

## 審査の結果の要旨

氏名 北中佑樹

強誘電体の分極反転機能は、不揮発性メモリーや圧電素子などの様々な電子デバイスに広く用いられている。それらのデバイスの多くには、チタン酸ジルコン酸鉛に代表される鉛系強誘電体材料が独占的に使用されており、材料の非鉛化が急務となっている。近年、鉛を含まない強誘電体材料として、ビスマス系強誘電体材料が注目されている。特性向上のための材料開発指針を得るには、粒界や基板の影響がない単結晶における系統的な物性評価が望まれるが、これまでにビスマス系強誘電体における有用な報告例はほとんど無い。これは、結晶育成時にビスマスの揮発に伴って生じる格子欠陥が、電界による分極反転を妨げ、特性を劣化させるためである。本研究は、ビスマス系強誘電体における特性劣化のメカニズムを解明し、ビスマス系強誘電体における機能設計指針を得ることを目的に、格子欠陥の生成を抑制して高品質単結晶を育成してその強誘電特性評価を行うとともに、強誘電ドメインの微細構造解析等により特性劣化のメカニズムを解明した成果をまとめたものである。

第1章では、研究背景としてビスマス系強誘電体の課題、単結晶育成手法、ドメイン微細構造解析法を概説し、研究目的と方針を述べている。

第2章では、高圧酸素下での溶液引き上げ(TSSG)法を用いて高品質単結晶の育成手法を確立した結果を述べている。加熱方法と炉内構造の検討および有限体積法に基づく熱流体解析により、融液近傍の温度分布を最適化し、単結晶成長に適した結晶育成環境を構築した。高圧酸素下における炉内の温度環境を制御する上で、熱対流の抑制が極めて重要であることを明らかにしている。

第3章では、高圧酸素下TSSG法によるチタン酸ビスマス(BiT)強誘電体単結晶の育成とその特性評価を行った結果を述べている。シード結晶からの単核成長によって結晶成長を促進させることにより、通常法では結晶育成が困難な低温域で大型なBiT結晶の育成に成功した。得られた結晶は、大気中で育成した結晶と比べて、非常に優れた強誘電特性と低いリーク電流特性を示すことを確認している。また、本方法による結晶において世界で初めて、電界誘起歪み測定

および共振・反共振波形測定による、BiT単結晶の圧電特性評価に成功している。

第4章では、高圧酸素下TSSG法によるチタン酸ビスマスナトリウム(BNT)強誘電体単結晶の育成および特性評価を行った結果を述べている。フラックス組成の最適化により、従来の育成法と比べて150 °C程度低い温度で、高圧酸素下TSSG法によるBNT単結晶の育成を達成している。得られたBNT単結晶は優れた強誘電特性と低いリーク電流特性を示し、高圧酸素下TSSG法がBNTにおいても単結晶の高機能化に有効であることを実証している。

第5章では、ビスマス系強誘電体結晶中に形成される強誘電ドメインの微細構造をPFMにより観察した結果を述べている。電界印加時のドメイン反転挙動を解析することにより、分極反転が阻害(クランプ)された強弾性ドメインが結晶中に残留することが分極特性の劣化をもたらすことを解明している。高圧酸素下で育成した高品質なBiTおよびBNTの単結晶においては、クランプされたドメインが減少し結晶のほぼ全域で分極反転が達成されることを明らかにした。

第6章では、格子欠陥が強弾性ドメインをクランプするメカニズムを、第一原理計算の結果を基に考察した結果を述べている。強誘電体の強弾性ドメイン構造において、格子欠陥の安定サイトを評価した結果、ドメイン壁近傍に最安定サイトが存在することが判明した。これに基き、電荷を帯びた格子欠陥、特に酸素空孔が強弾性ドメイン壁近傍に蓄積してドメイン壁の移動がクランプされる機構を提唱している。

第7章では、本研究で得られた結果を総括するとともに、今後の展望を述べている。

以上のように本論文では、酸素空孔が強弾性ドメイン壁の移動をクランプするという特性劣化機構を明らかにし、酸素空孔濃度を大幅に低減させて分極反転挙動を制御することがビスマス系強誘電体単結晶の高機能化に有効であることを実証している。これらの成果は、強誘電体の機能設計をはじめとする物性化学、材料科学の分野の今後の発展に寄与するところが多い。

よって本論文は博士(工学)の学位請求論文として合格と認められる。