

Oral presentation 9 Applied Materials Science : 9.1 Dielectrics, ferroelectrics

📅 Sun. Sep 7, 2025 1:30 PM - 5:00 PM JST | Sun. Sep 7, 2025 4:30 AM - 8:00 AM UTC | 🏢 N201 (Lecture Hall North)

[7p-N201-1~12] 9.1 Dielectrics, ferroelectrics

Hiroki Matsuo(熊本大), Manabu Hagiwara(Keio University), Yosuke Hamasaki(National Defense Academy)

誘電体・圧電体材料（無機、有機、高分子、液晶、有機無機ハイブリッド）の作製法、物性、評価手法

◆ Presentation by Applicant for JSAP Young Scientists Presentation Award

1:30 PM - 1:45 PM JST | 4:30 AM - 4:45 AM UTC

[7p-N201-1] Crystal structure and dielectric properties of $\text{Ba}_x\text{Sr}_{1-x}\text{Mg}_2\text{V}_2\text{O}_8$

○Nanami Masukawa¹, Yosuke Hamasaki¹, Akihisa Aimi¹, Tetsuhiro Katsumata², Yoshiyuki Inaguma³, Mitsuru Itoh⁴, Shinya Sawai¹ (1.NDA, 2.Tokai Univ., 3.Gakushuin Univ., 4.Science Tokyo Inst.)

1:45 PM - 2:00 PM JST | 4:45 AM - 5:00 AM UTC

[7p-N201-2] Dielectric properties of A-site deficient perovskite YT_3O_9

○Yosuke Hamasaki¹, Yuta Kono¹, Sou Yasuhara², Takahumi Ogawa³, Makoto Tanaka³, Kazuki Shitara³, Takeharu Kato³, Saotshi Kitaoka³, Hiroki Moriwake^{3,2}, Shinya Sawai¹ (1.NDA, 2.Science Tokyo Inst., 3.JFCC)

◆ English Presentation

2:00 PM - 2:15 PM JST | 5:00 AM - 5:15 AM UTC

[7p-N201-3] Tunable Ferroelectricity in Layered Perovskite Oxides $\text{Ln}_2\text{SrSc}_2\text{O}_7$ ($\text{Ln} = \text{La}, \text{Nd}$)

○(DC)YANG ZHANG¹, Tatsushi Kawasaki¹, Daiming Tang³, Shuki Torii², Yi Wei¹, Koji Fujita¹ (1.Kyoto Univ., 2.KEK., 3.NIMS.)

2:15 PM - 2:30 PM JST | 5:15 AM - 5:30 AM UTC

[7p-N201-4] Optical and Dielectric Properties of Hybrid Organic-Inorganic Perovskite $(\text{CHA})_4\text{BiI}_7$ Single Crystals

○(M2)Yuki Maeda¹, Hiroki Matsuo¹, Yukana Terasawa¹, Yuji Noguchi¹ (1.Kumamoto univ)

2:45 PM - 3:00 PM JST | 5:45 AM - 6:00 AM UTC

[7p-N201-5] Study on polarization switching dynamics in wurtzite-type nitrides via first principle calculations

○Naoki Ohashi^{1,2}, Takao Shimizu¹ (1.NIMS, 2.Inst, Sci.Tokyo)

3:00 PM - 3:15 PM JST | 6:00 AM - 6:15 AM UTC

[7p-N201-6] Analysis of Electric Field Response of Ferroelectric Materials via Machine Learning Potentials

○(D)Poyen Chen¹, Teruyasu Mizoguchi^{1,2} (1.Univ. of Tokyo, 2.IIS, UTokyo)

◆ Presentation by Applicant for JSAP Young Scientists Presentation Award

3:15 PM - 3:30 PM JST | 6:15 AM - 6:30 AM UTC

[7p-N201-7] Thermal Stability of SnTiO_3 Probed by X-ray Absorption Spectroscopy

○(M2)Shintaro Noda¹, Nobuo Nakajima¹, Takumi Hasegawa¹, Naoki Ishimatsu², Yasuhiro Niwa³ (1.Hiroshima Univ., 2.Ehime Univ., 3.KEK-PF)

3:30 PM - 3:45 PM JST | 6:30 AM - 6:45 AM UTC

[7p-N201-8] Evaluation of electrostrictive coefficient Q_{12} and Q_{14} of $\text{KTa}_{1-x}\text{Nb}_x\text{O}_3$ crystals.

○Daiki Takahashi¹, Tadayuki Imai¹ (1.Kyoto Univ. of Adv. Sci.)

4:00 PM - 4:15 PM JST | 7:00 AM - 7:15 AM UTC

[7p-N201-9] Temperature dependence of piezoelectric properties of lead relaxor-based textured piezoelectric ceramics

○Hiroshi Maiwa¹, Yohachi Yamashita^{1,2} (1.Shonan Inst. Tech., 2.NC State Univ.)

4:15 PM - 4:30 PM JST | 7:15 AM - 7:30 AM UTC

[7p-N201-10] Effects of Heat Treatment on the Ferroelectric Properties, Average and Electronic Structures of $(0.4-x)(\text{Bi}_{0.5}\text{K}_{0.5})\text{TiO}_3\text{-}0.6\text{BiFeO}_3\text{-}x\text{K}(\text{Ta}_{0.97}\text{Mo}_{0.03})\text{O}_3$ ($x=0.025, 0.05$)

Yasushi Idemoto¹, ○Hiroki Hasegawa¹, Chiaki Ishibashi¹, Naoto Kitamura¹ (1.Tokyo University of Science)

4:30 PM - 4:45 PM JST | 7:30 AM - 7:45 AM UTC

[7p-N201-11] Structure Control of BaTiO_3 Flexible Thin Films Using Ba-substituted $\text{Sr}_3\text{Al}_2\text{O}_6$ Water-Soluble Buffer Layers

○(M2)Keishi Takamiya¹, Hiroki Matsuo¹, Yuji Noguchi¹ (1.Kumamoto Univ)

4:45 PM - 5:00 PM JST | 7:45 AM - 8:00 AM UTC

[7p-N201-12] [The 58th Young Scientist Presentation Award Speech] Low temperature sintering of titanium-based perovskite oxides using reducing metal vapor

○Akira Hosono¹, Takahiro Yamada¹ (1.Tohoku Univ.)

$\text{Ba}_x\text{Sr}_{1-x}\text{Mg}_2\text{V}_2\text{O}_8$ の結晶構造及び誘電特性

Crystal structure and dielectric properties of $\text{Ba}_x\text{Sr}_{1-x}\text{Mg}_2\text{V}_2\text{O}_8$

○増川 奈々美¹, 濱寄 容丞¹, 相見 晃久¹, 勝又 哲裕², 稲熊 宜之³,
伊藤 満⁴, 澤井 真也¹

(1. 防衛大学校、2. 東海大学、3. 学習院大学、4. 東京科学大学)

○Nanami Masukawa¹, Yosuke Hamasaki¹, Akihisa Aimi¹, Tetsuhiro Katsumata², Yoshiyuki Inaguma³,
Mitsuru Itoh⁴, Shinya Sawai¹

(1. National Defense Academy, 2. Tokai Univ. , 3. Gakushuin Univ. , 4. Institute of Science Tokyo)

E-mail: em63001@nda.ac.jp

【緒言】 $\text{ACo}_2\text{V}_2\text{O}_8$ ($A = \text{Sr}, \text{Ba}, \text{Pb}$) は、辺共有した CoO_6 八面体が c 軸方向にらせんを描きながら一次元鎖を形成した結晶構造である。 $\text{BaCo}_2\text{V}_2\text{O}_8$ の空間群は $I4_1/acd$ で中心対称構造であるが、 $\text{SrCo}_2\text{V}_2\text{O}_8$ 及び $\text{PbCo}_2\text{V}_2\text{O}_8$ は $I4_1cd$ の極性構造であり強誘電性が期待される。しかし、 Co^{2+} の価数揺らぎによるリーク電流により、室温以上での誘電測定は困難である。そこで本発表では、 Co^{2+} を価数揺らぎのない Mg^{2+} に置換した $\text{Ba}_x\text{Sr}_{1-x}\text{Mg}_2\text{V}_2\text{O}_8$ を作製し、結晶構造および誘電特性について評価した。

【実験方法】 $\text{Ba}_x\text{Sr}_{1-x}\text{Mg}_2\text{V}_2\text{O}_8$ は、炭酸ストロンチウム、炭酸バリウム、炭酸マグネシウム及び五酸化バナジウムを必要量混合し、エタノール湿式混合によって作製した。混合した試料を 900°C 、 1000°C で煅焼、錠剤化し、 1050°C で本焼した。得られた試料の結晶構造解析は、粉末 X 線回折装置 (RIGAKU SMARTLAB) により行った。

【結果・考察】 図 1 には、 $\text{Ba}_x\text{Sr}_{1-x}\text{Mg}_2\text{V}_2\text{O}_8$ の X 線回折測定結果を示す。すべての試料が同様の X 線回折パターンを示し、Ba 含有量の増加に伴って格子体積が増加することから、 $\text{Ba}_x\text{Sr}_{1-x}\text{Mg}_2\text{V}_2\text{O}_8$ において固溶体を形成することが確かめられた。図 2 には、XRD パターンから推定した $\text{Ba}_x\text{Sr}_{1-x}\text{Mg}_2\text{V}_2\text{O}_8$ の格子定数 c を示す。 $x=0.35$ で傾きが変化しており、これは Ba 置換により強誘電相から常誘電相に結晶構造が変化したためである。当日は、詳細な結晶構造、誘電特性及び強誘電性についても報告する。

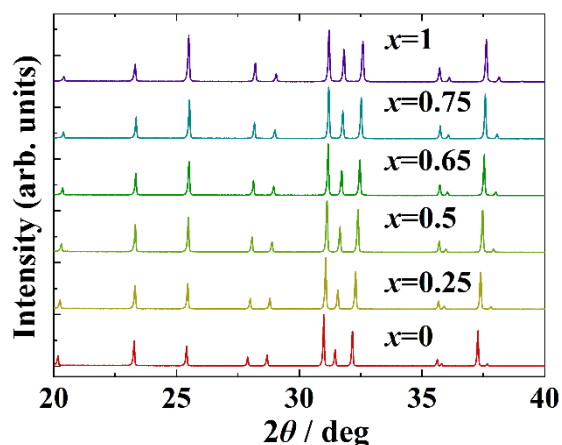


図 1 $\text{Ba}_x\text{Sr}_{1-x}\text{Mg}_2\text{V}_2\text{O}_8$ の X 線回折測定結果

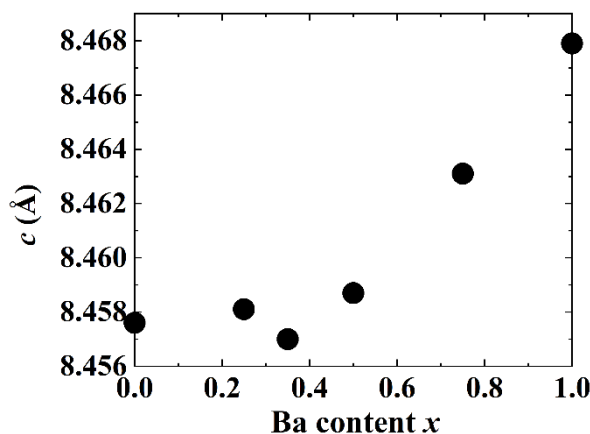


図 2 $\text{Ba}_x\text{Sr}_{1-x}\text{Mg}_2\text{V}_2\text{O}_8$ の格子定数 c

A サイト欠損型ペロブスカイト YTa_3O_9 の誘電特性

Dielectric properties of A-site deficient perovskite YTa_3O_9

防衛大¹, 東京科学大², JFCC³ ◯濱崎 容丞¹, 河野 祐太¹, 安原 颯², 小川 貴史³, 田中 誠³,
設楽 一希³, 加藤 文晴³, 北岡 諭³, 森分 博紀^{2,3}, 澤井 真也¹

National Defense Academy¹, Institute of Science Tokyo², JFCC³, ◯Yosuke Hamasaki¹, Yuta Kono¹,
Sou Yasuhara², Ogawa Takahumi³, Makoto Tanaka³, Kazuki Shitara³, Takeharu Kato³, Satoshi
Kitaoka³, Hiroki Moriwake^{2,3}, Shinya Sawai¹

E-mail: hamasaki@nda.ac.jp

LnTa_3O_9 (Ln ランタノイド) は A サイト欠損型ペロブスカイトに分類され、A サイトの 2/3 が不足した層と A サイトすべてが空孔の層が交互に積み重なった構造を持っている。これまで、 $\text{Ln} = \text{La}$ から Yb まで結晶構造について調べられている。[1] LaTa_3O_9 では、酸素八面体が回転していない正方晶 (空間群 $P4/mmm$) をとるが、イオン半径の小さな Ce から Er までは、酸素八面体の回転により直方晶が安定化する。とくに、 $\text{Ln} = \text{Y}, \text{Ho}, \text{Er}$ では空間群 $P2_1am$ に属し、極性構造を有する。しかし、これらの材料の誘電特性については、これまで報告されていない。そこで、本研究では YTa_3O_9 の作製を試み、それらの誘電特性の評価を行った。

試料作製は、錯体重合法により行った。 TaCl_5 と $\text{Y}(\text{CH}_3\text{COO})_3 \cdot 4\text{H}_2\text{O}$ を原料にクエン酸錯体を作成した。混合溶液を 400°C で加熱し、前駆体を得た。前駆体を、 $1100^\circ\text{C} \sim 1600^\circ\text{C}$ で焼成した。得られた試料は、粉末 X 線回折測定(Rigaku SmartLab)および SHG 計測から結晶構造解析を行った。誘電特性は、LCR メーター (HP 4284A) で評価し、強誘電性はラジアント社の強誘電体テスターで評価した。

X 線回折測定より 1300°C 以下で焼成した試料は、 YTaO_4 と $\text{YTa}_7\text{O}_{19}$ の混相であり、直方相の試料を得ることができなかった。一方、 1400°C で焼成した試料では、直方相 YTa_3O_9 の回折パターンを確認することができた。得られた直方相 YTa_3O_9 試料で SHG 測定を行った結果、SH 信号が計測され非中心対称構造であることが確かめられた。ペレット化した試料で誘電率の温度依存性を測定した。昇温時は、 $430 \sim 460^\circ\text{C}$ 付近で誘電率が急激に上昇し、降温時は、 $290 \sim 260^\circ\text{C}$ 付近で急激に下降し、温度変化に履歴があることが確認された。これは、先行研究で報告されている直方晶 ($P2_1am$) から正方晶 ($P4/mmm$) への相転移に対応する。[2] 当日は、強誘電性測定の結果についても議論を行う。

【参考文献】

[1] Q. Zhou et. al., chem. Mater., 20, 6666 (2008)

[2] E. Kawai et. al., Script Materialia, 210, 114408 (2022)

Tunable Ferroelectricity in Layered Perovskite Oxides $Ln_2SrSc_2O_7$ ($Ln = La, Nd$)

Kyoto Univ.¹, NIMS², KEK³, °Yang Zhang¹, Tatsushi Kawasaki¹, Daiming Tang², Shuki Torii³, Wei Yi¹, and Koji Fujita^{1*}

E-mail: fujita.koji.5w@kyoto-u.ac.jp

Ferroelectric materials with switchable spontaneous electric polarizations have attracted extensive attention in the fields of material science and engineering. Recently, hybrid improper ferroelectricity (HIF), whose electric polarization is induced via a trilinear coupling of nonpolar octahedral rotations in layered perovskites, has garnered significant interests.^[1] In previous study, we experimentally identified the presence of HIF in Ruddlesden–Popper (RP)-type layered perovskite oxide $La_2SrSc_2O_7$, and theoretically demonstrated the role of A-site cations (Sr/La) disorder in stabilizing its ferroelectricity.^[2] In present work, we further demonstrate that the ferroelectric properties, i.e., ferroelectric phase transition temperature (T_C) in the $Ln_2SrSc_2O_7$ ($Ln = La, Nd$) system, can be systematically modulated by tuning the disordered distribution of A-site cations (Sr/Ln).

Polycrystalline $Ln_2SrSc_2O_7$ ($Ln = La, Nd$) samples were synthesized using the polymerizable complex method. Following high-temperature sintering, three different cooling conditions were utilized, rapid cooling (RC), normal cooling (NC), and slow cooling (SC) to alter the A-site cations distribution. The structural evolution and ferroelectric properties were characterized by using synchrotron X-ray/neutron powder diffraction (SXRD/NPD), optical second harmonic generation (SHG), scanning transmission electron microscopy (STEM), dielectric permittivity, and P – E hysteresis loops.

In $La_2SrSc_2O_7$, all samples adopt the ferroelectric $A2_1am$ space group, while a significant shift in the T_C from 400 K in SC sample to 700 K in RC sample (Fig. 1a) is observed, indicating distinct ferroelectric properties induced by different cooling conditions. In $Nd_2SrSc_2O_7$, SC sample exhibits a tetragonal antipolar $P4_2/mnm$ structure, which differs from the orthorhombic polar $A2_1am$ structure in the RC sample (Fig. 1b). The impact of A-site cations disorder on the ferroelectric instability of $Ln_2SrSc_2O_7$ ($Ln = La, Nd$) is mainly manifested in the competition between deformation and rotation of the ScO_6 octahedra.

[1] N. A. Benedek *et al.*, *Phys. Rev. Lett.* **106**, 107204 (2011).

[2] W. Yi, *et al.*, *J. Am. Chem. Soc.* **146**, 4570 (2024).

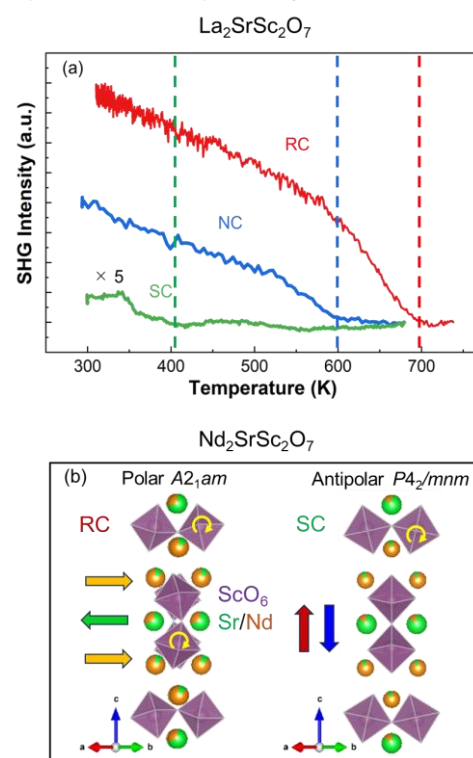


Figure 1. (a) Temperature dependence of SHG intensity in $La_2SrSc_2O_7$. (b) Cooling conditions induced structure difference in $Nd_2SrSc_2O_7$

非鉛系有機無機ハイブリッド型 $(\text{CHA})_4\text{BiI}_7$ 単結晶の育成と 光学および誘電特性評価

Optical and Dielectric Properties of Hybrid Organic-Inorganic Perovskite $(\text{CHA})_4\text{BiI}_7$ Single Crystals

熊本大¹ ○(M2) 前田 悠稀¹, 松尾 拓紀¹, 寺澤 有果菜¹ 野口 祐二¹

Kumamoto Univ.¹, [○]Yuki Maeda¹, Hiroki Matsuo¹, Yukana Terasawa¹, Yuji Noguchi¹

E-mail: matsuo_h@cs.kumamoto-u.ac.jp

1. 緒言：有機無機ハイブリッド型ペロブスカイト (HOIP) は、組成制御によりバンドギャップのチューニングが可能であり、また高いキャリア移動度を有することから、太陽電池応用の研究が盛んに行われている。¹ さらに近年、多くの HOIP で強誘電性が報告され、強誘電性 HOIP における中心対称性の破れに起因する光物性に注目が集まっている²。一方、既報の強誘電性 HOIP は鉛系材料が主流であるため、我々は材料設計自由度の拡大と環境負荷低減の観点から非鉛系強誘電性 HOIP の探索に取り組んでいる。本研究では、有機カチオンとしてシクロヘキシルアンモニウム ($\text{C}_6\text{H}_{14}\text{N}$, CHA) を含有する新規材料である CHA_4BiI_7 単結晶の育成に成功したため、その結晶構造と光学特性、および誘電物性について報告する。

2. 実験： CHA_4BiI_7 単結晶を温度降下法により作製した。原料粉末をアセトニトリル (ACN) に 60°C で溶解後、徐冷することで単結晶を育成した。得られた単結晶に対して X 線回折測定による結晶構造解析を行った。組成は蛍光 X 線 (XRF) 測定、および燃焼法を用いた全炭素・全窒素測定により分析した。さらに単結晶を粉砕した粉末に対して、拡散反射法によるバンドギャップ測定を行った。加えて、各結晶方位について分極 (P) - 電場 (E) ヒステリシス測定を行った。

3. 結果と考察：Figure 1 に単結晶の写真を示す。2 mm–4 mm 角の橙色の単結晶が得られた。単結晶 X 線構造解析の結果、本材料が A_2BX_4 型層状ペロブスカイト構造を基本骨格として有し、B サイトの半分のみを Bi が占有し、残り半分は空孔となっていることが示された。また I が占有する X サイトにも部分的に空孔が存在することで電荷中性が保たれていることが明らかになった。空間群は $P\bar{1}$ であり中心対称性を持つ結晶構造であった。全炭素・全窒素測定と XRF 測定による組成分析の結果は、単結晶構造解析から推定される組成と比較的良好一致を示した。また、結晶構造中に溶媒として用いた ACN が取り込まれていることが示唆された。拡散反射率スペクトルから得た、直接許容遷移型の Tauc プロットを Fig. 2 に示す。Tauc プロットから決定したバンドギャップエネルギー (E_g) は 2.35 eV であり、可視光を吸収可能なナローギャップ材料であることが示された。層の積層方向 (a 軸) に測定した分極特性において、線形誘電体に特徴的な P - E ループを観測した。

以上の結果より、 CHA_4BiI_7 は可視光を吸収可能な新規非鉛系 HOIP 誘電体であることが示された。発表では分極特性と誘電特性についても議論する予定である。

参考文献

1. L. Jonathan et al., *Polymers* **14**, 1059 (2022).
2. G. Zhang et al., *ACS Appl. Mater. Interfaces* **16**, 53873–53880 (2024).

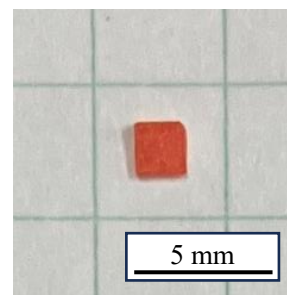


Fig. 1 Photograph of the CHA_4BiI_7 single crystal.

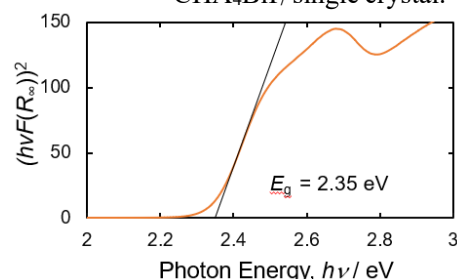


Fig. 2. Tauc plot for direct allowed transition for CHA_4BiI_7 powders. $F(R_\infty)$ indicates Kubelka-Munk function.

ウルツ鉱型窒化物の分極反転ダイナミクスの

第一原理計算による検討

Study on polarization switching dynamics in wurtzite-type nitrides via first principle calculations

物・材機構¹, 科学大・MDX 元素セ² ○大橋直樹^{1,2}, 清水荘雄¹

NIMS¹, Inst. Sci. Tokyo², °Naoki Ohashi^{1,2}, Takao Shimnizu¹

E-mail: OHASHI.Naoki@nims.go.jp

近年、ウルツ鉱型ワイドギャップ半導体に、強誘電性の視点からの注目が集まっている。これまで、焦電体として認識されていた物質群であったが、非常に高い電圧を印加することで、分極反転が誘起されることが見出され[1]、その後、純 AlN が室温で強誘電性を発現することも確認された[2]。すなわち、非常に高い抗電界を特徴とし、それを越える非常に高い絶縁耐圧を備えた場合に、ウルツ鉱型結晶の分極反転が誘起されると考えられる。今後の素子応用などの展開を考えた場合、抗電界と絶縁破壊電圧との間のマージンを広げるなどの材料設計が必要であると考えられる。その材料設計の実現には、抗電界などの特性を支配する因子を解明し、それを制御するための技術確立する必要がある。その手段のひとつとして、これまで、実験的な検討に加えて、第一原理計算での検討を実施し、元素置換によって誘起される格子定数変化、すなわち、ウルツ鉱型構造の c/a の変化などが、強誘電性と密接に関係している可能性についての検討を進めてきた[3]。本研究では、そうした静的な結晶構造の特徴に加えて、強誘電性発現に関するより詳細な知見を得ることを目論見、AlN をベースとした混晶系での分極反転挙動について、第一原理計算を活用した検討を進めることとした。

密度汎関数理論に基づく擬ポテンシャルを利用した第一原理計算ソフトウェアである CASTEP[4]を用いた構造緩和計算を実施し、AlN を中心とする固溶体のもつ結晶構造の特徴、ベリフェーズ計算[5]を利用した固溶体の自発分極料の計算に加えて、LST/QST 法[6]と NEB 法[7]を用いた分極反転進行時の障壁エネルギーの計算を実施した。添加物を含む AlN の超格子モデルでの分極反転を想定し、LST/QST 法での遷移状態の検出を中心に検討を行った。さらに、②得られた遷移状態を含む反応経路への NEB 法の適用による安定状態と遷移状態との間に存在する準安定構造の検出、③検出された準安定状態の構造最適化、④安定構造と準安定状態との間、ないし2つの準安定構造の間に存在する遷移状態の LST/QST 法での検出、という操作を繰り返すことで、反転核の生成から反転完了に至るまでの経路の詳細を検討した。本講演では、それらの検討の結果を報告する。

本報告は文部科学省委託費事業[JPMXP1122683430]の一環として実施された研究、合わせて、JST の PRESTO 事業[JPMJPR20B3]、日本学術振興会・科研費補助金[23H04124 および 24K01170]により実施された研究を含むものである。

引用文献

- [1] S. Fichtner et al., *J. Appl. Phys.* 125, 114103 (2019).
- [2] K. Hasegawa et al., *Appl. Phys. Lett.* 123, 192903 (2023).
- [3] K. Hasegawa, T. Shimizu and N. Ohashi, *J. Ceram. Soc. Jpn.* 130 [7], 452 (2022).
- [4] S.J. Clark et al., *Z. Cryst Mater.* 220, 567 (2005)
- [5] C. E. Dreyer, A. Janotti, C. G. Van de Walle and D. Vanderbilt, *Phys. Rev. X* 6, 021038 (2016).
- [6] N. Govind et al., *J. Andzelm, Comput. Mater. Sci.* 28, 250 (2003).
- [7] G. Henkelman, and H. Jónsson, *J. Chem. Phys.* 113, 9978 (2000).

機械学習ポテンシャルを用いた強誘電体材料の電場応答解析

Analysis of Electric Field Response of Ferroelectric Materials via Machine Learning Potentials

東大¹, 東大生研² [○](D)CHEN Poyen¹, ^(P)溝口 照康^{1,2}

UTokyo¹, IIS, UTokyo², [○]Po-Yen Chen¹, Teruyasu Mizoguchi^{1,2}

E-mail: poyen@iis.u-tokyo.ac.jp

With the advancement of machine learning techniques, machine learning potentials (MLPs) have emerged as powerful tools for accelerating molecular dynamics (MD) simulations while maintaining accuracy comparable to density functional theory (DFT). These potentials enable efficient simulations of large-scale systems that would otherwise be computationally prohibitive using conventional first-principles methods. However, most existing MLPs are primarily trained on structural and energetic information, without explicitly incorporating electronic interactions. As a result, their applicability to the study of electric or dielectric properties—particularly in ferroelectric materials—is significantly limited. To address this limitation, a recent approach leveraging Born effective charge (BEC) prediction, exemplified by the Equivar model^[1, 2], has shown promise in overcoming this limitation. BECs capture the polarization induced by atomic displacements and thus provide a direct link between atomic motion and dielectric response under an applied electric field. Incorporating BECs into the force field formulation allows MD simulations to explicitly capture electric field effects and opens up new avenues for investigating dielectric and ferroelectric phenomena in complex material systems.

In this presentation, we demonstrate the electric field response of representative ferroelectric materials, specifically BaTiO₃ and HfO₂, by employing MLPs. To accurately capture atomic displacements, we developed material-specific MLPs by fine-tuning the pretrained mace-mp-0 model^[3, 4] using datasets generated from ab initio MD (AIMD) with on-the-fly learning via VASP^[5]. We then incorporated the external electric force acting on each atom—calculated as the product of the BEC predicted by the Equivar model^[1,2] and the applied electric field—into NpT ensemble molecular dynamics simulations. This approach enables the direct investigation of electric properties in ferroelectric materials, including polarization hysteresis and the stress-dependent dielectric constant. We believe that this electric-field-coupled MD framework not only reproduces key ferroelectric phenomena but also offers a powerful tool for probing complex dielectric responses, ultimately offering a powerful computational strategy for accelerating the discovery and optimization of next-generation ferroelectric and dielectric materials.

[1] A. Kutana *et al.*, *Sci. Rep.*, **14**, 16719 (2025).

[2] A. Kutana *et al.*, *STAM: Methods* (2025) <https://doi.org/10.1080/27660400.2025.2497254>.

[3] I. Batatia *et al.*, *arXiv preprint arXiv:2401.00096* (2023).

[4] P. Chen *et al.*, submitted.

[5] J. Hafner, *J. Comput. Chem.*, **29**, 2044-2078 (2008).

X 線吸収分光法による SnTiO_3 の熱安定性の研究

Thermal Stability of SnTiO_3 Probed by X-ray Absorption Spectroscopy

広大院先進理工¹, 愛媛大 GRC², KEK-PF³

°(M2)野田 眞太郎¹, 中島 伸夫¹, 長谷川 巧¹, 石松 直樹², 丹羽 尉博³

¹Sch. of Adv. Sci&Eng., Hiroshima Univ., ²GRC., Ehime Univ., ³KEK-PF.

°Shintaro Noda¹, Nobuo Nakajima¹, Takumi Hasegawa¹, Naoki Ishimatsu², Yasuhiro Niwa³

E-mail: nd-shintaro@hiroshima-u.ac.jp

A サイトに Sn^{2+} を配置した SnTiO_3 は、チタン酸鉛 (PbTiO_3) と同等以上の強誘電性を持ち得ると理論予想されている^[1]。しかし、 Sn^{2+} は酸化されやすいため、 SnTiO_3 の合成には Sn の酸化状態の精密な制御が鍵を握っている。

本研究では、イルメナイト型構造を有する SnTiO_3 の合成を、焼成温度および時間を系統的に変化させて行い、X 線吸収分光法により Sn の熱安定性を評価した。

図 1 に焼成温度および時間を変化させた試料の Sn K 吸収端スペクトルを示す。メインピークのエネルギー位置は Sn の価数に対応する。 SnO および SnO_2 との比較により、 500°C を超える条件下では Sn^{2+} 状態の維持が困難であることがわかった。また、最適合成条件と期待される 300°C においても、長時間の熱処理により Sn^{2+} は酸化され Sn^{4+} へと変化することが明らかになった。

図 2 に Sn^{4+} の存在が確認された二つの試料と三つの標準試料の X 線回折 (XRD) パターンを示す。 300°C で 150 時間焼成した試料は、最適合成条件 ($300^\circ\text{C} \cdot 24$ 時間) で得られた SnTiO_3 と類似の積層構造を有するのに対し、 $700^\circ\text{C} \cdot 24$ 時間の焼成では積層構造は失われ、 SnO_2 およびアナターゼ型 TiO_2 へと分離していることがわかった。

特異な誘電性が期待される SnTiO_3 は、熱分解後は TiO_2 層がアナターゼ構造で保持されていることが明らかになり、触媒活性の応用としても期待がかかる物質といえる。

[1] S. F. Matar *et al.*, *Chem. Phys.* **355**, 43-49 (2009).

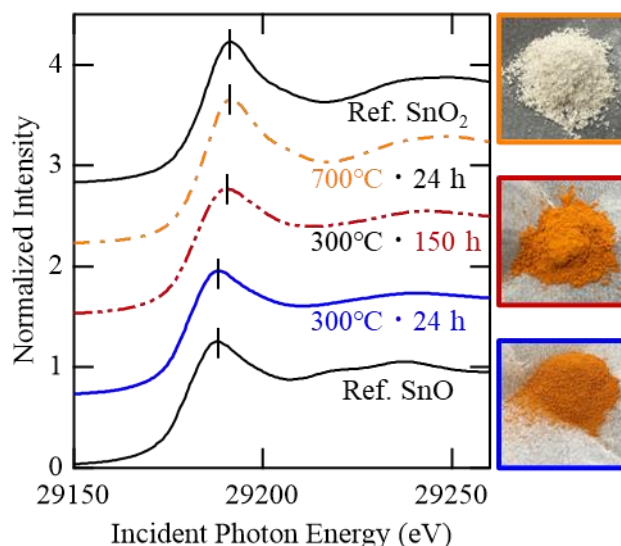


図 1 . Sn K 吸収スペクトル

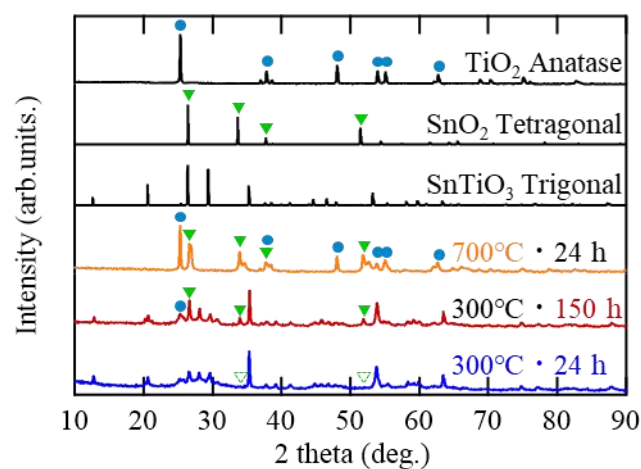


図 2 . X 線回折(XRD)パターン

KTa_{1-x}Nb_xO₃ 結晶の電歪係数 Q_{12} 、 Q_{44} の測定評価

Evaluation of electrostrictive coefficient Q_{12} and Q_{44} of KTa_{1-x}Nb_xO₃ crystals.

京都先端科学大院工, [○](M2) 高橋 大冨, 今井 欽之

Kyoto Univ. of Adv. Sci. E, [○]Daiki Takahashi, Tadayuki Imai

E-mail: 2024mm13@kuas.ac.jp

[はじめに] KTa_{1-x}Nb_xO₃ (KTN) 結晶は巨大な電気光学効果で知られた物質であり、光線の向きを変えることができるなど、電気光学効果に質的な変化をもたらすことが期待されている。KTN の電歪効果による歪みは、それ自身が光路長を変える要因になり、さらに光弾性効果による屈折率変化を通して光路長を変化させる。ゆえに、電歪効果による歪みは電気光学デバイスの開発における重要な要素であるため、具体的な電歪係数を明らかにする必要がある。また、KTN に印加する外部応力による歪みは誘電率を変化させ、これは電歪効果の逆の現象であることが知られている^[1]。前回、我々はリチウムが添加されていない KTN について、外部応力による結晶の歪みによって引き起こされる誘電率の変化から電歪係数 Q_{11} を導出した^[2]。今回我々は KTN の電歪係数 Q_{12} と Q_{44} を測定したので報告する。

[実験] KTN チップの上面と下面に設置されたブロックにより温度制御を行いつつ、これらのブロックに荷重をかけた。さらにこれらのブロックに LCR メーターを接続して誘電率を測定する。立方晶から正方晶への相転移温度(T_c)から+1°C上から+20°C上までの誘電率の値を測定し比較した。KTN チップを(100),(110)の両方を用意し、サイズは両方とも 4.0 mm×3.2 mm×1.2 mm である。(100) のチップでは 1.2 mm×4.0 mm 面に荷重をかけ、(110)では 4.0 mm×3.2 mm の(110)面に荷重をかけた。

[結果] Fig.1 に(100)面に荷重をかけた際の誘電率の温度依存性の変化を示す。縦軸は誘電率の逆数 γ であり、横軸は T_c との差である。Fig. 2 は Fig.1 から導出した Q_{12} の温度変化についてまとめたものである。 Q_{44} については当日発表する。

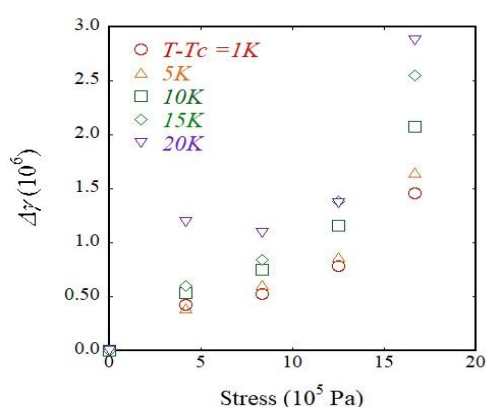


Fig. 1 Stress dependence of $\Delta\gamma$.

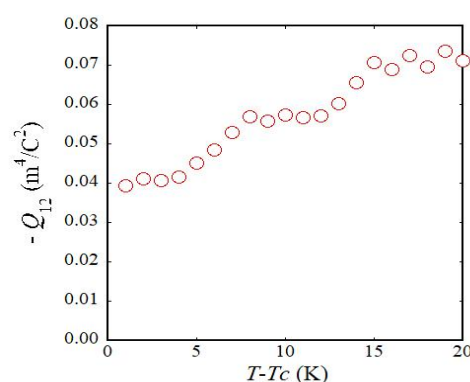


Fig. 2 Temperature dependence of Q_{12}

[謝辞] 本研究は JSPS 科研費 21K04714 の助成を受けたものです。

[参考文献]

[1]. H. Uwe et al., J. Phys. Soc. Jpn, **38**, 186 (1975)

[2] 高橋 他, 第 85 回応用物理学会秋季学術講演会, 18p-C301-11 (2024).

Temperature dependence of piezoelectric properties of lead relaxor-based textured piezoelectric ceramics

Hiroshi Maiwa¹, Yohachi (John) Yamashita^{1,2}

¹ Shonan Institute of Technology, Japan, email address; maiwa@mate.shonan-it.ac.jp

² North Carolina State University, USA

Piezoelectric single crystals (SC) have excellent piezoelectric properties, however, piezoelectric ceramics are advantageous in terms of mechanical properties and workability. It is important for piezoelectric materials to achieve high piezoelectric properties over a wide temperature range, and it is also important for applications that the piezoelectric properties change little and are not lost over the operating temperature range. In this study, we prepared the samples by cutting oriented piezoelectric ceramics in different cutting directions, and evaluated their properties and reported the results.

Samples cut out of oriented ceramics TX101 manufactured by QorTek Co. USA in the horizontal and vertical directions to the oriented plane were evaluated. The horizontal plane is strongly oriented to the (100) plane. In addition, by scanning electron microscopy, it was observed that crystal grains of 5-30 μm were arranged in the horizontal direction in the cross section. Fig. 1 shows the dielectric properties of the horizontal sample. Horizontal samples tend to have smaller dielectric constants. The piezoelectric d_{33} constant has so far been obtained to be 803 pC/N and 565 pC/N for horizontal and vertical samples, respectively. The temperature dependence of the piezoelectric properties was determined by measuring impedance, capacitance, and dielectric loss under automated temperature control. The measurement results are shown in Figure 2. The present textured ceramics showed piezoelectric properties up to 192 °C.

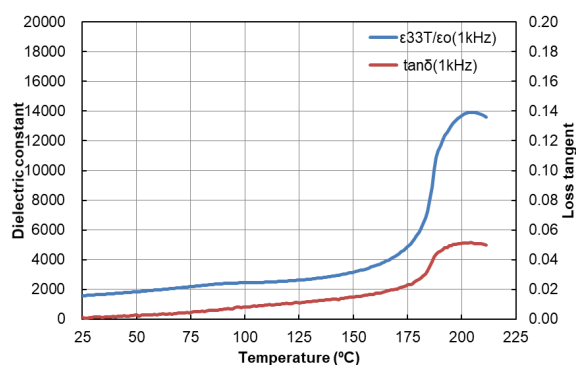


Fig. 1 Temperature dependence of the free dielectric constant and loss tangent of the textured ceramics.

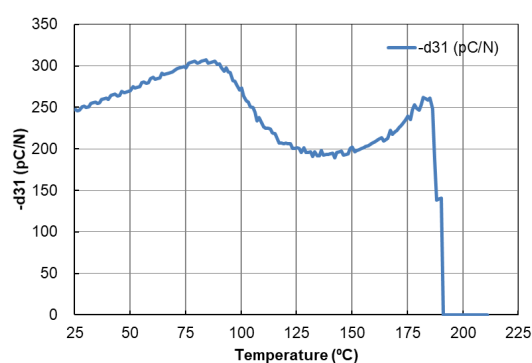


Fig. 2 Temperature dependence of the piezoelectric d_{31} of the textured ceramics.

(0.4-x)(Bi_{0.5}K_{0.5})TiO₃-0.6BiFeO₃-xK(Ta_{0.97}Mo_{0.03})O₃ (x=0.025, 0.05) の強誘電特性、平均・電子構造の熱処理依存

Effects of Heat Treatment on the Ferroelectric Properties, Average and Electronic Structures of

(0.4-x)(Bi_{0.5}K_{0.5})TiO₃-0.6BiFeO₃-xK(Ta_{0.97}Mo_{0.03})O₃ (x=0.025,0.05)

東理大創域理工¹, 井手本 康¹, 長谷川 拓輝¹, 石橋 千晶¹, 北村 尚斗¹

Tokyo Univ. of Sci.¹, Yasushi Idemoto¹, Hiroki Hasegawa¹, Chiaki Ishibashi¹, Naoto Kitamura¹,

E-mail: 7225543@ed.tus.ac.jp

1. 目的 近年、高いキュリー温度と良好な圧電特性を有する (Bi_{0.5}K_{0.5})TiO₃-BiFeO₃ が注目されている。しかし、問題として、難焼結性であるため電気特性が低下することが挙げられる。当研究室ではこれまで、(Bi_{0.5}K_{0.5})TiO₃-BiFeO₃ に Ta₂O₅ と MoO₃ を種々の比で固溶させた試料を SPS を用いて作製した試料において、強誘電特性が向上したことを報告している¹⁾。本研究では、さらなる特性改善を目的とし、Ta₂O₅ と MoO₃ の組成を増加させた。また、リカバリーアニール温度 700, 750°C における物性・強誘電特性の評価を行い、平均・電子構造解析を行った。

2. 実験 (0.4-x)(Bi_{0.5}K_{0.5})TiO₃-0.6BiFeO₃-xK(Ta_{0.97}Mo_{0.03})O₃ (x=0.025, 0.05) を合成した (以下、25KMT, 50KMT)。仮焼後に CuO を加え、ボールミルを 6h (x=0.05 の場合は 9h) 行った。そして、SPS 法により焼結し、リカバリーアニールを 2 条件 (750°C, O₂, 18h あるいは 700°C, O₂, 18h) で行った。粉末 X 線回折測定により相の同定を行い、ICP 発光分光分析により金属組成を求めた。また、真密度測定により相対密度を求め、SEM により焼結状態を観察した。強誘電特性については *P-E* ヒステリシスループ、比誘電率・誘電損失の温度依存、キュリー温度・相転移温度を測定した。また、放射光 X 線回折測定 (BL19B2, SPring-8) や中性子回折測定 (iMATERIA, J-PARC) のデータより平均構造解析 (Rietan-FP, Z-Rietveld) を行い、Maximum Entropy 法 (MEM) により電子構造を検討した。

3. 結果と考察 粉末 X 線回折パターンより、全ての試料は菱面体相で帰属することができ単一相が得られた。ICP による金属組成分析では概ね仕込み組成通りの値となった。SEM による観察と真密度測定から緻密な焼結体が得られたことが分かった。誘電率測定では、リカバリーアニール温度の低下によってキュリー温度の上昇や比誘電率の増加

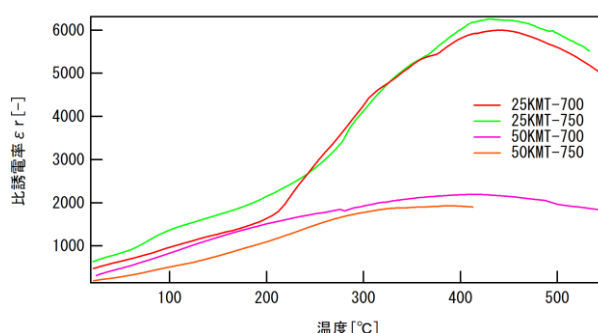


Fig. 1 各試料の比誘電率測定結果

が見られた。以上のような特性変化の要因を明らかにするため、Rietveld 法や MEM を用いて、平均・電子構造の観点から検討した。その結果、Ta, Mo 添加量増加やリカバリーアニールにより歪みが増加することがわかった。

参考文献

1) 近藤真輝, 修士論文, 東京理科大学大学院 (2024).

Ba 置換 $\text{Sr}_3\text{Al}_2\text{O}_6$ 水溶性バッファ層を用いた BaTiO₃ フレキシブル薄膜の作製と構造制御 Structure Control of BaTiO₃ Flexible Thin Films Using Ba-substituted $\text{Sr}_3\text{Al}_2\text{O}_6$ Water-Soluble Buffer Layers

熊本大¹ ○(M2)高宮 啓志¹, 松尾 拓紀¹, 野口 祐二¹

Kumamoto Univ.¹, ○Keishi Takamiya¹, Hiroki Matsuo¹, Yuji Noguchi¹

E-mail: matsuo_h@cs.kumamoto-u.ac.jp

1. 緒言：近年、電子デバイスの小型化やフレキシブル化が求められる中で、優れた誘電特性を示すフレキシブル強誘電体薄膜キャパシタの開発が期待されている^[1]。フレキシブル強誘電体薄膜の作製手法として、 $\text{Sr}_3\text{Al}_2\text{O}_6$ 等の水溶性酸化物でバッファした単結晶基板上に強誘電体薄膜をエピタキシャル成長させた後、バッファ層を水で溶解除去してポリマーシートに転写する手法が報告されている^[2]。一方、水溶性バッファ層と誘電体層の格子マッチングが、転写後のフレキシブル薄膜の構造や誘電物性に与える影響については明らかになっていない。本研究では高品質なフレキシブル BaTiO₃ (BT) 薄膜キャパシタを得ることを目指し、組成制御により格子定数を変調可能な ($\text{Ba}_x, \text{Sr}_{1-x}$)₃Al₂O₆ (BSAO) 水溶性バッファ層を導入し、バッファ層の格子定数が BT 薄膜のドメイン構造や分極特性に及ぼす影響について評価した。

2. 実験：SrTiO₃ (STO) (100) 単結晶基板上に、パルスレーザー堆積 (PLD) 法によって Al₂O₃/SrRuO₃(SRO)/BT/BSAO/STO エピタキシャル積層膜を成膜した。SRO は電極層、Al₂O₃ は保護層である。BT の膜厚は 200 nm とし、BSAO の組成は $x = 0.5$ とした。成膜後に浸水させることで BSAO を溶解してポリジメチルシロキサン (PDMS) シートに転写し、さらに Pt 電極をスパッタして Pt/BT/SRO/Al₂O₃/PDMS 薄膜キャパシタを得た。これらの試料について光学顕微鏡観察、原子間力顕微鏡 (AFM) 観察、X 線回折 (XRD) 測定、分極特性測定による評価を行った。

3. 結果と考察：Al₂O₃/SRO/BT/BSAO/STO の XRD パターン [Fig. 1(a)] において明瞭な BSAO と BT の 00 ℓ 反射が確認され、(001) 配向したエピタキシャル薄膜が得られていることが示された。転写後の BT/SRO/Al₂O₃/PDMS の XRD パターン [Fig. 1(b)] では、BSAO のピークは消失し、BT と SRO の 00 ℓ 反射が観測された。一方、比較として BT を STO(100) 基板上に直接成膜した BT/STO は、00 ℓ 反射に加え、微弱な BT の 110 反射が観測された。また AFM 観察によって、BSAO 層ではステップテラス構造が形成され、BT 層においても平滑な表面 (算術平均粗さ $R_a = 1.27$ nm) が得られていることを確認した。また、光学顕微鏡観察により、転写した BT/SRO/Al₂O₃/PDMS はクラックフリーであることを確認した。得られた BT/SRO/Al₂O₃/PDMS はフレキシブルであり、屈曲することができた (Fig. 2)。これらの結果は、BSAO が水溶性バッファ層として機能しており、(001) 配向を保ったままエピタキシャル BT 薄膜を単結晶基板から PDMS 剥離・転写できていることを示している。

発表では Pt/BT/SRO/Al₂O₃/PDMS フレキシブル薄膜キャパシタの分極特性についても報告を行う予定である。

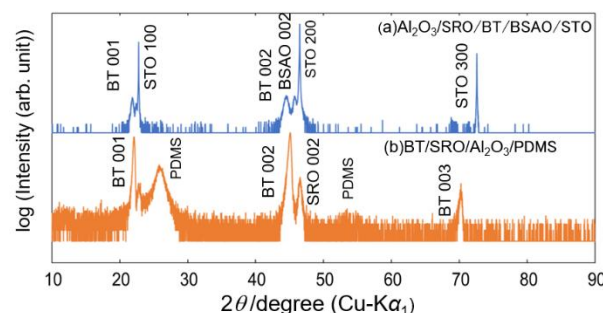


Fig. 1. XRD patterns of the thin films of (a) Al₂O₃/SRO/BT/BSAO/STO and (b) BT/SRO/Al₂O₃/PDMS.

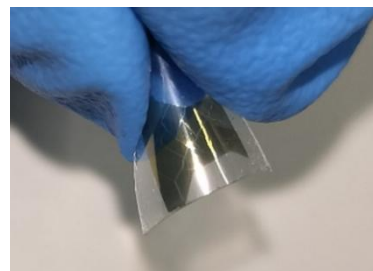


Fig. 2. Photograph of flexible BT/SRO/Al₂O₃/PDMS thin film.

参考文献

- [1] X. Jia. et al., *Adv. Funct. Mater.*, **32**, 2205933 (2022).
- [2] Q. Wang et al., *Crystals*, **10**, 733 (2020).

還元性金属蒸気によるチタン系ペロブスカイト型酸化物の低温焼結

Low temperature sintering of titanium-based perovskite oxides using reducing metal vapor

東北大 °細野 新, 山田 高広

Tohoku Univ., °Akira Hosono, Takahiro Yamada

E-mail: akira.hosono.a7@tohoku.ac.jp

【緒言】チタン系ペロブスカイト型酸化物は強還元性雰囲気中、約 1400 °C の高温焼成で半導体セラミックスとなり、特異な電気抵抗率変化が研究されている^[1,2]。講演者は第 72 回春季学術講演会にて、BaTiO₃ の圧粉体を金属 Na 蒸気中で焼成すると、僅か 800 °C で n 型半導体となり、相対密度 95% に焼結する現象を報告した^[3]。同試料は BaTiO₃ 系半導体に特有の電気物性である PTC サーミスタ特性が観測されたことから、不純物含有量が僅少であると考えられる。本講演では、この焼結現象は強還元性金属蒸気によるペロブスカイト型構造への酸素欠陥の導入と相関をもつという仮説を立て、焼結対象に CaTiO₃ と SrTiO₃ を追加し、800 °C 付近で 0.5 atm 程度の高い蒸気圧をもつ Na と K、Zn を蒸気源金属に用いた実験結果を報告する。

【実験方法】CaTiO₃、SrTiO₃、BaTiO₃ 粉末はそれぞれ CaCO₃、SrCO₃、BaCO₃ と TiO₂ の等モル混合粉を大気中 1100 °C で 10 h 焼成して合成し、直径 6 mm の錠剤状に一軸加圧成型した。錠剤を BN 製の坩堝へ投入し、Na、K、Zn 片を坩堝外側の離れた位置に配置して、Ar 雰囲気下でステンレス鋼製容器内に封入後、600–1000 °C で 10 h 保持した。冷却後の容器から回収した焼結体の相対密度をアルキメデス法又は寸法・重量測定で評価し、結晶相を X 線回折法で同定した。試料の破断面を走査型電子顕微鏡で観察し、表面研磨した一部試料の電気抵抗率を測定した。

【結果と考察】Na 蒸気中、600–1000 °C で各物質の圧粉体を 10 h 保持して得た焼結体の相対密度を Fig. 1 に示す。BaTiO₃ は 750 °C、10 h の焼成で黒色の半導体となり、相対密度 91% に到達した一方、CaTiO₃ と SrTiO₃ は高密度化に比較的高温を要し、それぞれ 900 °C、1000 °C の焼成で相対密度が 90% を上回った。高密度な焼結体は青みがかった黒色の半導体であり、ペロブスカイト型構造の酸素の一部が欠損し、Ti⁴⁺ が部分的に還元されたとみられる。結晶性固体の物質拡散係数は欠陥濃度に比例する^[4]ため、強還元性の Na 蒸気的作用で生成する酸素欠陥が焼結を促進したと考えられる。エリンガム図上で Na よりも還元性が僅かに低い金属 K 蒸気中にて BaTiO₃ を 800 °C で 10 h 焼成すると相対密度 89% に至った一方で、還元性が著しく低い Zn 蒸気中では試料の変色や焼結は起こらなかったことから、金属蒸気の還元性が酸素欠陥生成と焼結に寄与したと推測される。

謝辞 本研究の一部は科研費 (24K23095) の助成により実施された。

参考文献 [1]O. Saburi, *J. Phys. Soc. Jpn.*, 14, 1159 (1959)., [2]S. Hirose *et al.*, *J. Appl. Phys.*, 104, 053712 (2008)., [3]細野新ら, 第 72 回応用物理学会春季学術講演会講演予稿集 16p-K307-2, [4]守吉佑ら著, セラミックスの焼結, 内田老鶴圃 (1995).

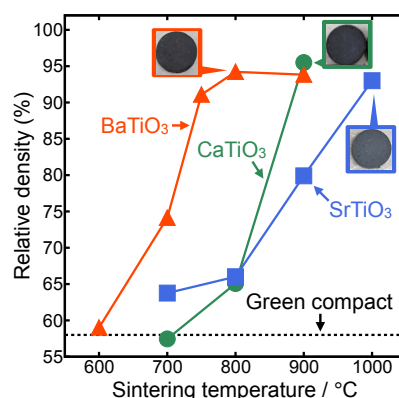


Fig. 1. Relative densities and photographs of semiconducting ceramics obtained by heating CaTiO₃, SrTiO₃, and BaTiO₃ pellets in Na vapor at 600–1000 °C for 10 h.