

令和 3 年 6 月 24 日現在

機関番号：10101

研究種目：基盤研究(C)（一般）

研究期間：2018～2020

課題番号：18K03476

研究課題名（和文）強誘電性ナノ結晶の強誘電ナノ秩序化現象の発現機構とフラクタル性

研究課題名（英文）Ferroelectric nano-ordering and fractal nature in ferroelectric nanocrystals

研究代表者

武貞 正樹（TAKESADA, Masaki）

北海道大学・理学研究院・准教授

研究者番号：30311434

交付決定額（研究期間全体）：（直接経費） 3,300,000円

研究成果の概要（和文）：本研究では強誘電体の大きさをナノメートルサイズまで極小化することで強誘電性相転移（マクロなスケールの物理現象）とは異なる強誘電性ナノ秩序化現象の発現と、ナノ秩序形成過程に現れるフラクタル性（自己相似性）についてフォノンダイナミクスの視点から調査が行われた。超臨界水熱合成法で作製された良質なチタン酸鉛ナノ結晶とチタン酸バリウムナノ結晶について高分解能広帯域光散乱分光実験でラマン過程による広帯域スペクトルと非線形光学効果によるハイパーレイリー散乱スペクトルについて温度依存性とサイズ依存性が測定され、スペクトル解析により強誘電性ナノ秩序化とフラクタル構造の関わりが解明された。

研究成果の学術的意義や社会的意義

協力現象について巨視的なスケールからナノメートル領域に至るサイズ効果は十分な解明がこれまでなされていない。主な理由として理論的には大きな自由度と境界条件の取り扱いの難しさ、また実験的には本質的な物性が評価できる良質なナノ結晶試料の作製の難しさにある。本研究では超臨界水熱合成法で作製された極めて良質な強誘電性ナノ結晶試料について高分解能広帯域光散乱分光を用いることで強誘電性ナノ秩序化現象の物理的発現機構の解明に重要な知見を得ることに成功し、本研究成果は「強誘電体の臨界サイズの問題」に対して物理学的起源の解明に重要な知見を与えた。

研究成果の概要（英文）：In the present study, the crossover from the ferroelectric phase transition to the ferroelectric nano-ordering phenomenon and the fractal nature (self-similarity) in the nano-ordering process were investigated from the viewpoint of phonon dynamics by minimizing ferroelectric crystals to nanometer size. The temperature dependence of the broadband spectra mainly due to Raman susceptibility and the hyper-Rayleigh scattering spectra due to the presence of a 2nd-order nonlinear susceptibility were observed in high-quality lead titanate nanocrystals and barium titanate nanocrystals prepared by supercritical hydrothermal synthesis using a high-resolution broadband light scattering spectroscopy, as well as the size dependence of ferroelectric nanocrystalline particles. The relationship between ferroelectric nano-ordering and fractal nature was clarified by spectral analysis.

研究分野：誘電体物理学

キーワード：強誘電性ナノ結晶 強誘電的ナノ秩序化 強誘電性ナノ秩序形成ダイナミクス 高分解能広帯域光散乱分光 トロイダル強誘電性 フラクタル 超臨界水熱合成法 チタン酸鉛

科研費による研究は、研究者の自覚と責任において実施するものです。そのため、研究の実施や研究成果の公表等については、国の要請等に基づくものではなく、その研究成果に関する見解や責任は、研究者個人に帰属します。

1. 研究開始当初の背景

強誘電性の発現には長距離的相互作用である電気双極子間相互作用が重要な役割を担う。そのため結晶の大きさをナノメートルサイズまで極小化するとマクロスコピックな物理現象である強誘電性相転移は顕著なサイズ効果を示すと予想される。従来の考えによると系の極小化に伴い強誘電性を発現する協力的相互作用が抑制され単純な強誘電性の消失が予想される。このような強誘電性のサイズ効果はデバイス技術の発展に大きな問題を生じさせている。積層セラミックスコンデンサ(MLCC)は一台のスマートフォンに千個ほどが使用されており機器の中で大きな容積を占め、更なる小型化には MLCC のより一層のダウンサイジングが強く要請される。現在、MLCC に用いられる強誘電体セラミックスの結晶粒子の粒径サイズは百ナノメートルに届くところまで来ている。しかしこれまでの報告で典型的な強誘電体で広く実用に用いられているチタン酸バリウムは粒径を 100nm 以下にすると MLCC で重要な物理量である誘電率が著しい低下を示す。また最近カード型のメモリーデバイスとして我々が身近に利用している強誘電体メモリ[Ferroelectric Random Access Memory: Fe RAM]において重要な強誘電性が臨界サイズ 30nm 以下で消失する「サイズ効果の問題」が顕在化する。

一方、近年の報告では、Naumov らが示す第一原理計算の結果はナノ結晶で幾何学的なトロイダル強誘電性を理論的に予言し新しい強誘電性のナノ秩序化を示している。また実験的に従来の臨界サイズより小さい 10nm 以下のチタン酸バリウムで強誘電的な秩序形成が走査型透過電子顕微鏡や圧電応答顕微鏡を用いた観察で報告されておりナノサイズ領域の新しい強誘電的なナノ秩序化現象の発現機構の物理的解明に興味を持たれる。

2. 研究の目的

本研究では従来の報告で示された強誘電性の臨界サイズ領域近傍において良質なナノ結晶の強誘電性ナノ秩序形成に伴う不安定化モードを調べ新奇な強誘電性ナノ秩序化の発現機構を解明する。ここでは強誘電性ナノ結晶の広帯域スペクトルで観測されるフラクタル性(自己相似性)と強誘電性ナノ秩序形成の相関に着目して幾何学的なナノ秩序形成現象について明らかにすることを目的としている。具体的にはマクロな系で強誘電性相転移の発現機構が異なることが知られている典型的な二つのペロフスカイト型強誘電体、チタン酸鉛とチタン酸バリウムについて調べマクロな従来の強誘電性相転移現象と極微サイズ領域の強誘電性ナノ秩序化現象を繋ぐ新しい物理的概念の構築を目指す。

3. 研究の方法

(1) 高分解能広帯域光散乱分光法を用いた広帯域スペクトルとハイパーレーリースペクトルの粒径依存性と温度依存性に関する測定。

(2) 超臨界水熱合成法によるチタン酸鉛ナノ結晶試料作製(産業技術総合研究所・伯田幸也副研究部長との共同研究)

(3) 超臨界水熱合成法によるチタン酸バリウムナノ結晶試料作製(産業技術総合研究所・伯田幸也副研究部長、陶研研究グループ長との共同研究)

(4) 原子精度走査型透過電子顕微鏡像の観察(九州大学・佐藤幸生准教授との共同研究)

(5) 中性小角散乱実験(総合科学研究機構(CROSS)・鈴木淳市部長、河村幸彦技師との共同研究)

4. 研究成果

(1) チタン酸鉛ナノ結晶の不安定化モード

超臨界水熱合成法で作製された臨界サイズ近傍にある粒径 6.5 nm、8 nm、12 nm のチタン酸鉛ナノ結晶試料を用いて室温で約 100cm^{-1} の広帯域スペクトルに観測される強誘電性 E(T0) ソフトモードの温度依存性とサイズ依存性が測定された。12 nm 試料で E(T0) モードと同定された減衰調和振動子型フォノンピークの振動数シフトの温度依存性は 100cm^{-1} から T_c 近傍に向かって 30% 程度のソフト化を、またスペクトル強度に関しては 70% 程度の減少をそれぞれ示し温度 T_c 近傍において顕著なスペクトル異常が測定された。一方、スペクトル幅に関しては T_c 近傍で僅かな異常が測定されるもののバルク試料が示す顕著なブロードニング異常は確認されなかった。チタン酸鉛のマクロな系において E(T0) ソフトモードは T_c においてソフトモード振動数が室温から約 50% の低下することが Ishikawa らによって報告されている。この結果と比較すると本研究で得られたチタン酸鉛ナノ結晶の E(T0) モードのソフト化はサイズ効果により抑制されていることを示唆する。また粒径がさらに小さな 6.5 nm 試料と 8 nm 試料についても 12 nm 試料と同様に E(T0) モードの温度依存性が測定された。粒径の減少に伴って室温で E(T0) モード振動数の減少がサイズ効果として測定された。また E(T0) モードの温度依存性は T_c 近傍で 12 nm 試料と同様にソフト化を示した。8 nm 試料で測定された E(T0) モードは 12 nm 試料と比較すると極小値を示す温度が高温側への僅かなシフトを示唆し、ソフトモード振動数に顕著な違いは測定されなかった。チタン酸鉛ナノ結晶で示された E(T0) ソフトモードのソフト化の抑制はナノ

秩序化形成過程に伴う強誘電的な極性揺らぎの相関長が有限サイズ効果により抑制されるためソフト化が抑制されるものと考えられる。また超臨界水熱合成法で作製されたチタン酸鉛ナノ結晶試料では、粒径 6.5 nm まで顕著な強誘電性ナノ秩序化温度の低下は観測されず、Ishikawara がチタン酸鉛ナノ結晶を用いてサイズ効果について調べられたラマン散乱実験の報告と相反する結果となった。

(2) チタン酸バリウムナノ結晶のナノ秩序化に伴うフォノン異常

チタン酸バリウムはマクロなスケールの試料において 403 K で常誘電性相の立方晶から c 軸に自発分極 Ps を持つ強誘電性相の正方晶へ強誘電性相転移を示し、さらに低温領域には 273 K において正方晶から [110] 方向に Ps を持つ直方晶へ、また 193 K において直方晶から [111] 方向に Ps をもつ菱面体晶相へ逐次相転移を示す。本研究では超臨界水熱合成法で作製されたチタン酸バリウムナノ結晶（臨界サイズ近傍の粒径サイズ 17 nm 試料と 30 nm 試料）について 40cm^{-1} から 800cm^{-1} 振動数領域で測定される格子振動フォノンに注目し、100 K から 500 K の温度領域でスペクトルを測定した。ここではハイパーレーザ散乱実験により第二次高調波発生 (SHG) 強度の温度依存性を調べ中心対称性の消失を確認した試料を用いた。本研究では特にチタン酸バリウムナノ結晶における逐次相転移がサイズ効果によりどのような変調を受けるか調べた。ペロフスカイト構造のチタン酸バリウムは立方晶相の対称性から格子振動モードはラマン不活性な三重縮退した Slater T_{1u} モード、Last T_{1u} モード、 O_6 distortion T_{1u} モード、Torsional T_{2u} モードからなる。ここでは特に正方晶相でラマン活性な明確なピークを示し他のモードとの重なりが少ないモードに注目してスペクトル解析を行った。注目するモードは、立方晶相の O_6 distortion T_{1u} モードが正方晶で縮退が解けて A_1 モードと E モードにスプリットするがこのうちの E モードとした。用いた二つの 17 nm 試料と 30 nm 試料において E モードは SHG 強度が消失する強誘電的なナノ秩序形成温度においてブロードなピーク異常を示し、また正方晶から直方晶への構造変化が予想される温度において 2 重縮退した E モードのスプリットを示唆する異常を測定することに成功した。この実験結果は粒径 17nm 試料と 30nm 試料が逐次相転移を示すこと初めて明らかにするものである。

(3) チタン酸鉛ナノ結晶のフラクタル性

典型的なペロフスカイト型強誘電体であるチタン酸鉛についてマクロなスケールを持つ一般的なバルクの単結晶試料では、 $T_c=766$ K で立方晶構造の常誘電性相から正方晶構造の強誘電性相へ強誘電性相転移を示す。結晶試料サイズをマクロなスケールからナノメートルサイズまで極微化するとチタン酸鉛において臨界サイズ 12.6 nm で強誘電性の消失が Raman 散乱実験で Ishikawara により報告されている。本研究ではこの臨界径近傍にある 6.5 nm、8 nm、12 nm の試料を超臨界水熱合成法で作製（産業技術総合研究所との共同研究）し、チタン酸鉛ナノ結晶試料の広帯域光散乱スペクトルのサイズ効果、および温度変化（室温 ($<T_c$) と高温 ($783\text{K}>T_c$)) に対するスペクトルの変化が測定された。またマクロなスケールの試料の結果と比較するため $5\mu\text{m}$ の試料についても同様の実験がおこなわれた。観測された広帯域スペクトルは 4 桁に及ぶ広い帯域でブロードな特徴的な動的構造を示す。常誘電性相（高温）と強誘電性相（室温）のスペクトルを比較すると $5\mu\text{m}$ の試料では 4 桁の広い帯域に及ぶ振動数領域で強誘電性ソフトモードの異常に伴った強度の増加とスペクトル形状の変化が観測された。一方、ナノ結晶試料の全ての試料において共通して広帯域スペクトルは 3cm^{-1} 以下の振動数領域で $5\mu\text{m}$ の試料と比較して顕著な強度変化が現れないことを明らかにした。 $5\mu\text{m}$ の試料で強誘電性の不安定化モードのスペクトル異常が測定された 3cm^{-1} 以上の振動数領域においてスペクトル変化の大きさが粒径サイズの減少に伴って小さくなる様子が測定された。この結果はナノ試料の粒径サイズの減少に伴いナノ秩序形成過程に関わるポラー領域の揺らぎの相関長が試料のダウンサイジングによるサイズ効果で抑制されるため、低エネルギー領域の動的構造に顕著な変化が生じないことを反映した結果であると考察される。ブリルアン散乱振動数領域のスペクトルは 8nm と 6.5nm の試料において温度上昇に伴った顕著なスペクトルのブロード化が観測された。ここで観測されたスペクトル異常はナノ秩序化現象における近距離的相互作用に起因した弾性異常の可能性を示唆するものであり今後さらに温度依存性の詳細を得ることでナノ秩序化機構の解明に重要な知見を与えるものと期待される。

(4) チタン酸鉛ナノ結晶の広帯域スペクトルのスペクトル解析

測定された広帯域スペクトルのスペクトル解析によりチタン酸鉛ナノ結晶のフラクタル性について考察がおこなわれた。スペクトル解析には下記の二つのモデルを用いて解析結果を比較し広帯域スペクトルの自己相似性について議論をおこなった。モデル 1 としてはデバイ緩和 (DR) と減衰調和振動子 (DHO) を複数重ね合わせた感受率を用い、一方、モデル 2 としては自己相似性に由来した冪関数 (PL) をモデル 1 に加えた感受率でスペクトル解析をおこなった。粒径 6.5 nm、8 nm、12 nm のそれぞれのチタン酸鉛ナノ結晶において 1 GHz から 6000 GHz (200cm^{-1}) の約 4 桁に及ぶ帯域で室温と高温のスペクトル解析をおこない以下の結果を得た。室温のモデル 1 を用いた解析結果は 6.5 nm 試料で 3 つの DR と 5 つの DHO、8nm 試料で 3DR & 6DHO、そして 12 nm 試料で 1DR & 7DHO によりスペクトルが再現された。一方、モデル 2 を用いた解析結果は 6.5 nm 試料で 1PL & 5DHO、8 nm 試料で 1PL & 5DHO、12 nm 試料で 1PL & 7DHO の結果をそれぞれで得た。12 nm 試料では二つのモデルで有意な差は認められないが、それより小さな粒径 6.5nm と 8nm で有

意な差が示される。この結果は粒径サイズの減少に伴って自己相似性が強くなる傾向を示唆すると考えられる。ナノ結晶が示すフラクタル性の起源として結晶内部のフラクタル構造に由来する可能性と、結晶の外側の外部構造に由来する可能性の二つが予想される。結晶内部のフラクタル構造に由来する場合はナノ結晶一粒子の体積が減少するとフラクタル構造を構成する要素の数が減少するため、フラクタル性を示す帯域の狭小化が期待される。しかし得られた実験結果に自己相似性が出現する帯域の顕著な変化は見られなかった。この実験結果からスペクトルに観測されるフラクタル構造はナノ結晶の外部に形成されたフラクタル性に由来するものと考えられる。

次に高温のスペクトルについてモデル1を用いた解析結果はそれぞれ6.5 nm 試料で3 DR & 5 DH0、8 nm 試料で3 DR & 6 DH0、12 nm 試料で3 DR & 4 DH0 と得られた。室温と高温の解析結果を比較すると温度上昇に伴ってDH0の数が減少しDRの数の増加が見られるが、これはフォノン寿命が温度上昇に伴い減少し、フォノンが減衰調和振動子から過減衰型ヘクロスオーバーした結果を反映するものと考察される。またモデル2に対しては解析結果として6.5 nm 試料で1 PL & 1 DR & 4 DH0、8 nm 試料で1 PL & 1 DR & 4 DH0、12 nm 試料で1 PL & 4 DH0 が得られた。室温の解析結果と同様に高温の結果は6.5 nm と8 nm の試料でスペクトルの自己相似性が顕著になることを示しており、スペクトル構造が示すフラクタル性はナノ結晶のサイズより大きな外部構造に由来することを示唆する。本研究によりナノ結晶が示すフラクタル性の起源について新しい知見を得ることに成功した。さらにここで得られた広帯域スペクトルの解析結果は超臨界水熱合成法で作製されたチタン酸バリウムナノ結晶を用いて中性子小角散乱実験で得た結果（総合科学研究機構、産業技術総合研究所、北海道大学）と矛盾しないことを明らかにした。

(5) 広帯域スペクトルのフラクタル次元解析

解析に用いた冪関数の冪指数のサイズ依存性は室温と高温の両方についてサイズの増加に伴って増大を示す。冪指数の粒径に対する増加率は高温で顕著になり、またその冪指数の値は温度の上昇に伴って減少する傾向を示した。スペクトルによるフラクタル次元解析に従うと冪指数の値はフラクタル次元の大きさを反映し冪指数の減少はフラクタル次元の低下を示す。このことから得られた実験結果はサイズの減少に伴ってフラクタル次元の低下を示し、また温度の低下によりフラクタル次元の増大を示唆する。さらに結晶サイズの減少によって温度に対するフラクタル次元の変化率が顕著に増大する結果を得た。実験では決まった粒径サイズのナノ結晶粒子で構成された粉末試料を用いているが、スペクトル解析で得られた結果は極性をもつ多数のナノ結晶が完全にランダムに空間に配置するのではなく、極性ナノ粒子間の双極子間相互作用により極性因子を要素とするフラクタル構造を形成している可能性を示唆する。また温度の上昇に伴い結晶内に形成される極性が温度揺らぎで抑制され極性因子の数とそれぞれの体積が減少しフラクタル次元が低下する要因になっているものと考えられる。粒径サイズの減少によりフラクタル次元が減少を示す理由は粒径の減少で一粒子当たりの極性領域が減少し粒子間の相互作用の減少とランダムネスの増加により3次元フラクタル構造が崩壊しフラクタル次元の低下を誘発するものと考えられる。さらに粒子サイズの減少により温度に対するフラクタル次元の変化率が増大する理由は、粒径が小さくなることで粒子数密度が増大して変化の自由度が増大することに起因すると考えられる。例えば極性因子で構成されるフラクタル構造の再構築が温度揺らぎと双極子間相互作用の競合で温度変化する際に構成要素の変化の自由度が大きいことを反映してフラクタル次元の温度に対する変化率の増大が予想される。

(6) 広帯域スペクトルの散乱波数ベクトル依存性とショルダ構造の起源

高分解広帯域レーザー分光実験で得た散乱波数依存性の結果について90°散乱配置と180°散乱配置の広帯域スペクトルの比較が行われた。マクロなサイズを持つ単結晶試料を用いた場合は音響フォノンに由来するフォノンスペクトルはフォノンの分散関係に基づいて散乱波数ベクトルの大きさの変化に対して顕著なスペクトル構造の変化を示す。ナノ結晶試料の広帯域スペクトルに観測されるブリルアン散乱振動数領域のショルダ構造がマクロな構造体の弾性的な振動フォノンに由来するものであれば顕著な波数依存性が期待される。各粒径サイズの試料で90°散乱配置と180°散乱配置で測定された広帯域スペクトルのショルダ構造には僅かな違いが認められるものの音響フォノンの分散関係で期待されるような大きな変化は見られない。この散乱波数依存性の結果からナノ結晶で測定されたブリルアン散乱領域のスペクトルのショルダ構造はナノ結晶の凝集体により形成されるマクロな構造体に起因するのではなく個々のナノ結晶がもつ振動モードに由来したフォノン構造にあると考察される。またナノ結晶を球形と仮定すると球面波モード（伸縮モード）の振動数は6.5 nm ~ 12 nm のナノ試料で約900 ~ 1700 GHz 程度になることが理論的考察から数値計算により得られた。各サイズの試料において理論的に得られた振動数領域にショルダ構造が観測されており、このショルダ構造が球面波モードに由来した動的構造を示していることが本研究で初めて同定された。

(7) チタン酸バリウムナノ結晶の原子精度走査型透過電子顕微鏡像観察

九州大学、産業技術総合研究所、ファインセラミックスセンター、北海道大学の間の共同研究により超臨界水熱合成法で作製されたチタン酸バリウムナノ結晶の原子分解能走査型透過電子顕微鏡(STEM)像が室温で観察された。実験ではナノ結晶内の異なる二つ面で電子線をフォーカスし、それぞれのフォーカス面にある分極を担うチタンイオンについて対称位置からの原子変位が観測された。ここでは結晶表面近傍の面と結晶中央部の面をフォーカス面に選びナノ結晶

中の空間情報に関する測定が試みられた。観察された STEM 像は立方晶の[001]軸方向にチタン原子の原子変位が観察され強誘電性を示す分極構造が観察された。また二つのフォーカス面の原子変位の向きを比較すると90°の違いが見られナノ結晶の内部にドメイン構造が形成されている様子が観察された。この結果は高分解能広帯域光散乱分光実験で用いているナノ結晶が室温で確かに強誘電的な極性構造を持つ強誘電性ナノ結晶であることを示す。

(8) マクロなサイズの様々なペロフスカイト結晶、関連物質との比較

広帯域スペクトルの観測例が十分でないことから複合ペロフスカイト酸化物、ペロフスカイト窒化物、チタン酸化物、2元化合物を用いて高分解広帯域光散乱分光実験を行いペロフスカイト型強誘電性酸化物ナノ結晶との対照実験を行った。本研究で用いたチタン酸バリウムナノ結晶試料とチタン酸鉛ナノ結晶試料が示す広帯域スペクトルの特徴である自己相似性についてナノ構造に由来するスペクトル構造や強誘電性ナノ秩序形成に由来したスペクトル構造、分極揺らぎに由来したスペクトル構造について構造的特徴や普遍性について情報を得た。

(9) 今後の展望

本研究の高分解広帯域スペクトルの研究成果をもとに2次元的な強誘電性薄膜で興味を持たれるハフニア系強誘電体薄膜の分極揺らぎに関する研究について産業技術総合研究所との共同研究へ発展。[基盤研究(B) 2020-2023 研究代表:浅沼周太郎主任研究員「HfO₂系強誘電体の分極揺らぎの制御による新奇物性の探索」]

本研究で得られた高分解広帯域スペクトルに本質的に関わる量子力学的散乱問題について新しい理論の構築を目指して東京工業大学、東京女子大学、群馬大学、北海道大学との共同研究へ発展。[基盤研究(B) 2021-2025 研究代表:陣内修教授「フェルミ黄金律の補正項に関する多角的検証」]

本研究の知見をもとに関連物質へ研究が発展し Khon Kaen 大との共同研究へ発展。

本研究の知見をもとに高分解広帯域光散乱分光法を生体科学へ適応して生体機能の物理的機構解明に関する研究について北海道大学歯学部との共同研究へ発展。

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計5件（うち査読付論文 5件/うち国際共著 2件/うちオープンアクセス 0件）

1. 著者名 Yukiya HAKUTA, Hiroshi TAKASHIMA and Masaki TAKESADA	4. 巻 539
2. 論文標題 Hydrothermal synthesis of perovskite metal oxide nanoparticles in supercritical water	5. 発行年 2019年
3. 雑誌名 FERROELECTRICS	6. 最初と最後の頁 1-8
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1080/00150193.2019.1569999	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 Yukio SATO, Mai AOKI, Ryo TERANISHI, Kenji KANEKO, Masaki TAKESADA, Hiroki MORIWAKE, Hiroshi TAKASHIMA and Yukiya HAKUTA	4. 巻 2
2. 論文標題 Atomic-Scale Observation of Titanium-Ion Shifts in Barium Titanate Nanoparticles: Implications for Ferroelectric Applications	5. 発行年 2019年
3. 雑誌名 ACS APPLIED NANO MATERIALS	6. 最初と最後の頁 5761-5768
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1021/acsanm.9b01221	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 Jutapol JUMPATAM, Narong CHANLEK, Masaki TAKESADA and Prasit THONGBAI	4. 巻 103
2. 論文標題 Giant dielectric behavior of monovalent cation/anion (Li+, F-) co-doped CaCu3Ti4O12 ceramics	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 Journal of the American Ceramic Society	6. 最初と最後の頁 1871-1880
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1111/jace.16904	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
1. 著者名 Akira HOSONO, Yuji MASUBUCHI, Shintaro YASUI, Masaki TAKESADA, Takashi ENDO, Mikio HIGUCHI, Mitsuru ITOH and Shinichi KIKKAWA	4. 巻 58
2. 論文標題 Ferroelectric BaTaO2N Crystals Grown in a BaCN2 Flux	5. 発行年 2019年
3. 雑誌名 Inorganic Chemistry	6. 最初と最後の頁 16752-16760
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1021/acs.inorgchem.9b02917	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 Tuichai Wattana, Danwittayakul Supamas, Chanlek Narong, Takesada Masaki, Pengpad Atip, Srepusharawoot Pornjuk, Thongbai Prasit	4. 巻 6
2. 論文標題 High-Performance Giant Dielectric Properties of Cr ³⁺ /Ta ⁵⁺ Co-Doped TiO ₂ Ceramics	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 ACS Omega	6. 最初と最後の頁 1901 ~ 1910
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1021/acsomega.0c04666	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16件 (うち招待講演 2件 / うち国際学会 4件)

1. 発表者名 清水一揮、伯田幸也、高島浩、伊藤満、武貞正樹
2. 発表標題 チタン酸鉛ナノ結晶における強誘電性と低振動数ゆらぎ
3. 学会等名 日本物理学会
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 水野大樹、右田真司、武貞正樹
2. 発表標題 HfO ₂ 系強誘電体薄膜Hf _{0.5} Zr _{0.5} O ₂ における低振動数顕微ラマン散乱
3. 学会等名 日本物理学会
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 武貞正樹、高島浩、伊藤満、伯田幸也
2. 発表標題 超臨界水熱合成法で作製されたチタン酸鉛ナノ結晶の強誘電性ソフトモードダイナミクス
3. 学会等名 日本物理学会第74回年次大会
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 菅原友幹、武貞正樹、高島浩、伊藤満B、伯田幸也
2. 発表標題 強誘電性BaTiO3ナノ結晶におけるフォノン異常とサイズ効果
3. 学会等名 日本物理学会第74回年次大会
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 藤原孝将、藤井達生、武貞正樹、孫易琪、加倉井和久、池田直
2. 発表標題 化学当量的なYbFe2O4の短距離磁気秩序に関わる新たな格子歪転移
3. 学会等名 日本物理学会第74回年次大会
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 Masaki TAKESADA
2. 発表標題 Dynamics of Ferroelectric Nano Ordering in Perovskite-Type Nanocrystals Studied by High Resolution Broadband Light Scattering
3. 学会等名 The 13th Pacific Rim Conference of Ceramic Societies (PACRIM13) (招待講演) (国際学会)
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 清水一揮、伯田幸也、高島浩、伊藤満、武貞正樹
2. 発表標題 チタン酸鉛ナノ結晶における強誘電ナノ秩序化現象と低振動数ゆらぎ
3. 学会等名 日本物理学会第75回年次大会
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 Masaki Takesada, Yuki Sugawara, Kiwamu Sue, Hiroshi Takashima, Mitsuru Itoh, Yukiya Hakuta
2. 発表標題 Dynamical hierarchy of ferroelectric nanocrystals of BaTiO ₃ and PbTiO ₃ synthesized in supercritical hydrothermal condition
3. 学会等名 14-th Russian/CIS/Baltic/Japan Symposium on Ferroelectricity (国際学会)
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 Yukiya Hakuta, Hiroshi Takashima, and Masaki Takesada
2. 発表標題 Hydrothermal synthesis of perovskite metal oxide nanoparticles in supercritical water
3. 学会等名 14-th Russian/CIS/Baltic/Japan Symposium on Ferroelectricity (国際学会)
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 Masaki TAKESADA
2. 発表標題 Phonon anomaly and size effect in perovskite type ferroelectric nanocrystals
3. 学会等名 Joint International Workshop of WFF&WFSM 2019 (招待講演) (国際学会)
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 藤原孝将, 藤井達生, 武貞正樹, 孫易琪, 加倉井和久, 池田直
2. 発表標題 化学当量的なYbFe ₂ O ₄ の短距離磁気秩序に関わる新たな格子歪転移
3. 学会等名 日本物理学会第74回年次大会(2019年)
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 武貞正樹, 高島浩, 伊藤満, 伯田幸也
2. 発表標題 超臨界水熱合成法で作製されたチタン酸鉛ナノ結晶の強誘電性ソフトモードダイナミクス
3. 学会等名 日本物理学会第74回年次大会(2019年)
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 菅原友幹, 武貞正樹, 高島浩, 伊藤満, 伯田幸也
2. 発表標題 強誘電性BaTiO3ナノ結晶におけるフォノン異常とサイズ効果
3. 学会等名 日本物理学会第74回年次大会(2019年)
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 Yiqi SUN, Masaki TAKESADA,
2. 発表標題 Low-frequency Fluctuations of Multiferroic Single Crystal YbFe2O4
3. 学会等名 日本MRS 第28回年次大会
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 武貞正樹, 高島浩, 伊藤満, 伯田幸也
2. 発表標題 超臨界水熱合成法で作製されたBaTiO3の巨視的強誘電性相転移から強誘電的ナノ秩序形成へのクロスオーバー
3. 学会等名 日本MRS 第28回年次大会
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 青木 舞、佐藤幸生、寺西 亮、金子賢治、武貞正樹、高島 浩、陶 究、伯田幸也
2. 発表標題 走査透過型電子顕微鏡法による BaTiO ₃ ナノ粒子の微構造解析
3. 学会等名 強制的秩序とその操作に関わる研究グループ 第7回 研究会
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
研究協力者	菅原 友幹 (Sugawara Yuki)		
研究協力者	清水 一揮 (Shimizu Kazuki)		
研究協力者	佐藤 幸生 (Sato Yukio)		
研究協力者	トンバイ プラシット (Thongbai Prasit)		
連携研究者	伯田 幸也 (Hakuta Yukiya) (30250707)	国立研究開発法人産業技術総合研究所・材料・化学領域・副 研究部門長 (82626)	

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
連携研究者	陶 究 (Sue Kiwamu) (60333845)	国立研究開発法人産業技術総合研究所・材料・化学領域・研究グループ長 (82626)	
連携研究者	高島 浩 (Takashima Hiroshi) (10357353)	国立研究開発法人産業技術総合研究所・エレクトロニクス・製造領域・上級主任研究員 (82626)	

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		
タイ	Khon Kaen University	MTEC	Synchrotron Light Research Institute