映しているものと考えられる。この現象を数式化する試みを現在も行っており、強誘電体単結晶のドメインを格子歪みによって制御することを目指している。チタン酸バリウムの相転移近傍での観察結果の知見を生かして、マルチフェロイック物質や非鉛系ペロブスカイト化合物にも取り組んでおり、局所構造に特徴的な構造が現れることから、格子歪みを積極的に利用したドメイン制御が可能であると考えている。今

後は単結晶のみならず、薄膜やセラミックスなどへ準静的温度変化下での測定手法を拡張していくことが課題である。

5. 主な発表論文等

(研究代表者、研究分担者及び連携研究者には下線)

[雑誌論文] (計 17 件)

1. M. Fukunaga, Y. Yoneda, R. Fukuyama, H. Saitoh, N. Ikeda and Y. Katayama, ``High Pressure and Temperature Synthesis of Bi-based Perovskite ($\text{Bi}_{0.5}\text{Na}_{0.5-x}\text{Li}_x$) TiO_3 '', Transactions of the Materials Research Society of Japan, 35, 111-114 (2010), 査読有
2. Y. Yoneda, Y. Kohmura, Y. Suzuki, ``X-ray Diffraction from the Ferroelectric Fluctuation and Domain Walls of Barium Titanate'', Transactions of the Materials Research Society of Japan, 35, 103-106 (2010), 査読有
3. Y. Yoneda, H. Tanida, M. Takagaki, T. Uruga, ``Depth-Resolved XAFS Analysis of SrTiO_3 Thin Film'', Transactions of the Materials Research Society of Japan, 35, 99-102 (2010), 査読有
4. Y. Yoneda, H. Saitoh, K. Yoshii, T. Nishida, H. Hayakawa, and N. Ikeda, ``Growth and Characterization of Bismuth Magnesium Titanate $\text{Bi}(\text{Mg}_{1/2}\text{Ti}_{1/2})\text{O}_3$ '', Key Engineering Materials 421-422, 30-33 (2010), 査読有
5. H. Hayakawa, M. Morimoto, N. Ikeda, Y. Yoneda, S. Kohara, K. Yoshii, Y. Matsuo, T. Michiuchi, S. Mori, ``Local Structure Modulation in the Electric Ferroelectric Oxide LuFe_2O_4 '', Transactions of the Materials Research Society of Japan, 34, 51-54 (2009), 査読有
6. Y. Yoneda, Y. Kohmura, and Y. Suzuki, ``X-ray Diffraction Topography of BaTiO_3 at Phase Transition Temperature'', Jpn. J. Appl. Phys. 09KF01 (2009), 査読有
7. Y. Yoneda, K. Yoshii, H. Hayakawa, and N. Ikeda, ``Local Structure Analysis of Cubic Perovskite $\text{CaCu}_3\text{Ti}_4\text{O}_{12}$ '', Trans. Materials Res. Soc. of Japan, 34, 15-18

- (2009) , 査読有
8. Y. Yoneda, K. Yoshii, S. Kohara, S. Kitagawa and S. Mori, ``Local structure of BiFeO₃-BaTiO₃ mixture'', Jpn. J. Appl. Phys., 47, 7590-7594 (2008) , 査読有
 9. K. Yoshii, N. Ikeda, Y. Okajima, Y. Yoneda, Y. Matsuo, Y. Horibe, and S. Mori, Magnetic and Dielectric Properties of InFe₂O₄, InFeCuO₄, and InGaCuO₄, Inorg. Chem. 47, 6493-6501 (2008) , 査読有
 10. K. Yoshii, Y. Yoneda, D. Maeda, Y. Yokota, T. Michiuchi, T. Komatsu, N. Ikeda, Y. Matsuo and S. Mori, ``Magnetic and dielectric properties of HoFeO₄ and R_{1-x}R'_xFe₂O₄ (R, R' : Rare Earths)`, Jpn. J. Appl. Phys., 47, 7599-7602 (2008) , 査読有
 11. Y. Yoneda and N. Yasuda, ``XAFS study of Relaxor Pb(In_{0.5}Nb_{0.5})O₃'', Trans. of Mater. Res. Soc. of Jpn., 33, 15-18 (2008) , 査読有
 12. Y. Yoneda, J. Mizuki, H. Takeda and T. Shiosaki, ``X-ray Topography of Piezoelectric La₃Ta_{0.5}Ga_{5.5}O₁₄ Crystal Grown by Czochralski Method'', IEEE Trans. on Ultrasonics, Ferroelectrics, and Frequency Control, 55, 971-974 (2008) , 査読有
 13. Y. Yoneda, K. Yoshii, H. Saitoh and J. Mizuki, ``PDF analysis of Bi_{0.9-x}La_{0.1}Tb_xFeO₃'', Ferroelectrics, 355, 119-124 (2007) , 査読有
 14. Y. Yoneda, H. Takeda, T. Shiosaki and J. Mizuki, ``Defference between Local and Average Structures of La₃Ga₅SiO₁₄ Crystal'', Jpn. J. Appl. Phys., 10B 7163-7166 (2007) , 査読有
 15. 米田安宏, 強誘電体を用いた温度勾配の変化を検出するセンサ、ケミカルエンジニアリング 2007年9月号 p. 1, 査読無
 16. Y. Yoneda, K. Yoshii, H. Saitoh and J. Mizuki, ``Magnitic and ferroelectric properties of (Bi_{1-x}La_x)FeO₃'', Ferroelectrics, 348, 33-37 (2007) , 査読有
 17. Y. Yoneda, Y. Kohmura, Y. Suzuki, R. Morimura, A. Kojima and J. Mizuki, ``Direct observation of non-strain-free style domain in BaTiO₃ crystal by synchrotron x-ray topography'', Transactions of the Materials Research Society of Japan, 32, 31-34 (2007) , 査読有
- [学会発表] (計 22 件)
1. 米田安宏, 高垣昌史、谷田肇、宇留賀朋哉、``チタン酸ストロンチウム薄膜の深さ分解XAFS'', 日本物理学会第 65 回年次大会(岡山大学津島キャンパス)、2010. 3. 21
 2. 西田貴司、旭健史郎、布施和志、米田安宏、田村和久、松村大樹、木村秀夫、堀田昌宏、上沼睦典、内山潔、浦岡行治、``斜入射スパッタ法によるPbTiO₃の自己組織化アレイの作製と評価'', 日本物理学会第 65 回年次大会(岡山大学津島キャンパス)、2010. 3. 21
 3. Y. Yoneda, H. Tanida, M. Takagaki, and T. Uruga, Depth depend XAFS analysis of SrTiO₃ thin film, 19th Academic Symposium of MRS-Japan 2009 (Yokohama), 2009. 12. 7
 4. K. Yoshii, Y. Yoneda, N. Ikeda, Y. Matsuo, T. Hoshiyama, Y. Horibe, and S. Mori, ``Elemental substitutional effects in the electronic ferroelectrics RFe₂O₄`, 19th Academic Symposium of MRS-Japan 2009 (Yokohama), 2009. 12. 7
 5. M. Fukunaga, Y. Yoneda, H. Saitoh, Y. Katayama, Synthesis of Bi-based perovskite with Li under high pressure and temperature, 19th Academic Symposium of MRS-Japan 2009 (Yokohama), 2009. 12. 7
 6. 米田安宏、晝間裕二、永田肇、竹中正、Bi_{0.5}Na_{0.5}TiO₃のLi置換効果、日本物理学会 2009 年秋季大会(熊本大学黒髪キャンパス)、2009. 9. 26
 7. Y. Yoneda and K. Yoshii, Phase transitions of BiFeO₃-LaFeO₃ Solid Solutions, 12th International Meeting on Ferroelectricity (IMF-12) and 18th IEEE International Symposium on Applications of Ferroelectrics (ISAF-18) (Xi'an, China, 2009), 2009. 8. 25

8. 米田安宏、香村芳樹、鈴木芳生、コヒーレントX線を用いたBaTiO₃のトポグラフィ、第25回強誘電体応用会議(京都)、2009.5.28
 9. 米田安宏、吉井賢資、喜多川修二、森茂生、BiFeO₃-BaTiO₃混晶の局所構造解析、日本物理学会第64回年次大会(立教大学)、2009.3.29
 10. H. Hayakawa, M. Morimoto, N. Ikeda, Y. Yoneda, S. Kohara, K. Yoshii, Y. Matsuo, and S. Mori, Local structure and physical properties of the electronic ferroelectric oxide LuFe₂O₄, The IUMRS International Conference in Asia 2008 (Nagoya), 2008.12.9
 11. Y. Yoneda, K. Yoshii, H. Hayakawa, and N. Ikeda, Local structure analysis of the cubic perovskite CaCu₃Ti₄O₁₂, The IUMRS International Conference in Asia 2008 (Nagoya), 2008.12.9
 12. Y. Yoneda and H. Abe, Local structure analysis of SmFe₂ and TbFe₂, The IUMRS International Conference in Asia 2008 (Nagoya), 2008.12.11
 13. Y. Yoneda, H. Saitoh, K. Yoshii, and T. Nishida, Growth and Characterization of Bismuth Magnesium Titanate Bi(Mg_{1/2}Ti_{1/2})O₃, The 6th Asian Meeting on Electroceramics (Oct 22-24, 2008, Tsukuba, Japan) 2008.10.23
 14. 米田安宏、吉井賢資、早川弘毅、青柳倫太郎、CaCu₃Ti₄O₁₂の低温における局所構造変化、日本物理学会2008年秋季大会(岩手大学上田キャンパス)、2008.9.22
 15. Y. Yoneda and S. Kohara, Local structure of BaTiO₃ and BiFeO₃ in high-temperature cubic phase, The 7th Korea-Japan Conference on Ferroelectricity (KJC-FE07, Aug. 06 - 09, 2008, Jeju, Korea) 2008.8.7
 16. 米田安宏、吉井賢資、小原真司、喜多川修二、森茂生、BiFeO₃-BaTiO₃混晶の局所構造、第25回強誘電体応用会議(京都)、2008.5.28
 17. 米田安宏、吉井賢資、小原真司、BiFeO₃の相転移近傍における局所構造変化、日本物理学会第63回年次大会(2008年、近畿大学本部キャンパス)、2008.3.25
 18. Y. Yoneda and S. Kohara, Phase transition of ferroelectrics seen with PDF, International Workshop on Structural Analysis Bridging between Amorphous and Crystalline Materials (SABAC2008, Tokai). 2008.1.10
 19. Y. Yoneda and N. Yasuda, XANES study of Relaxor Pb(In_{0.5}Nb_{0.5})O₃, The 18th symposium of the materials research society of Japan (Nihon Univ.), 2007.12.9
 20. Y. Yoneda, S. Kohara, K. Yoshii and J. Mizuki, Local structure analysis of BiFeO₃-LaFeO₃ mixture, The 13th US-Japan Seminar on Dielectric and Piezoelectric Ceramics (Awaji), 2007.11.6
 21. Y. Yoneda, J. Mizuki, H. Takeda, and T. Shiosaki, X-ray topography on La₃Ta_{0.5}Ga_{5.5}O₁₄ single crystal grown by Czochralski method, The 16th IEEE International Symposium on the Applications of Ferroelectrics (ISAF2007, Nara) 2007.5.28
 22. 米田安宏、水木純一郎、武田博明、塩寄忠、高エネルギーX線によるランサイト単結晶の評価、第24回強誘電体応用会議(京都)、2007.5.24
- [その他]
ホームページ等
<http://wwwapr.kansai.jaea.go.jp/srrc/research02/xqdr.html>
6. 研究組織
 - (1) 研究代表者
米田 安宏 (YONEDA YASUHIRO)
独立行政法人日本原子力研究開発機構
量子ビーム応用研究部門・研究副主幹
研究者番号：30343924
 - (2) 研究分担者
なし
 - (3) 連携研究者
なし