

機関番号：14301

研究種目：若手研究 (B)

研究期間：2009～2010

課題番号：21760073

研究課題名 (和文) ナノ構造を有する強誘電体の力学特性と電気特性のカップリング効果

研究課題名 (英文) Coupling Effect between mechanical and electric properties in nano-structured ferroelectrics

研究代表者

嶋田 隆広 (SHIMADA TAKAHIRO)

京都大学・工学研究科・助教

研究者番号：20534259

研究成果の概要 (和文)：

本研究では、量子力学に基づく第一原理シミュレーションを用いた厳密な原子レベル解析を実施し、ナノ薄膜・ナノワイヤといった微小強誘電材料の原子構造・電子状態を解明すると同時に、その力学的変形特性と強誘電特性のカップリング効果 (マルチフィジックス特性) を明らかにした。強誘電特性はナノ構造体の表面やエッジ構造により大きく影響を受けること、また、ひずみ負荷によって強誘電特性を力学的に制御できることを明らかにした。

研究成果の概要 (英文)：

In this study, atomistic and electronic structures of nano-structured ferroelectrics (e.g., nano-films and nano-wires) and the coupling effect between mechanical deformation and ferroelectricity, namely, multi-physics properties, have been investigated using rigorous *ab initio* (first-principles) density-functional theory calculations. We have revealed that the characteristic surface and edge structures of nano-structured ferroelectrics dominate the ferroelectricity, and that ferroelectricity can be tunable by controlling the applied mechanical stress or strain.

交付決定額

(金額単位：円)

	直接経費	間接経費	合計
21年度	2,000,000	600,000	2,600,000
22年度	1,400,000	420,000	1,820,000
年度			
年度			
年度			
総計	3,400,000	1,020,000	4,420,000

研究分野：工学

科研費の分科・細目：機械工学 機械材料・材料力学

キーワード：ナノ構造、強誘電体、マルチフィジックス特性、第一原理解析、分子動力学

1. 研究開始当初の背景

近年、数原子層厚さのナノ薄膜や直径数ナノメートルのナノワイヤといったナノ/原子スケールの構造を有する超微小な強誘電材料が作製されており、その強誘電性を利用して不揮発性メモリ (FeRAM) など電子デバ

イスへの応用が進められている。一方、強誘電性は、結晶格子内原子のわずかな非対称変位により現れる電気双極子に起因する電気特性であり、材料の構造やサイズに非常に敏感であることが知られている (Ferroelectric-Correlation-Volume)。例えば、ナノ薄膜で

は、表面で原子配列の再構成が生じることや、異材界面で異種原子との結合による特殊な電子状態を形成することから、表面・異材界面の微視構造がナノ薄膜自体の強誘電特性を左右すると考えられる。このようなナノ強誘電材料の特性を把握し、その構造を設計するためには、原子・電子レベルからの詳細な検討が必要である。

一方、強誘電性はひずみ（変形）とカップリング効果を有しており（マルチフィジクス特性）、この特性を利用することでナノデバイスの機能向上が期待されているが、その設計の基礎となるマルチフィジクス特性に関する詳細は明らかになっていない。

2. 研究の目的

本研究では、ナノ薄膜、ナノワイヤといった原子スケールの微小強誘電材料の原子構造・電子状態を解明すると同時に、その力学的変形特性と強誘電特性のカップリング効果（マルチフィジクス特性）を明らかにすることを目的とし、量子力学に基づく第一原理シミュレーションを用いた厳密な原子レベル解析を実施する。

3. 研究の方法

密度汎関数理論に基づく第一原理解析ならびに量子計算を基に独自に構築した Shell Model ポテンシャルを用いた分子動力学計算によってナノ構造体の強誘電特性を解析する。また、大規模な原子構造体にも適用可能な安定/不安定性を評価する独自手法を開発し（模式図：図1）、これを上記手法と併用する。

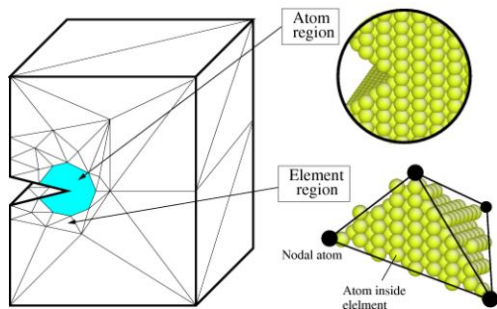


図1 大規模安定/不安定性評価のための原子/要素分割モデルの模式図

4. 研究成果

代表的な強誘電体である PbTiO_3 ナノ薄膜の(001)表面の原子構造・電子状態を第一原理計算により評価した結果を図2に示す。表面再構成が生じない場合(FE)では、図中矢印で示す表面部の分極が整列した形状をとる。一方、表面再構成が生じる場合(FE+AFD)に

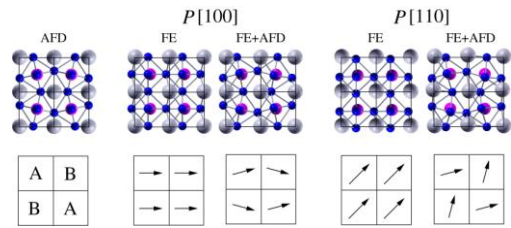


図2 表面再構成前後の原子構造(上図)とその分極方向(下図)

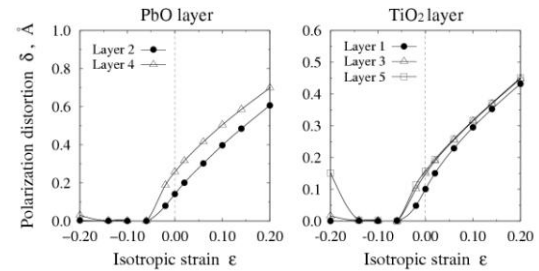


図3 面内ひずみに対する表面近傍の強誘電特性(分極)変化

は、表面部分極が乱され、 2×2 セル周期の複雑な分極構造を形成する。この再構成により表面では分極値が減少し、強誘電特性が劣化することが明らかになった。

図3は、(001)表面を有する PbTiO_3 ナノ薄膜に対し、面内ひずみを負荷した際の表面近傍の分極特性変化を示す。分極は、引張り負荷に対して滑らかに増加し、圧縮に対して減少する傾向がある。また、圧縮ひずみがある値に達すると、強誘電特性が消失することが明らかになった。すなわち、強誘電薄膜より大きい格子定数を有する基板材料を選択することで、ナノ薄膜の強誘電特性を向上させることができる。

図4(a)は、 PbTiO_3 ナノ薄膜中にドメイン壁が存在する際の分極値を示す。また、図4(b)は分極分布をベクトル場で表したものである。薄膜内部では分極値がバルク材よりも減少する。特に、ドメイン壁部(図中破線部)では、バルク材中でのドメイン壁部と異なり、分極ベクトルが閉塞的な渦状構造をとる。これは、ナノ強磁性体で見られる Closure Domain 構造と類似の構造であり、本研究によりナノ強誘電体内にも同様の構造が見られることを示した。また、電子状態・結合形状の詳細な解析により、この Closure Domain 構造は、 180° と 90° ドメイン壁の複合構造によって形成されることを証明した(図4(c))。本成果は、国際誌 Physical Review B に掲載されている。

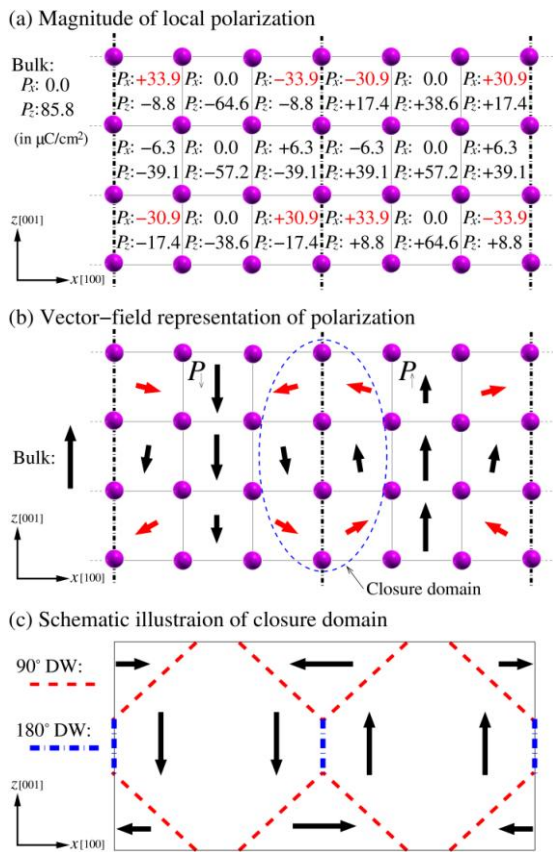


図 4 表面と分域壁が会合するナノ薄膜中での分極構造(強磁性体に類似の渦状構造)

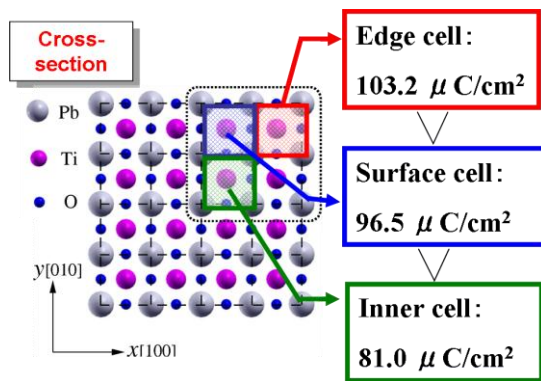


図 5 角柱ナノワイヤ断面内における分極分布

図 5 は、(100)面と(010)面が会合する角部を有する角柱 PbTiO_3 ナノワイヤ断面内の分極特性分布を示す。分極値はワイヤ角部で最も高く、表面部、内部の順に小さくなり、内部ではバルク材の値とほぼ同程度である。すなわち、ワイヤ角部では強誘電特性が向上することが明らかになった。さらに詳細な電子状態解析を実施した結果、この特性向上は角部の Pb 原子の配位数がバルク材よりも減少したことにより、1つの結合に参与する電子数が相対的に増加することに起因すること

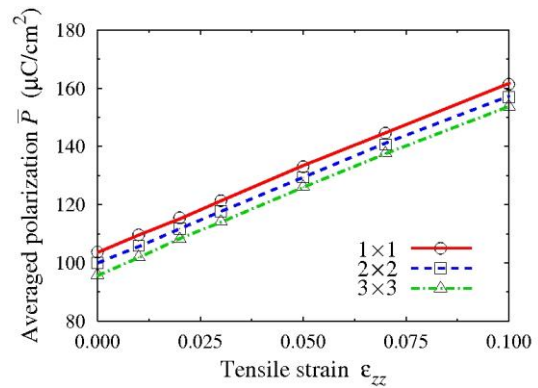


図 6 引張り負荷に対するナノワイヤの分極変化 ($1 \times 1 \sim 3 \times 3$ はナノワイヤサイズを示す)

が明らかになった。

図 6 は、引張り負荷に対するナノワイヤの分極変化を示す。なお、図中の $1 \times 1 \sim 3 \times 3$ はナノワイヤサイズを示す。ワイヤサイズに依らず、引張り負荷に対して分極は滑らかに増加する傾向が見られる。すなわち、ワイヤに負荷される引張りひずみを制御することで、より高い強誘電特性を引き出せることを明らかにした。本成果は、国際誌 Physical Review B に掲載されている。

5. 主な発表論文等

(研究代表者、研究分担者及び連携研究者には下線)

[雑誌論文] (計 21 件)

- ① Takahiro Shimada, Xiaoyuan Wang, Shogo Tomoda, Pavel Marton, Christian Elsasser, Takayuki Kitamura, Coexistence of rectilinear and vortex polarizations at twist boundaries in ferroelectric PbTiO_3 from first principles, Physical Review B, 査読有, Vol.83 (2011), article number 094121 (pp. 1-9)
- ② Pavel Marton, Takahiro Shimada, Takayuki Kitamura, Christian Elsasser, First-principles study of the interplay between grain boundaries and domain walls in ferroelectric PbTiO_3 , Physical Review B, 査読有, Vol.83 (2011), article number 064110 (pp. 1-8)
- ③ Takahiro Shimada, Shogo Tomoda, Takayuki Kitamura, First-principles study on ferroelectricity at PbTiO_3 surface steps, Journal of Physics: Condensed Matter, 査読有, Vol.22 (2010), article number 355901 (pp.

- 1-8)
- ④ Takahiro Shimada, Shogo Tomoda, Takayuki Kitamura, Ab initio study of ferroelectric closure domains in ultrathin PbTiO₃ films, Physical Review B, 査読有, Vol.81 (2010), article number 144116 (pp. 1-6)
 - ⑤ Takahiro Shimada, Satoru Okawa, Takayuki Kitamura, Simplified analysis of mechanical instability in three-dimensional atomic components and its application to nanoscale crack, Journal of Solid Mechanics and Materials Engineering, 査読有, Vol. 4, No. 7 (2010), pp.1071-1082
 - ⑥ Takahiro Shimada, Shogo Tomoda, Takayuki Kitamura, Ab initio study of ferroelectricity at edged PbTiO₃ nanowires under axial tension, Physical Review B, 査読有, Vol.79 (2009), article number 024102 (pp. 1-7)
 - ⑦ Takahiro Shimada, Satoru Okawa, Shinichiro Minami, Takayuki Kitamura, Simplified evaluation of mechanical instability in large-scale atomic structures, Materials Science and Engineering A, 査読有, Vols.513-514 (2009), pp.166-171

[学会発表] (計15件)

- ① Takahiro Shimada, Takayuki Kitamura, First-principles study of critical thickness of ferroelectric polydomain PbTiO₃ ultrathin films, Psi-k 2010 Conference, 2010.9.14, Berlin, Germany
- ② Takahiro Shimada, Shogo Tomoda, Takayuki Kitamura, First-principles investigation of edged ferroelectric PbTiO₃ nanowires and the role of axial strain, MRS fall meeting 2009, 2009.12.2, Boston, USA
- ③ Takahiro Shimada, Satoru Okawa, Takayuki Kitamura, Simplified analysis of mechanical instability in three-dimensional atomic components and its application to a nanoscale crack, Asian Pacific Conference for Materials and Mechanics 2009 (APCMM2009), 2009.11.14, Yokohama, Japan

[図書] (計1件)

- ① Takahiro Shimada and Takayuki Kitamura, Intech, Nanowires edited by Paola Prete, Chap.18 Multi-physics

Properties in Ferroelectric Nanowires and Related Structures from First-principles, 2010, 414

[その他]
ホームページ等
<http://cyber.kues.kyoto-u.ac.jp/>

6. 研究組織

(1) 研究代表者

嶋田 隆広 (SHIMADA TAKAHIRO)
京都大学・工学研究科・助教
研究者番号：20534259

(2) 研究分担者

なし

(3) 連携研究者

なし