

令和 3 年 8 月 25 日現在

機関番号：57403

研究種目：基盤研究(C)（一般）

研究期間：2018～2020

課題番号：18K04950

研究課題名（和文）非線形誘電特性の深さプロファイル測定と圧電デバイス内部の分極構造の非破壊評価技術

研究課題名（英文）Nondestructive Measurement Method for Depth Profile of Nonlinear Dielectric Properties and Domain Structure in Piezoelectric Devices

研究代表者

小田川 裕之（ODAGAWA, HIROYUKI）

熊本高等専門学校・拠点化プロジェクト系地域協働プロジェクトグループ・教授

研究者番号：00250845

交付決定額（研究期間全体）：（直接経費） 3,400,000円

研究成果の概要（和文）：本研究は、(1)圧電体や強誘電体などの電氣的に極性を有する材料の、内部の極性構造（分極ドメイン）を、試料表面から非破壊で推定する技術の開発と、(2)圧電素子に交流電圧を印加して駆動させている最中の圧電体中の極性構造の挙動を観察できる装置を、走査型非線形誘電率顕微法(SNDM)を用いて開発することを目的として実施した。(1)については、試料内部の電界分布を変化させることで測定可能であること、またその方法は探針ではなく試料表面の電極の位置を変える方法が有効であることを見出した。(2)については、交流電圧印加中のドメインの動きを観察できた。

研究成果の学術的意義や社会的意義

プローブ顕微鏡技術は、微細な領域の表面状態を観察できる技術で、表面の測定に主眼が置かれているが、本研究手法のように試料内部の電界分布を変化させることで、深さ方向の特性も測定が可能となるため、本研究で対象としている圧電材料の開発のみでなく広くこの技術が応用可能である。また、圧電素子は、大電力で素子を駆動すると特性が劣化することが知られており、試料内部のドメインの動きが影響していると考えられているが、その挙動をリアルタイムで観察するのは困難であった。本研究で開発した装置を用いることで、圧電素子の特性向上や材料開発に大きく貢献できる。

研究成果の概要（英文）：The purpose of this study was to develop (1) a nondestructive technique for measuring the internal domain structure in piezoelectric or ferroelectric materials from the sample surface, and (2) an observation system of the domain motion in the piezoelectric device under applying AC voltage using scanning nonlinear dielectric microscopy (SNDM). Regarding (1), it was confirmed that it could be measured by changing the electric field distribution inside the sample, and it was found that the effective method to change the electric field is to change the position of the electrode under the sample. Regarding (2), the movement of the domain under applying the AC voltage was observed.

研究分野：圧電材料・デバイスおよびその評価技術

キーワード：走査型非線形誘電率顕微法 圧電体 分極反転 ドメイン計測

### 1. 研究開始当初の背景

圧電体や強誘電体は、超音波デバイス、アクチュエータ、焦電デバイス、光デバイス、記録デバイス等に広く用いられている。これらのデバイスでは、材料開発の他に、極性（分極）を意図的に反転させた構造を用いることが高性能化への一手段となる。早稲田大の柳谷らは ZnO や AlN 等の圧電薄膜をスパッタリングで成膜する際、条件を制御することで極性を変える技術を開発し、研究を進めている。この技術が確立すれば、積層型の微細な極性反転構造が作製可能となり、マイクロ・ナノマシン（MEMS）技術との融合も可能であるため、次世代の圧電デバイスの開発に大きく貢献するものと期待される。これらの研究を推進するためには、層状構造の極性反転層を非破壊で評価する技術が必要である。

また、強力超音波の励振に圧電セラミックスが広く用いられているが、大振幅で素子を振動させると特性が劣化することが知られており、駆動中のドメインの動きが関係していると考えられている。しかし、駆動中の素子内部のドメイン構造の動きを非破壊で観察することは従来困難であり、もしそのような装置が実現したら、デバイスや材料開発の分野に大きく貢献できると考えられる。

### 2. 研究の目的

上述の背景から、本研究では、(1)圧電体や強誘電体などの電氣的に極性を有する材料の、内部の極性構造（層状の分極構造）を、試料表面から非破壊で推定する技術の開発と、(2)圧電素子に交流電圧を印加して駆動させている最中の圧電体中の極性構造の挙動を観察できる装置を、走査型非線形形誘電率顕微鏡法(Scanning Nonlinear Dielectric Microscopy: SNDM) を用いて開発することを目的として実施した。

### 3. 研究の方法

#### (1) 深さプロファイル測定

一般に、誘電体試料に接触した探針下の電界分布は、試料と探針との接触点部分に集中することが知られているが、SNDM では更にその電界の 2 乗に比例して信号が得られるため、特に接触点からの距離が非常に狭い領域のみの情報を観察することになる。このため、SNDM は面内で非常に高分解能に分極の観察が可能である。また、測定の深さについても、電界が表面付近に集中しているため、試料の表面付近の情報のみを測定している。この電界分布は、試料の誘電率と探針半径に依存し、探針半径が小さい程、また、誘電率が大きいほど探針直下に集中する。この特性を用いると、探針半径を適切に変えて SNDM の測定を行うことで、分極分極反転層の面内からの深さを推定することが可能であると考えられる。

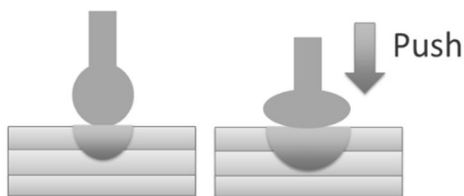


図 1. 測定の原理

まず、図 1 に示すように、探針に高分子材料などを用い、試料に押し付けて変形させて電界分布を連続的に変化させる方法を検討した。探針が試料に軽く接している場合は、試料表面付近に電界が集中するが、探針を押し付けて変形させると等価的に探針半径が大きくなり、試料内部まで電界が侵入すると考えた。

#### (2) 交流電圧印加中の分極ドメインの動きの観察

SNDM を用い、図 2 に示すように装置を構成して、駆動中の圧電試料の分極ドメインの動きの観察を試みた。

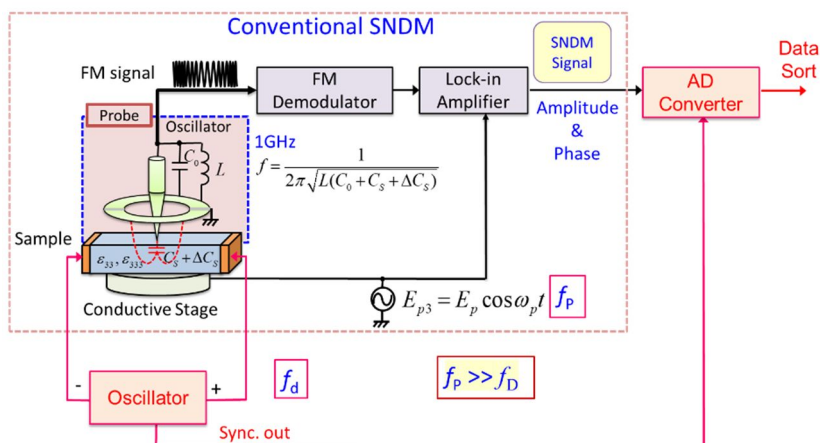


図 2. ドメイン挙動測定装置の構成

### 4. 研究成果

#### (1) 深さプロファイル測定

探針に金属コーティングしたシリコンゴムを用い、探針を試料に押し付けて変形させ、その時の SNDM の出力信号を測定した。その結果を図 3 に示す。探針を試料に押し付けるに従って、出力信号が変化していることが確認された。探針を押し付けないときは上の層のみを測定し、押し付けることで電界分布が下の層にも達することになり、符号が逆のため打ち消しあって信号が弱くなっていると考えられ、原理的には本測定が可能であることが分かった。しかし、探針の押し込み量と電界

分布を有限要素法でシミュレーションすると、押し付け量を大きくしても、接触面の周囲の輪郭部分のみに電界が集中し、内部の電界はあるところからほとんど変化しないことが分かった。そこで、別の方法として、試料裏面の電極(シミュレーションではグランド電極)と試料との距離を変える方法を検討した。

図4は、試料裏面のグランド電極と試料との距離を変化させたとき、試料の各層からの出力がどのように変化しているかを、有限要素法でシミュレーションした結果である。この図が示しているのは、グランド電極が試料裏面に接しているときは、試料内に侵入している電界の割合が多くなり、グランド電極が試料表面から離れると、電界分布は試料表面の探針下に集中するということである。これ利用すれば、上述の探針の変形を利用する場合よりもより大きく、試料内部の電界分布を変化させることが可能であると考えられる。

この原理を確認するため、グランド電極の位置を制御できる装置を作製しており、今後実験を行う予定である。

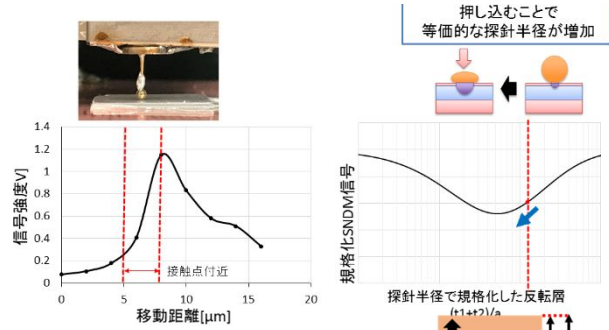


図3. 探針を押し込みと出力信号(実験)

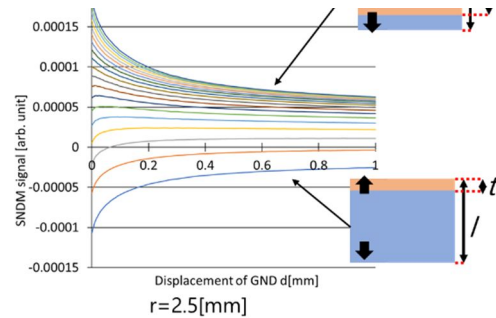


図4. 試料裏面の電極の位置を変えた時の各層からの出力(シミュレーション)

(2) 交流電圧印加中の分極ドメインの動きの観察

図2の装置を構成し、プローブを走査しながら各測定位置で、圧電素子に駆動用の交流信号を印加し、その位相ごとに SNDM の出力を測定した。その測定結果を、図5のようにデータを並べ変えて、各時刻の(各位相での)分極分布の像を作成し、連続的に動かすことでアニメーションのようにドメインの挙動を動画で再生できるようにした。

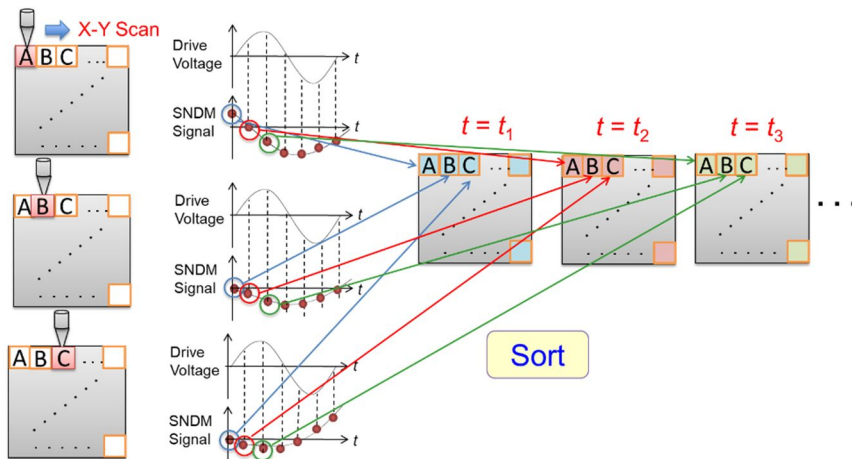


図5. 駆動電圧印加時の測定とデータの並べ変え

図6は、MPB 付近のリラクサ材料を測定した結果である。動作確認のため、駆動電圧の周波数は 1Hz で行った(原理的には周波数を上げて測定可能である)。得られた像を並べたものを印加駆動電圧の位相ごとに配置した。上段が振幅像、下段が位相像である。位相の青と黄色は分極の向きが反転していることを表している。また、振幅は赤の方が大きく、分極の向きが試料の法線方向に近いことを表しており、逆に青い部分は、分極の向きが試料面の接線方向に近いことを表していると考えられる。このように、駆動電圧を印加したときの、分極分布の変化(分極ドメインの動き)が観察されていると考えられる。特に、正方晶と菱面体晶との相転移を観察しているのではないかと仮説を立て説明することができるが、今後更に実験および検討が必要であるため、本報告では具体的な相変化についての解釈は行わず、今後の課題とする。

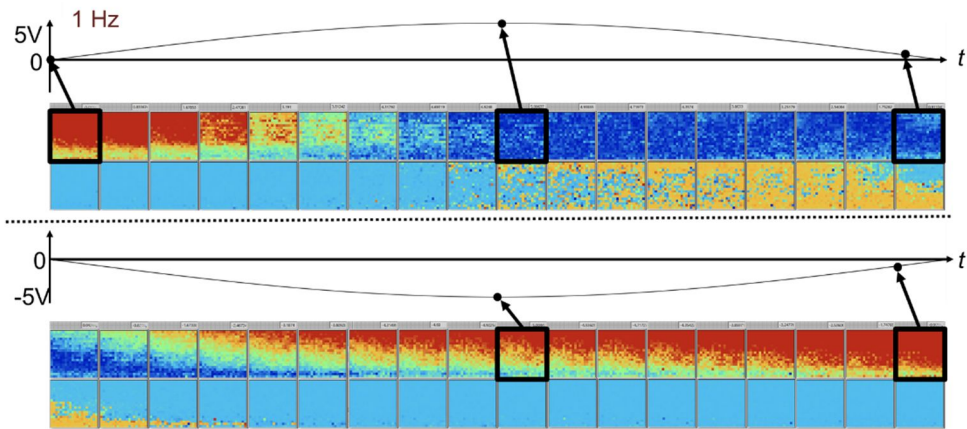


図 6. 駆動電圧印加時の分極分布の測定結果

以上まとめると、本研究では基本的な目標を達成することができた。(1)については、本手法のように電界分布を変化させることで、深さ方向の特性も測定が可能となるため、本研究で対象としている圧電材料の開発のみでなく広くこの技術が応用可能である。(2)については、駆動中の圧電試料内部のドメインの動きを観察することができることを示した。(1)、(2)いずれについても、本研究により開発した装置は、圧電素子の特性向上や圧電材料の開発に大きく貢献するものである。

<引用文献>

- T. Nohara, T. Yanagitani, M. Matsukawa and Y. Watanabe, Jpn. J. Appl. Phys. 45, 4201 (2006).
- T. Kawamoto, T. Yanagitani, M. Matsukawa and Y. Watanabe, Jpn. J. Appl. Phys. 46, 4660 (2007).
- Y. Cho, A. Kiriwara and T. Saeki, Denshi Joho Tsushin Gakkai Ronbunshi 78-c-1, 593 (1995) [in Japanese].
- Y. Cho, A. Kiriwara and T. Saeki, Rev. Sci. Instrum. 67, 2297 (1996).
- Y. Cho, S. Kazuta, K. Ohara and H. Odagawa, Jpn. J. Appl. Phys. 39, 3086 (2000).

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 2件 / うち国際学会 4件）

1. 発表者名 Hiroyuki Odagawa
2. 発表標題 Application of scanning nonlinear dielectric microscopy for various piezoelectric domain structure measurement
3. 学会等名 The Fifth International Symposium on Dielectric Materials and Applications (招待講演) (国際学会)
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 Hiroyuki Odagawa, Yohei Tanaka and Yasuo Cho
2. 発表標題 Measurement Method of Depth Profile in Polarity-Inverted Layered Structure Using Scanning Nonlinear Dielectric Microscopy with Soft Probe Tip
3. 学会等名 Third International Symposium on Dielectric Materials and Applications (ISyDMA2018) (国際学会)
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 Hiroyuki Odagawa, Yohei Tanaka and Yasuo Cho
2. 発表標題 Nondestructive Measurements of Double-Layered Piezoelectric Polarity-Inverted Structure Using Scanning Nonlinear Dielectric Microscopy
3. 学会等名 European Conference on Applications of Polar Dielectrics (ECAPD2018) (国際学会)
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 Hiroyuki Odagawa, Yohei Tanaka and Yasuo Cho
2. 発表標題 Measurement of Polarization-Inverted Structure in Layered Piezoelectric Material Using Scanning Nonlinear Dielectric Microscopy
3. 学会等名 International Workshop on Piezoelectric Materials and Applications in Actuators (IWPA2018) (招待講演) (国際学会)
4. 発表年 2018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
研究 分担 者	森田 剛  (Morita Tkeshi)  (60344735)	東京大学・大学院新領域創成科学研究科・教授    (12601)	

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