

2023 年度年次報告書

物質探索空間の拡大による未来材料の創製

2021 年度採択研究代表者

片山 司

北海道大学 電子科学研究所

准教授

誘電・光学応用に向けた新奇酸フッ化物材料の創出

研究成果の概要

強誘電材料は強誘電メモリ、圧電 MEMS、振動制御、高誘電キャパシタ等様々な用途に活用されているキーデバイスである。実用されている強誘電材料のほぼ全ては金属酸化物であるが、酸素の一部をフッ素に置換した金属酸フッ化物も優れた特性を示す期待がある。しかし、これまで明瞭な強誘電反転を示す酸フッ化物材料は限られていた。そこで本年度は新たな強誘電酸フッ化物・反強誘電酸フッ化物の創出を試みた。

強誘電特性を示す典型的な酸化物材料としてペロブスカイト構造酸化物(ABO_3)がある。強誘電性を示す ABO_3 の探索指針は主に 3 つである。(1) B サイトの d 軌道に電子が中途半端に存在しない d^0 系の金属元素を選ぶ、もしくは A サイトに 6s 軌道の孤立電子対を持つ金属元素 (Pb^{2+} 、 Bi^{3+})を利用すること。(2) ABO_3 では酸素の価数は-2価のため、A サイトと B サイトの価数の和が+6 であること。(3) 強誘電反転を示すには絶縁性であることが求められるため、 d 軌道が全て、もしくは半分埋まる(d^0 、もしくは d^5)価数であることが望ましいこと。この様な要件から、これまで強誘電材料としては $BaTiO_3$ 、 $Pb(Zr,Ti)O_3$ 、 $BiFeO_3$ などが用いられている。

今回、酸フッ化物強誘電材料を作る上で考慮したのは、(2)の要件が変わることである。例えば ABO_2F を考えた場合、A サイトと B サイトの価数の和が+5 となる。そのため、これまでできなかった組み合わせが可能となる。(例えば Pb^{2+} と Fe^{3+} の組み合わせ。)そこで本年度は 6s 軌道の孤立電子対を持つ Pb^{2+} や Bi^{3+} と遷移金属との組み合わせを試し、新たな強誘電酸フッ化物材料、そして反強誘電酸フッ化物材料を発見することができた。

【代表的な原著論文情報】

2023 年度 筆頭論文 3 本 責任論文 7 本

1. “Magnetic phase transition-induced modulation of ferroelectric properties in hexagonal $RFeO_3$ ($R = Tb$ and Ho)”
Y. Liu, B. Chen, Binjie, Y. Hamasaki, L. Gong, H. Ohta, T. Katayama*,
ACS Appl. Mater. Interfaces 16, 14, 17832 (2024).
2. “Half-metallicity and magnetic anisotropy in double-perovskite $GdBaCo_2O_6$ films prepared via topotactic oxidation”
T. Katayama*, S. Mo, A. Chikamatsu, Y. Kurauchi, H. Kumigashira, and T. Hasegawa,
Chem. Mater. 35, 1295 (2023).
3. “Grain engineered polar-axis-oriented epitaxial $Mn_2Mo_3O_8$ films with enhanced magnetic transition temperature”
S. Mo, T. Katayama*, A. Chikamatsu, and T. Hasegawa,
J. Mater. Chem. C 11, 7427 (2023).
4. “Ferroelectricity, high permittivity, and tunability in millimeter-size crack-free $Ba_{1-x}Sr_xTiO_3$ flexible epitaxial sheets”
R. Yu, L. Gong, H. Ohta, and T. Katayama*,
ACS Appl. Electron. Mater. 5, 9, 5234 (2023).
5. “Anisotropic proton conduction in double-perovskite $GdBaCo_2O_{5.5}$ ”
T. Katayama*, K. Magara, A. Chikamatsu, and T. Hasegawa,
Appl. Phys. Lett. 123, 012902 (2023).