

次世代圧電デバイス応用に向けた極低温フレクソエレクトリック効果精密測定手法の開発

東北大学 金属材料研究所*

石田 浩祐

1. はじめに

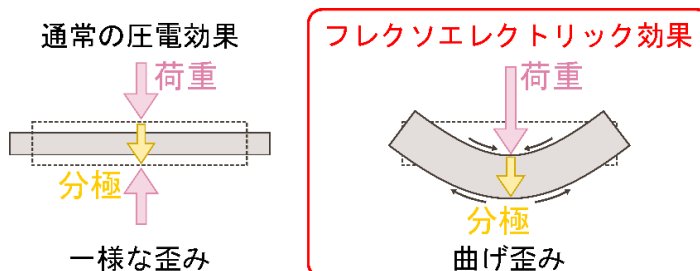
圧電現象は電気と力を結びつける基礎物理現象であり、19 世紀の発見以来、長きにわたり研究されている。我々の身の回りを見ても、センサー、アクチュエーター、ブザーなど、圧電効果を利用して実社会で役立っているデバイスが数多く存在する。圧電効果は物質内に一様な歪みが生じるとそれに比例した電気分極が生じる現象であり、強誘電体のように空間反転対称性が破れた結晶構造において一般的に現れる。これに対し、二次の電気-力相関現象として、曲げ歪みのような空間依存する歪み、すなわち歪み勾配が物質に生じた際にそれに比例した電気分極が生じる現象はフレクソエレクトリック効果と呼ばれている（図 1）。ここでは生じる歪み勾配自体が空間反転対称性を破るため、圧電効果とは異なり空間反転対称性の有無によらず任意の結晶構造で対称性の観点から発現し得る。

二次の効果であるフレクソエレクトリック効果は一次の圧電効果よりも微小であると考えられてきたため、これまであまり注目されてこなかった。しかし、理論予測よりもはるかに大きい効果が観測されたのを契機に近年非常に高い関心を集め始めている[1]。特に最近発展が著しい微細加工技術を用いて数 nm 程度まで物質を微細化すれば、素子内で生じる歪み勾配が非常に大きくなり、従来の圧電効果に匹敵する超巨大なフレクソエレクトリック効果が生じ得ると指摘され、これを利用した次世代圧電デバイスの開発が期待されている[2]。

2. 従来のフレクソエレクトリック効果測定手法と課題

しかしながら、圧電デバイス開発の指針を立てていく上で不可欠なフレクソエレクトリック効果の微視的機構の解明は依然として大きな課題となっている。その根本的な原因の 1 つが歪み勾配を精密に制御・誘起することが実験的に非常に難しく、実際の測定例が圧電効果と比べ圧倒的に少ないという点であった。これまでフレクソエレクトリック効果の測定には大型の動的機械分析装置が多用されてきたが、これは本来鉄鋼材料の強度測定に用いられるものであるため測定試料のサイズが数 cm 以上である必要があった。また測定は大型の装置であるために基本的に室温で行われ、低温での測定例は極端に少ないなど測定条件に強い制約が存在していた。

図 1 フレクソエレクトリック効果



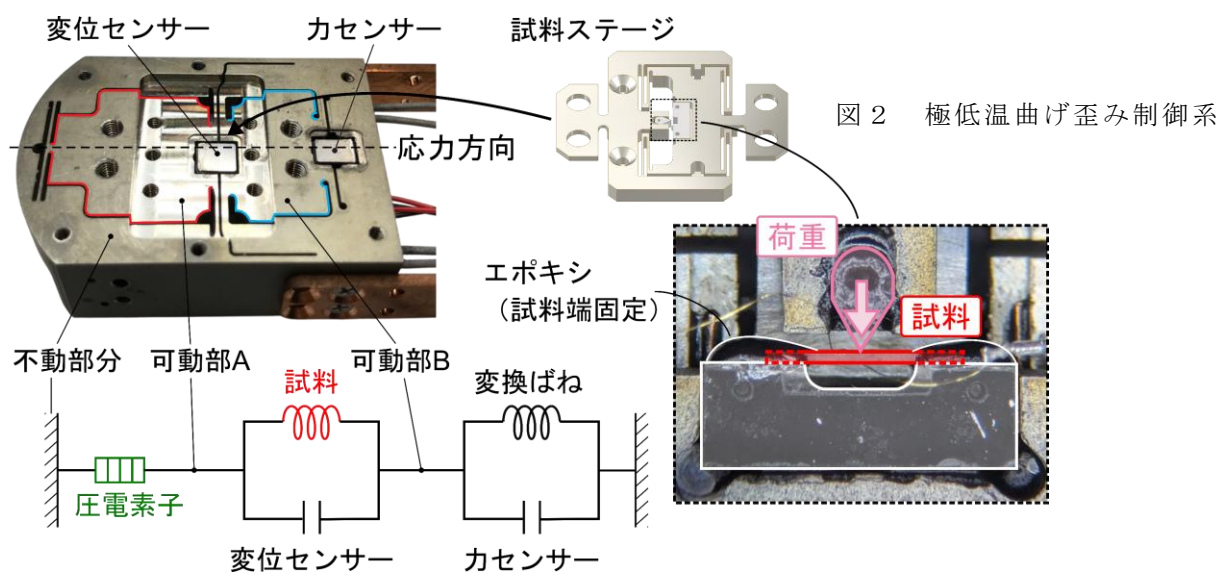
3. 本研究の目的

本研究の目的は、1 mm 以下の微小単結晶試料に対しても適用可能な液体ヘリウム温度までの極低温フレクソエレクトリック効果測定手法を確立することである。従来は困難であった 1 mm サイズの微小試料での測定が可能となれば、広範な物質における測定結果の比較を通じて、巨大なフレクソエレクトリック効果の発現に必要な条件の解明が進み、さらには同効果をより精密に評価できるようになる。また、物質の基底状態に近く熱励起の影響が極限まで抑えられた極低温下での測定は、現象の微視的理解を深める上で極めて重要である。本研究では、この新手法の有用性を原理実証することでフレクソエレクトリック効果の研究にブレークスルーをもたらし、将来的な革新的圧電デバイスの開発へと繋がる草分け的な研究となることを目指した。

4. 極低温フレクソエレクトリック効果精密測定系の構築

極低温でのフレクソエレクトリック効果精密測定を実現するためには、従来の動的機械分析装置を用いる手法よりも測定系全体を大幅に小型化する必要がある。そこで本研究では、圧電素子を駆動源とした新しい一軸応力精密制御装置を用いた。この装置は液体ヘリウム冷凍機内に導入可能なサイズであり、極低温・強磁場といった複合極限環境下での測定にも対応できる。これまで同装置は、1 mm サイズの試料に一軸応力を印加して一様な歪みを導入する目的で用いられてきたが、本研究では試料の両端を固定し、中央部分にのみ局所的な荷重を印加する両持ち梁型の試料ステージを新しく設計・開発することで、試料への曲げ歪みの導入を可能にした（図2）。

中心部分に印加する荷重は装置内の圧電素子へ印加する電圧を介して、その場で可変制御可能である。また、その荷重の大きさと実際に試料に生じた変位は、キャパシタンスセンサーによって両方とも高精度に検出できる。最終的に、これら検出された荷重と変位の値に基づき、両持ち梁モデルを用いた計算式から、実際に試料内に生じた歪み勾配を算出した。



5. KTaO_3 における極低温フレクソエレクトリック効果測定

開発した測定系を用いて、量子常誘電体 KTaO_3 におけるフレクソエレクトリック効果の測定を行った。フレクソエレクトリック効果は物質の誘電率が高いほど顕著になることが知られており、極低温に向けて誘電率が発散的に増大しつつも強誘電転移を起こさない量子常誘電体 KTaO_3 は極低温までの効果を観測しやすいと考えた。また本物質は極低温まで空間反転対称性を保持した結晶構造となっているため通常の圧電効果は原理的に生じえず、電気分極が生じた際はフレクソエレクトリック効果由来と考えられる点も考慮した。加えて、 KTaO_3 は単結晶基板としての市販品が広く流通しており、測定系の立ち上げ初期における様々な試行錯誤において、高品質な試料を安定して入手できる点もメリットであると考えた。

実験では、本手法を用いて KTaO_3 に曲げ歪みを誘起しながらエレクトロメータを用いた焦電流測定による分極評価を行った。さらに、時間変動する動的な曲げ歪みを誘起した際にそれに呼応して試料に生じる交流電流をロックインアンプで精密測定し、交流フレクソエレクトリック係数を直接評価することを行った。

まず、試料に曲げ歪みを導入した際の焦電流測定を 2 K から 100 K まで昇温することで行い、分極が誘起されていることを確認した。この誘起分極が曲げ歪みに由来するものであるかを実証することが重要であるが、本手法の両持ち梁型のセットアップでは歪み勾配の正負が試料中心と試料端で反転する。そこで試料中心と試料端にそれぞれ個別に電極を蒸着し、各領域で生じる電気分極を測定したところ、分極の向きが互いに反転していることを確認した。この結果は一様な歪みに起因する通常の圧電効果では説明がつかず、歪み勾配によって分極が生じるフレクソエレクトリック効果に由来する証拠であると結論付けた（図 3）。

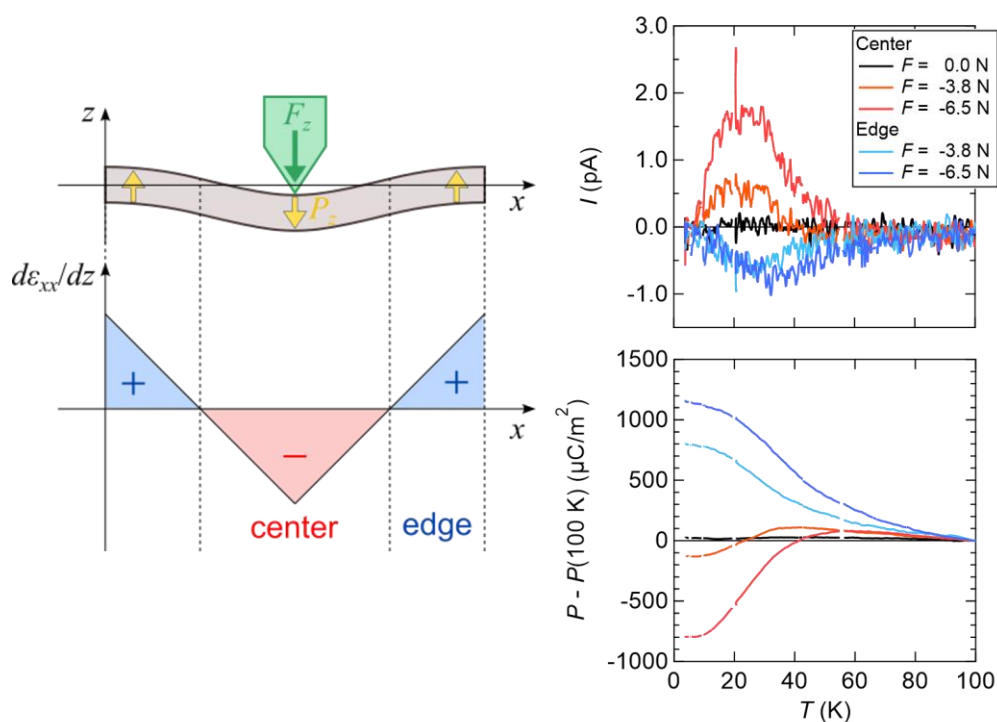


図 3 KTaO_3 における曲げ歪み制御下焦電流測定

さらに興味深いことに、この分極はある特定の温度以下で発達し始めており、曲げ歪みによって有限の分極をもつ秩序相を誘起できることを見出した。この秩序相が発現する温度は、導入する曲げ歪みが強くなるにつれて高温側へシフトし、安定化していく（図4）。また、この秩序相が発現する温度において、誘電率には明確な発散的振る舞いが見られない一方で、交流フレクソエレクトリック係数は明瞭なピークを示した。すなわち、この秩序相は通常の強誘電相とは本質的に異なる性質を示している。空間反転対称性を破る曲げ歪みは強誘電相に対する共役な外場として作用するため本現象は通常の二次相転移とは考えづらい。磁性体におけるメタ磁気転移とのアナロジーから、我々はこの現象を「メタフレクソエレクトリック転移」とも呼ぶべき新奇な相転移現象であると考えている。

以上の測定を通して、2 K までフレクソエレクトリック効果を測定する新しい手法を確立し、また KTaO_3 において曲げ歪みが誘起する有限分極相を発見した。以上の成果は、現在国際学術誌への論文投稿に向けた準備を進めている。

6. まとめ

本研究では、圧電素子を駆動源とした応力精密制御装置を基盤とし、液体ヘリウム温度までの極低温域に対応可能、かつ 1 mm サイズの微小単結晶試料にも適用できるフレクソエレクトリック効果測定手法を独自に開発した。さらに、量子常誘電体 KTaO_3 における実証実験を通じて、本手法の極めて高い有用性を証明することに成功した。本研究で確立した測定系は、広範な誘電体材料への適用を可能にすることでフレクソエレクトリック効果の微視的機構解明に貢献するだけでなく、空間反転対称性を破る外場として曲げ歪みを用いることで、未知の物性現象を開拓するための革新的な実験ツールになり得ることを示したといえる。

謝辞

本研究は（公益財団法人）天野工業技術研究所、2025 年研究助成を受けて実施されました。

参考文献

- 1) Wenhui Ma and L. Eric Cross, Appl. Phys. Lett. **79**, 4420 (2001).
- 2) M. S. Majdoub, P. Sharma, and T. Çağın, Phys. Rev. B **78**, 121407(R) (2008).

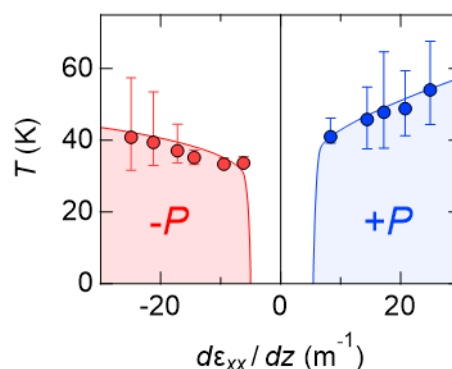


図4 KTaO_3 における歪み勾配誘起有限分極相