

令和 5 年 6 月 16 日現在

機関番号：15401

研究種目：基盤研究(B) (一般)

研究期間：2020～2022

課題番号：20H02641

研究課題名(和文) 擬立方晶フラクチャード強誘電体の巨大圧電応答機構解明のための構造計測手法の構築

研究課題名(英文) Establishment of structural measurement system for elucidating mechanism of giant piezoelectric response of pseudo-cubic fluctured ferroelectrics

研究代表者

黒岩 芳弘 (Kuroiwa, Yoshihiro)

広島大学・先進理工系科学研究科(理)・教授

研究者番号：40225280

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 14,000,000円

研究成果の概要(和文)： フラクチャード強誘電体と呼称することにした鉛を含まない擬立方晶ペロブスカイト型酸化物が優れた強誘電性と圧電性を示す仕組みを、交流電場印加下の放射光時分割単結晶X線回折実験により解明するための構造計測システムを構築した。この材料には鉛イオンの代わりに電子状態の似たビスマスイオンが含まれており、結晶内で高対称位置からオフセンターしたイオン配置をとることを見出した。電場を印加するとオフセンターしたビスマスイオンが電場印加の如何なる方向にも秩序化しナノドメインを形成することができ、そのナノドメインの再配列が誘電特性に大きく寄与することを明らかにした。

研究成果の学術的意義や社会的意義

誘電体の分野では、近年、環境問題に配慮して、チタン酸ジルコン酸鉛等の代替品として、有害な鉛を含まない非鉛圧電材料の開発が盛んである。我々のグループでも非鉛材料の探索を行ってきた結果、ペロブスカイト型構造をもつ擬立方晶 $0.3\text{BaTiO}_3\text{-}0.1\text{Bi}(\text{Mg}_{1/2}\text{Ti}_{1/2})\text{O}_3\text{-}0.6\text{BiFeO}_3$ (BT-BMT-BF) が優れた強誘電性と圧電特性をもつことを見出した。一般に、立方晶系に帰属する点群の中に極性点群はないことから、立方晶の物質に強誘電性は期待できない。この物質では今までにない新規な仕組みで誘電特性が発現することから、新たな材料設計の指針を示すことができたと考えている。

研究成果の概要(英文)： We have developed the crystal structure measurement system under applied electric field by means of synchrotron radiation time-resolved single-crystal X-ray diffraction to clarify the mechanism of significant ferroelectricity and piezoelectricity in the lead-free pseudo-cubic perovskite-type oxides, called fluctured ferroelectrics.

The material contains bismuth ions with similar electronic states instead of lead ions. The bismuth ion was found to be off-centered from the high-symmetry position in the crystal and could be ordered in any direction toward the electric field to form nanodomains when the electric field was applied. We have revealed that the rearrangement of these nanodomains significantly contributes to the dielectric properties.

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

1. 研究開始当初の背景

強誘電体の物理は、第一義に格子系の物理であり、物性発現の起源の解明には結晶構造に関する知識と理解が必要である。立方晶系に帰属する点群の中に極性点群がないことから、極性点群をもつ構造に相転移しない限り立方晶の物質に強誘電性は期待できない、というのが常識である。もし、一見して立方晶の物質が構造相転移せずに強誘電性を示す場合、結晶構造と物性との間の矛盾を回避するために擬立方晶と呼ぶことが多い。

強誘電体の研究分野では、近年、環境問題に配慮して、チタン酸ジルコン酸鉛 (PZT) 等の代替品として、有害な鉛を含まない非鉛圧電材料の開発が盛んである。我々のグループでも T_c の高い非鉛圧電セラミックス材料の探索を行ってきた。ビスマスを含むリラクサー強誘電体と標準的な強誘電体の固溶体で物質探索してきた結果、ペロブスカイト型構造をもつ $0.3\text{BaTiO}_3\text{-}0.1\text{Bi}(\text{Mg}_{1/2}\text{Ti}_{1/2})\text{O}_3\text{-}0.6\text{BiFeO}_3$ (BT-BMT-BF) が優れた強誘電性と圧電特性をもつことを見出した [1]。しかし、図1に示すように、X線回折パターンはピーク分離のない立方晶を示しており、擬立方晶と弁明しても、自発格子歪のほとんどないこのセラミックス材料がチタン酸バリウムよりも大きな $40 \mu\text{C}/\text{cm}$ に至るほどの自発分極をもつことや PZT に匹敵する圧電応答を示す理由を説明することはできなかった。さらに、特徴的なことは、セラミックスに電場印加しながら回折パターンを測定すると、極性点群から予想される特定の指数の回折ピークだけでなく、すべてのピークが一緒に大きくシフトすることである。このことは、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ことを示唆している。

その後、SPring-8 で本研究開始前に予備実験を行った結果、BT-BMT-BF は、 $T_c = 452 \text{ }^\circ\text{C}$ のペロブスカイト型強誘電体であり、室温では、結晶角が 90° からわずかにずれた菱面体晶 ($R3m$) であることがわかった。これらの結果をもとに、BT-BMT-BF の分極は、電場印加方向へ対称性とは関係なく秩序化できる乱れたイオン配置をもつ特定イオンのゆらぎにより発現する可能性があることを提案し、フラクチャード強誘電体 (fluctured ferroelectrics) と呼ぶことにした。一般に知られているような極性方向に限った秩序-無秩序型変動ではないユニークな分極発現機構で、優れた強誘電性と圧電性が観測されると考えた。このような自発格子ひずみをほとんどもたない物質が電場誘起相転移せずに強的に分極する仕組みについて直接証拠が示されれば、分極に係る新しい学理が展開されると期待した。

[1] I. Fujii et al. Appl. Phys. Lett. **108**, 172903 (2016).

2. 研究の目的

フラクチャード強誘電体と呼称することにした BT-BMT-BF が電場印加下で大きく分極する起源と、その分極が反転する動的仕組みを構造物性の観点から明らかにすることが本研究の目的である。そのために、SPring-8 において必要な放射光構造計測手法を構築した。電場印加しない状態では、立方晶に見えるが、電場印加下では構造ひずみが大きくなり何らかの強的な構造に変化しているはずである。ただし、電場下で相転移を示唆するような誘電異常がないことから電場誘起構造相転移はしないと考えられる。実験に関して、具体的には、セラミックスに対して、放射光粉末回折実験を行い、結晶構造の温度変化および DC 電場下での結晶構造の変化を計測し、分極の仕組みを明らかにする構造計測システムを開発する。また、AC 電場下では特異な誘電緩和現象が観測されるため、放射光単結晶回折実験により AC 電場下で時分割実験を行い、構造の動的挙動の一瞬を構造解析することで電場変化に追従できないイオンを可視化することができる計測システムも開発する。このように、誘電体材料に対して DC および AC 電場下で結晶構造を評価する一連の構造計測手法を構築することとした。

3. 研究の方法

電場のような一軸外場下で構造の本質的な変化を計測するためには、最終段階において、単結晶試料が不可欠である。できるだけ大きな単結晶の育成に挑戦し、結晶の適当な方向に電場印加しながら構造計測できるように単結晶を加工する手順を確立することとした。

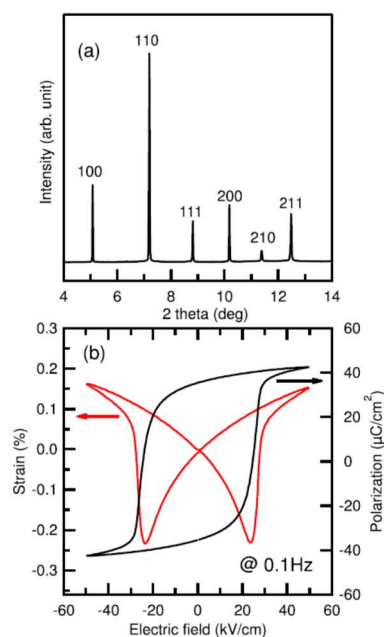


図1. 擬立方晶 BT-BMT-BF セラミックスの XRD パターンと S-E, P-E ヒステリシス曲線。

構造計測では、レーザー変位計を用いて電場印加方向の結晶寸法の変位も計測する。このデータを DC 電場印加下での X 線構造解析で得られる格子定数の変化と比較することで、予想されるマクロな外形変位が本質的なミクロな結晶格子の変化だけによるかどうかを検証することとした。DC 電場印加下での X 線構造解析では、原子変位や占有率の変化から分極に係る原子配置も調べることができる。

低い AC 周波数から誘電分散が観測されるのも BT-BMT-BF の特徴の一つである。その起源を明らかにするために、AC 電場下で時分割 X 線構造解析を行うこととした。交流電場の変化に追従できないイオンが特定できれば誘電分散の本質を明らかにできると期待した。

4. 研究成果

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）および藤井（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 の粉末・単結晶構造解析ビームラインで利用者指定重点研究課題のパワーユーザー・パートナーユーザーに指定されてきた実績がある。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、放射光を用いた数々の時分割実験に対応してきた。藤井は強誘電体・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。

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) 単結晶育成と電場印加下構造計測試料への加工

単結晶は、繰り返し固相反応法で育成した。最初、粒径 $0.5 \mu\text{m}$ の仮焼粉から出発した。この時、過剰の Bi_2O_3 を加えて焼結するとうまく粒成長することを見出した。粒成長したものを粉砕して比較的大きな結晶を種結晶として取り出し、仮焼粉を追加して再び成形体を作り、再度焼結した。粒成長する最適条件を探りながらこの過程を繰り返すことで、小さいながらも 0.2mm 程度の単結晶を成長させることに成功した。

この微小結晶を電場印加用試料に加工する手法の確立を行った。導線を直付けすることはできないので、大学の X 線装置で結晶方位決めをした微小結晶を、結晶の圧電伸縮を妨げない硬度で、かつ、絶縁性の高い樹脂で被覆した後、 0.1mm の厚さで 2mm 角程度の平板状に結晶を含む樹脂を整形し、厚さ方向に電場を印加するための金電極を蒸着した。このような方法で、電場印加用の単結晶試料を作成することができた。

(2) バルクセラミックス試料に対する DC 電場下放射光 X 線構造解析

① BT-BMT-BF セラミックス

セラミックス試料に対する粉末 X 線回折パターンを図 2 に示す。単一ピークに見える鋭い回折ピークが観測されることから、結晶系が立方晶系のように見える。セラミックス試料に電場を印加するとそれぞれのピークがそのまま大きくシフトしたので、そのシフト量から立方晶系の軸方向 ([100] 方向)、対角方向 ([110] 方向)、体対角方向 ([111] 方向) に電場が印加された時の格子ひずみを見積もった (図 2 挿入図)。図 1 の結果とほぼ同じひずみ曲線が得られたので、電場印加下でセラミックスの外形が変化する起源が主として結晶格子の伸縮によるものであることがわかった。

一方、立方晶系で強誘電性を示すとなると結晶学に矛盾する。放射光 X 線回折パターンから対称性を詳細に解析した結果、BT-BMT-BF セラミックスの結晶構造は立方晶系ではなく、結晶軸の間の角度が 90° からわずかに 0.024° ずれた菱面体晶系であることがわかった。それでも、このように限りなく立方晶系に近い物質が優れた強誘電性と圧電性を示すことは不思議なことであり、何か新しい機能発現機構があると考え、原子配置をより詳細に構造解析した。

図 3 に放射光 X 線回折パターンを解析することで得られた BT-BMT-BF セラミックスの結晶構造を示す。結晶構造は、ペロブスカイト型構造と呼ばれるもので、立方体に見える単位格子の角にバリウムまたはビスマスイオンが、体心にチタン、マグネシウムまたは鉄イオンが、そして、面心には酸素イオンが配置することが理想形である。しかし、電場ゼロにおいて、ビスマスイオンだけ単位格子の角の位置から結晶軸に沿った 6 方向の内、いずれかの方向に約 0.04nm だけずれた位置に配置していた。立方体の辺の長さが約 0.4nm なのでとても大きなオフセンター量であった。このビスマスイオンの構造みだれが静的なものか、あるいは、6 方向を熱的に飛び移っている動的なものかは X 線回折実験だけで判断するのは難しいので高分解能透過型電子顕微鏡観察により、静的なものであるという決定的な証拠を得ることができた。

このような結晶の [001], [011], [111] 方向にそれぞれ電場を印加すると、図 3 に示すように、

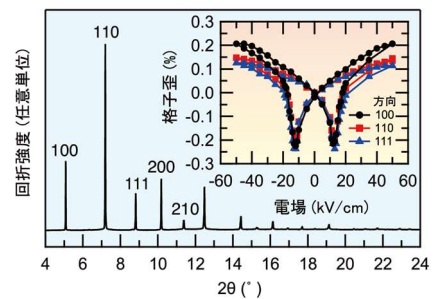


図 2. BT-BMT-BF セラミックスの X 線回折パターンと電場印加下での X 線回折実験から求めた格子ひずみ曲線 (挿入図)。

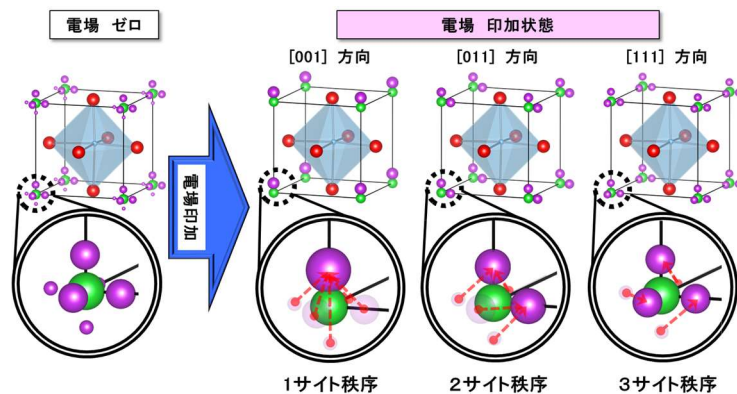


図3. BT-BMT-BF セラミックスの電場ゼロおよび電場を[001], [011], または[111]方向に印加したときの結晶構造. 単位格子の角から結晶軸の方向にずれた位置にある紫色のイオンがビスマスイオンであり, 電場を印加するとビスマスイオンが電場方向に集合しようとする. ビスマスイオンの存在確率を球の大きさで示している.

ビスマスイオンは結晶軸に沿ってずれた位置に配置するという性質はそのままに, 電場印加方向に集合することが DC 電場印加下での X線構造解析により明らかになった. このビスマスイオンの電場下での配置の偏りのために BT-BMT-BF セラミックスは大きく分極すると同時に圧電性も示す.

セラミックスは, ランダムな方向を向いたセラミック粒で構成されている. BT-BMT-BF セラミックスの場合, 通常の圧電セラミックスとは異なり, いかなる方向に電場印加してもその方向にビスマスイオンが偏ることができるので, すべてのセラミック粒が電場に対して応答できる. そのイメージを図4に示した. このことが大きな圧電性の起源であることを発見した.

(プレス発表 <https://www.hiroshima-u.ac.jp/news/60607>)

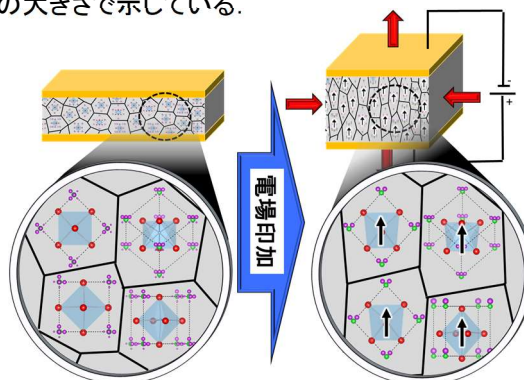


図4 BT-BMT-BF セラミックスに電場印加したとき, ランダムな方向を向いたすべてのマイクロセラミック粒が電場に応答して伸縮するイメージ. その結果, セラミックス全体は電場方向にマクロによく伸びる.

②BT-BF セラミックス

BMT を含まないより単純な BT-BF セラミックスにおいても, 同様の仕組みで強誘電性と圧電性が発現することを見出した. 放射光 X線回折実験と高分解能走査透過型電子顕微鏡観察の結果から, BF-BT の結晶構造において, ビスマスイオンだけが単位格子の頂点からずれた位置に存在していること, ビスマスイオンがオフセンターしている方向は数ナノメートルサイズの領域 (ナノドメイン) の中でそろっていること, 従来, 特性発現のメカニズムと考えられてきた「単位格子の伸び縮みの寄与 (本質的寄与)」は圧電効果の約 90%であることが明らかとなった. これらの結果から, 残りの約 10%は「ナノドメインの再配列」による寄与であるという新規メカニズムの提唱に至った. このようなナノドメインは他の強誘電体・圧電体セラミックスでも存在が知られており, 今回, 提唱されたメカニズムは BT-BF だけでなく他の多くの圧電材料においても, 特性向上に繋がる可能性があるとして, ビスマスイオンを含むナノドメインの導入が非鉛系セラミックス材料の機能向上のための設計指針となる可能性を示した.

(プレス発表 <https://www.hiroshima-u.ac.jp/news/75357>)

(3) 単結晶試料に対する AC 電場下放射光時分割 X線構造解析

BT-BMT-BF 単結晶の[111]方向に電場印加しながら, 静電容量の周波数依存性を測定すると, 周波数が高くなるほど静電容量が減少する誘電緩和と呼ばれる現象が比較的低周波領域で起こることを見出した. この期限を解明するために, AC 電場印加下でポンプ・プローブ法により時分割実験を行い, パルス X線を試料に照射することで特定の電場が印加された瞬間の結晶構造をその場観察した. 現在成果をまとめて論文投稿する準備をしている. オフセンターしたビスマスイオンが電気双極子の役割を担うことから, BT-BMT-BF の誘電緩和は, ビスマスイオンのつくるナノドメインの再配列が高周波下では AC 電場に追従できないことが原因と考えられる.

今後は, このような時分割実験の対応範囲を広げるために, 単結晶だけでなくセラミックスに対する計測手法を開発することが重要と考える.

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計19件（うち査読付論文 19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 P. Sapkota, I. Fujii, S. Kim, S. Ueno, C. Moriyoshi, Y. Kuroiwa and S. Wada	4. 巻 48
2. 論文標題 Mn-Nb Co-doping in Barium Titanate Ceramics by Different Solid-state Reaction Routes for Temperature Stable and DC-bias Free Dielectrics	5. 発行年 2022年
3. 雑誌名 Ceram. Int.	6. 最初と最後の頁 2154-2160
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1016/j.ceramint.2021.09.304	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 H. Nam, I. Fujii, S. Kim, T. Ishii, S. Ueno, G. P. Khanal, Y. Kuroiwa and S. Wada	4. 巻 61
2. 論文標題 Composition Dependence of Structural and Piezoelectric Properties in Bi(Mg0.5Ti0.5)O3-modified BaTiO3-BiFeO3 ceramics	5. 発行年 2022年
3. 雑誌名 Jpn. J. Appl. Phys.	6. 最初と最後の頁 SN1033/1-9
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.35848/1347-4065/ac85c7	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 P. Sapkota, I. Fujii, S. Kim, S. Ueno, Y. Kuroiwa and S. Wada	4. 巻 61
2. 論文標題 Development of Superparaelectric BaTiO3 System Ceramics through Heterovalent Mn-Nb Co-doping for DC-bias Free Dielectrics	5. 発行年 2022年
3. 雑誌名 Jpn. J. Appl. Phys.	6. 最初と最後の頁 SN1023/1-6
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.35848/1347-4065/ac82a4	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. Kim, R. Miyauchi, Y. Sato, H. Nam, I. Fujii, S. Ueno, Y. Kuroiwa and S. Wada	4. 巻 35
2. 論文標題 Piezoelectric Actuation Mechanism Involving Extrinsic Nanodomain Dynamics in Lead-Free Piezoelectrics	5. 発行年 2023年
3. 雑誌名 Adv. Mater.	6. 最初と最後の頁 2208717/1-11
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1002/adma.202208717	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 L. Wu, S. Kim, C. Moriyoshi, M. Suzuki, K. Shinoda, R. Aoyagi, J. Akedo and Y. Kuroiwa	4. 巻 122
2. 論文標題 Stability of Ferroelectric Phase and Structural Characteristics in Oriented PbTiO ₃ Ceramic Coating Formed by Aerosol Deposition Method	5. 発行年 2023年
3. 雑誌名 Appl. Phys. Lett.	6. 最初と最後の頁 142903/1-6
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1063/5.0140533	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, Nam Hyunwook, Fujii Ichiro, Ueno Shintaro, Moriyoshi Chikako, Kuroiwa Yoshihiro, Wada Satoshi	4. 巻 205
2. 論文標題 A-site cation off-centering contribution on ferroelectricity and piezoelectricity in pseudo-cubic perovskite structure of Bi-based lead-free piezoelectrics	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 Scripta Materialia	6. 最初と最後の頁 114176 ~ 114176
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1016/j.scriptamat.2021.114176	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 Wu Lin, Kim Sangwook, Moriyoshi Chikako, Kuroiwa Yoshihiro, Suzuki Muneyasu, Shinoda Kentaro, Aoyagi Rintaro, Akedo Jun	4. 巻 60
2. 論文標題 Synthesis of Pb(Zr, Ti)O ₃ fine ceramic powder at room temperature by dry mechanochemical solid-state reaction evaluated using synchrotron radiation X-ray diffraction	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 Japanese Journal of Applied Physics	6. 最初と最後の頁 SFFA02 ~ SFFA02
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.35848/1347-4065/ac0c6e	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, Nam Hyunwook, Fujii Ichiro, Ueno Shintaro, Moriyoshi Chikako, Kuroiwa Yoshihiro, Wada Satoshi	4. 巻 60
2. 論文標題 Material softening by cation off-centering in Bi-based lead-free piezoelectric ceramics	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 Japanese Journal of Applied Physics	6. 最初と最後の頁 SFFD01 ~ SFFD01
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.35848/1347-4065/ac0fb5	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 藤井 一郎, 和田 智志, Kim Sangwook, 黒岩 芳弘	4. 巻 56
2. 論文標題 擬立方晶強誘電体セラミックスにおける圧電応答機構	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 セラミックス	6. 最初と最後の頁 475 ~ 478
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 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 064104/1-9
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 Zhao Qing, Abe Tomohiro, Moriyoshi Chikako, Kim Sangwook, Taguchi Ayako, Moriwake Hiroki, Sun Hong-Tao, Kuroiwa Yoshihiro	4. 巻 59
2. 論文標題 Charge order of bismuth ions and nature of chemical bonds in double perovskite-type oxide BaBiO ₃ visualized by synchrotron radiation X-ray diffraction	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 Japanese Journal of Applied Physics	6. 最初と最後の頁 095505/1-8
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.35848/1347-4065/abb00d	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 Kuroiwa Yoshihiro, Kim Sangwook, Fujii Ichiro, Ueno Shintaro, Nakahira Yuki, Moriyoshi Chikako, Sato Yukio, Wada Satoshi	4. 巻 1
2. 論文標題 Piezoelectricity in perovskite-type pseudo-cubic ferroelectrics by partial ordering of off-centered cations	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 Communications Materials	6. 最初と最後の頁 71/1-8
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1038/s43246-020-00072-4	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 Kim Sangwook, Noda Shota, Abe Tomohiro, Yokoi Yuto, Nakahira Yuki, Moriyoshi Chikako, Kuroiwa Yoshihiro	4. 巻 59
2. 論文標題 Electric-field-induced structural changes for cubic system of lead-free and lead-based perovskite-type oxides	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 Japanese Journal of Applied Physics	6. 最初と最後の頁 SPPA05/1-5
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.35848/1347-4065/aba554	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 Abe Tomohiro, Wu Lin, Moriyoshi Chikako, Kuroiwa Yoshihiro, Suzuki Muneyasu, Shinoda Kentaro, Aoyagi Rintaro, Akedo Jun	4. 巻 59
2. 論文標題 Synchrotron radiation X-ray diffraction evidence for nature of chemical bonds in Bi4Ti3O12 ceramic powders and grain-orientation mechanism of their films formed by aerosol deposition method	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 Japanese Journal of Applied Physics	6. 最初と最後の頁 SPPA04/1-5
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.35848/1347-4065/aba50d	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 FY2014 Partner User Activity Report 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 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 該当する

1. 著者名 黒岩芳弘	4. 巻 55
2. 論文標題 放射光で観た室温セラミックコーティング膜の選択配向と原料粉末の化学結合の特徴	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 セラミックス	6. 最初と最後の頁 727-730
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 安部友啓, 黒岩芳弘	4. 巻 58
2. 論文標題 放射光 X 線回折を利用したセラミックコーティングの構造評価	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 溶射	6. 最初と最後の頁 24-30
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 Abe Tomohiro, Kim Sangwook, Moriyoshi Chikako, Kitanaka Yuuki, Noguchi Yuji, Tanaka Hiroshi, Kuroiwa Yoshihiro	4. 巻 117
2. 論文標題 Visualization of spontaneous electronic polarization in Pb ion of ferroelectric PbTiO ₃ by synchrotron-radiation x-ray diffraction	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 Applied Physics Letters	6. 最初と最後の頁 252905 ~ 252905
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1063/5.0037396	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 Ma Ju-Ping, Chen Jia-Kai, Yin Jun, Zhang Bin-Bin, Zhao Qing, Kuroiwa Yoshihiro, Moriyoshi Chikako, Hu Lili, Bakr Osman M., Mohammed Omar F., Sun Hong-Tao	4. 巻 2
2. 論文標題 Doping Induces Structural Phase Transitions in All-Inorganic Lead Halide Perovskite Nanocrystals	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 ACS Materials Letters	6. 最初と最後の頁 367 ~ 375
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1021/acsmaterialslett.0c00059	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

〔学会発表〕 計39件 (うち招待講演 8件 / うち国際学会 16件)

1. 発表者名 S. Kim, H. Nam, I. Fujii, S. Ueno, C. Moriyoshi, Y. Kuroiwa and S. Wada
2. 発表標題 Role of A-site Cation Off-centering in Perovskite Pseudo-cubic Structure of Bi-based Piezoelectrics
3. 学会等名 Electronic Materials and Applications 2022 (EMA 2022) (国際学会)
4. 発表年 2022年

1 . 発表者名 Y. Kuroiwa
2 . 発表標題 Structural Study on Emergent Ferroelectricity in Perovskite-type Oxides by Synchrotron Radiation X-ray Diffraction
3 . 学会等名 15th International Symposium on Ferroic Domains & Micro- to Nano-scopic Structures (ISFD-15) (招待講演) (国際学会)
4 . 発表年 2022年

1 . 発表者名 N. Fukushima, S. Kim, S. Ueno, I. Fujii, S. Wada and Y. Kuroiwa
2 . 発表標題 SXRD Electron Density Study on Phase Transitions in BaTiO ₃ Nanocube
3 . 学会等名 15th International Symposium on Ferroic Domains & Micro- to Nano-scopic Structures (ISFD-15) (国際学会)
4 . 発表年 2022年

1 . 発表者名 T. Hokii, S. Kim, Y. Yatabe, Y. Nakahira, C. Moriyoshi, H. Osawa, M. Hirose, I. Fujii, S. Ueno, Y. Sato, S. Wada and Y. Kuroiwa
2 . 発表標題 Piezoelectricity Caused by Partial Ordering of Bismuth-ions in Perovskite-type Pseudo-cubic Ferroelectrics
3 . 学会等名 15th International Symposium on Ferroic Domains & Micro- to Nano-scopic Structures (ISFD-15) (国際学会)
4 . 発表年 2022年

1 . 発表者名 S. Mingyang, K. Furuta, S. Kim, I. Fujii, S. Ueno, S. Wada and Y. Kuroiwa
2 . 発表標題 Core-Shell Structure of Heteroepitaxial KNbO ₃ /BaTiO ₃ Nanocomposite Particles Studied by Synchrotron Radiation X-ray Diffraction
3 . 学会等名 15th International Symposium on Ferroic Domains & Micro- to Nano-scopic Structures (ISFD-15) (国際学会)
4 . 発表年 2022年

1 . 発表者名 T. Shigemasu, S. Kim, C. Moriyoshi, G. Li, C.-H. Park and Y. Kuroiwa
2 . 発表標題 Electron Charge Density Study on Antiferroelectric Phase Transition in Pb-based B-site Ordered Double Perovskite
3 . 学会等名 15th International Symposium on Ferroic Domains & Micro- to Nano-scopic Structures (ISFD-15) (国際学会)
4 . 発表年 2022年

1 . 発表者名 G. P. Khanal, I. Fujii, S. Ueno, S. Kim, M. Miyakawa, T. Taniguchi, Y. Kuroiwa and S. Wada
2 . 発表標題 Structural and Electrical Characteristics of Lead-free BiAlO ₃ -based Piezoelectric Ceramics Prepared by High-Pressure Sintering
3 . 学会等名 15th International Symposium on Ferroic Domains & Micro- to Nano-scopic Structures (ISFD-15) (国際学会)
4 . 発表年 2022年

1 . 発表者名 H. Nam, S. Kim, I. Fujii, S. Ueno, Y. Kuroiwa and S. Wada
2 . 発表標題 A-site Bi ion Off-centering Contribution on Piezoelectricity in Bi(Mg _{0.5} Ti _{0.5})O ₃ -modified BiFeO ₃ -BaTiO ₃ Piezoelectric Ceramics
3 . 学会等名 15th International Symposium on Ferroic Domains & Micro- to Nano-scopic Structures (ISFD-15) (国際学会)
4 . 発表年 2022年

1 . 発表者名 P. Sapkota, I. Fujii, S. Kim, S. Ueno, Y. Kuroiwa and S. Wada
2 . 発表標題 Inducing Superparaelectricity in BaTiO ₃ Ceramics through Heterovalent Co-doping for DC-bias Free Dielectrics
3 . 学会等名 15th International Symposium on Ferroic Domains & Micro- to Nano-scopic Structures (ISFD-15) (国際学会)
4 . 発表年 2022年

1. 発表者名 T. Shigemasu, S. Kim, C. Moriyoshi, G. Li, C.-H. Park and Y. Kuroiwa
2. 発表標題 Characteristics of Chemical Bonding and Thermal Behavior of Atoms in Prototype Structure of Double Perovskite-type Antiferroelectric Oxides
3. 学会等名 The 14th Japan-China Symposium on Ferroelectric Materials and Their Applications (JCFMA-14) (国際学会)
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 S. Mingyang, K. Furuta, S. Kim, I. Fujii, S. Ueno, S. Wada and Y. Kuroiwa
2. 発表標題 Crystal Structure of KNbO ₃ /BaTiO ₃ Core-Shell Nanocomposite Particles Studied by Synchrotron Radiation X-ray Diffraction
3. 学会等名 The 14th Japan-China Symposium on Ferroelectric Materials and Their Applications (JCFMA-14) (国際学会)
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 Y. Kuroiwa
2. 発表標題 Synchrotron Radiation X-ray Diffraction Evidence for Chemical Bonding of Ferroelectric Ceramic Powders and Grain Orientations in Their Films Coated by Aerosol Deposition Method
3. 学会等名 9th Tsukuba International Coating Symposium (TICS 9) (招待講演) (国際学会)
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 Piyush Sapkota, 藤井一郎, Sangwook Kim, 上野慎太郎, 黒岩芳弘, 和田智志
2. 発表標題 Proposal of a new concept, "Chemical Grain Size" to Induce Superparaelectricity into BaTiO ₃ System Ceramics through Heterovalent Co-doping for Wide Temperature Stable and DC-bias free Dielectrics
3. 学会等名 第39回強誘電体応用会議(FMA-39)
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 Hyunwook Nam, Sangwook Kim, 藤井一郎, 上野慎太郎, 黒岩芳弘, 和田智志
2. 発表標題 Role of Bi and Mg Ions in Bi(Mg _{0.5} Ti _{0.5})O ₃ -modified BaTiO ₃ -BiFeO ₃ Based Piezoelectric Ceramics
3. 学会等名 第39回強誘電体応用会議 (FMA-39)
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 保木井貴大, Kim Sangwook, 矢多部優介, 中平夕貴, 森吉千佳子, 大沢仁志, 藤井一郎, 上野慎太郎, 佐藤幸生, 和田智志, 黒岩芳弘
2. 発表標題 ヒスマスを含む擬立方晶ペロブスカイト型強誘電体の圧電特性
3. 学会等名 日本物理学会2022年秋季大会
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 繁樹鳳康, Kim Sangwook, 森吉千佳子, Li Guorong, Park Chul-Hong, 黒岩芳弘
2. 発表標題 反強誘電相転移する鉛を含むダブルペロブスカイト型酸化物のプロトタイプ構造における化学結合と原子の熱挙動の特徴
3. 学会等名 日本物理学会2022年秋季大会
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 白川皓介, 福島凧世, Kim Sangwook, Nam Hyunwook, 藤井一郎, 上野慎太郎, 和田智志, 黒岩芳弘
2. 発表標題 BaTiO ₃ 八面体結晶の構造相転移
3. 学会等名 第70回応用物理学会春季学術講演会
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 有賀資起, Kim Sangwook, Nam Hyunwook, 上野慎太郎, 藤井一郎, 和田智志, 黒岩芳弘
2. 発表標題 BT-BMT-BF強誘電体の結晶構造に対する急冷処理の影響
3. 学会等名 第70回応用物理学会春季学術講演会
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 I. Fujii, S. Ueno, Y. Sato, Y. Kuroiwa and S. Wada
2. 発表標題 Fabrication of Pseudo-cubic BaTiO ₃ -Bi(Mg ^{1/2} Ti ^{1/2})O ₃ -BiFeO ₃ Ceramics and Origin of Ferroelectric and Piezoelectric Responses
3. 学会等名 2021 Joint ISAF-ISIF-PFM Virtual Conference (招待講演) (国際学会)
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 Y. Kuroiwa
2. 発表標題 Study of Materials Structure Physics of Perovskite-type Ferroelectrics by Synchrotron Radiation X-ray Diffraction
3. 学会等名 Joint Conference of the Asian Meeting on Ferroelectricity (AMF) and the Asian Meeting on Electroceramics (AMEC) (招待講演) (国際学会)
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 S. Kim, Y. Kuroiwa, Y. Yatabe, M. Hattori, Y. Nakahira, I. Fujii, S. Ueno, C. Moriyoshi, Y. Sato and S. Wada
2. 発表標題 Origin of Piezoelectricity by Partial Ordering of Off-centered Cation in Perovskite-type Pseudo-cubic Structure
3. 学会等名 Joint Conference of the Asian Meeting on Ferroelectricity (AMF) and the Asian Meeting on Electroceramics (AMEC) (国際学会)
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 Y. Kuroiwa
2. 発表標題 Electron Charge Density Study of Lead-containing Perovskite-type Oxides
3. 学会等名 The 13th China and Japan Symposium on Ferroelectric Materials and Their Applications (CJFMA13) (招待講演) (国際学会)
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 矢多部優介, 中平夕貴, 服部真央, Kim Sangwook, 森吉千佳子, 黒岩芳弘, 廣瀬美那子, 藤井一郎, 上野慎太郎, 和田智志, 佐藤幸生
2. 発表標題 擬立方晶ペロブスカイト型非鉛圧電材料の構造物性
3. 学会等名 第38回強誘電体応用会議 (FMA-38)
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 L. Wu, S. Kim, C. Moriyoshi, Y. Kuroiwa, M. Suzuki, K. Shinoda, R. Aoyagi and J. Akedo
2. 発表標題 Structural Characterization of Pb(Zr _{1-x} Ti _x)O ₃ Fine Ceramic Powder Synthesized by Dry Mechanochemical Solid-state Reaction Using Synchrotron Radiation X-ray Diffraction
3. 学会等名 第38回強誘電体応用会議 (FMA-38)
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 山内礼士, Kim Sangwook, 森吉千佳子, 黒岩芳弘, 藤井一郎, 上野慎太郎, 和田智志
2. 発表標題 チタン酸バリウム多面体微粒子の構造相転移
3. 学会等名 第38回強誘電体応用会議 (FMA-38)
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 S. Kim, H. Nam, I. Fujii, S. Ueno, C. Moriyoshi, Y. Kuroiwa and S. Wada
2. 発表標題 Material Softening by Cation Off-centering in Bi-based Lead-free Piezoelectric Ceramics
3. 学会等名 第38回強誘電体応用会議 (FMA-38)
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 黒岩芳弘
2. 発表標題 シンポジウム「エキゾチック強誘電体の展開」クロージング
3. 学会等名 日本物理学会2021年秋季大会（招待講演）
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 黒岩芳弘
2. 発表標題 シンポジウム「多様化する圧電材料研究 ~センサー, アクチュエーターから5G, IoTまで~」ペロブスカイト型酸化物の構造乱れと強誘電性・圧電性
3. 学会等名 第82回応用物理学会秋季学術講演会（招待講演）
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 山内礼士, Kim Sangwook, 森吉千佳子, 黒岩芳弘, 藤井一郎, 上野慎太郎, 和田智志
2. 発表標題 BaTiO ₃ 多面体微粒子の相転移と結晶構造
3. 学会等名 第82回応用物理学会秋季学術講演会
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 福島凧世, 山内礼士, Kim Sangwook, 森吉千佳子, 黒岩芳弘, 藤井一郎, 上野慎太郎, 和田智志
2. 発表標題 マイクロオーダーの粒サイズをもつBaTiO ₃ 多面体粒子の構造相転
3. 学会等名 第69回応用物理学会春季学術講演会
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 E. Nishibori, B. B. Iversen, J. Overgaard and Y. Kuroiwa
2. 発表標題 Advanced Structural Materials Science using High Energy X-ray with Two Dimensional Detector
3. 学会等名 SPRING-8シンポジウム2021
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 安部友啓, Wu Lin, 森吉千佳子, 黒岩芳弘, 鈴木宗泰, 篠田健太郎, 青柳倫太郎, 明渡純
2. 発表標題 放射光X線回折によるBi ₄ Ti ₃ O ₁₂ エアロゾルデポジション膜の構造評価
3. 学会等名 第37回強誘電体応用会議(FMA-37)
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 野田翔太, 安部友啓, 横井優人, 中平夕貴, 森吉千佳子, Sangwook Kim, 黒岩芳弘
2. 発表標題 鉛イオンの有無によるペロブスカイト型酸化物の立方晶構造に対する電場誘起構造の差異
3. 学会等名 第37回強誘電体応用会議(FMA-37)
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 宮内隆輝, 佐藤幸生, 寺西亮, 金子賢治, Kim Sangwook, 藤井一郎, 上野慎太郎, 中平夕貴, 森吉千佳子, 黒岩芳弘, 和田智志
2. 発表標題 0.8BiFeO ₃ -0.2BaTiO ₃ のナノおよび原子スケール構造解析
3. 学会等名 日本物理学会2020年秋季大会
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 黒岩芳弘
2. 発表標題 セラミック材料の化学結合の特徴と常温衝撃固化現象
3. 学会等名 第81回応用物理学会秋季学術講演会（招待講演）
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 安部友啓, 黒岩芳弘, 森吉千佳子, 鈴木宗泰, 篠田健太郎, 青柳倫太郎, 明渡純
2. 発表標題 強誘電体 Bi ₄ Ti ₃ O ₁₂ エアロゾルデポジション膜の配向メカニズム
3. 学会等名 日本電子材料技術協会第57回秋期講演大会
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 宮内隆輝, 佐藤幸生, 寺西亮, 金子賢治, Kim Sangwook, 藤井一郎, 上野慎太郎, 中平夕貴, 森吉千佳子, 黒岩芳弘, 和田智志
2. 発表標題 0.8BiFeO ₃ -0.2BaTiO ₃ の原子分解能電子顕微鏡解析
3. 学会等名 日本MRS主催「MRMフォーラム」
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 宮内隆輝, 佐藤幸生, 寺西亮, 金子賢治, Kim Sangwook, 藤井一郎, 上野慎太郎, 中平夕貴, 森吉千佳子, 黒岩芳弘, 和田智志
2. 発表標題 (1-x)BiFeO ₃ -xBaTiO ₃ (x = 0.2, 0.3, 0.4)におけるBiイオン変位とナノ構造の関係
3. 学会等名 応用物理学会主催「強制的秩序とその操作に関わる研究会第12回講演会」
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 Eiji Nishibori, Bo Brummerstedt Iversen, Jacob Overgaard and Yoshihiro Kuroiwa
2. 発表標題 Advanced Structural Materials Science using High Energy X-ray with Two Dimensional Detector
3. 学会等名 SPRING-8シンポジウム2020
4. 発表年 2020年

〔図書〕 計0件

〔産業財産権〕

〔その他〕

<p>【プレス発表】 いかなる方向にもよく伸びるセラミック材料のしくみを解明 ~ 立方晶のように見えるのになぜ優れた圧電性をもつのか? ~ https://www.hiroshima-u.ac.jp/news/60607</p> <p>【プレス発表】 鉛を使わなくても優れた強誘電性・圧電性が得られる セラミックス材料の設計指針を提案 ~ ビスマスイオンを含むナノドメインの導入 ~ https://www.hiroshima-u.ac.jp/news/75357</p>

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・分光推進室・研究員 (84502)	

6. 研究組織（つづき）

	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	藤井 一郎 (Fujii Ichiro) (20597645)	山梨大学・大学院総合研究部・准教授 (13501)	

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