

多結晶 HfO_2 における酸素欠陥の拡散・凝集箇所に関する理論的検討

Theoretical study on moving locations of oxygen vacancies in polycrystalline HfO_2

東理大理¹, 鳥取大工², 物材機構³

○肥田聡太^{1,2,3}, 森田巧¹, 山崎隆浩³, 奈良純³, 大野隆央³, 木下健太郎¹

Tokyo Univ. of Science¹, Tottori Univ.², NIMS³

○S. Hida^{1,2,3}, T. Morita¹, T. Yamasaki³, J. Nara³, T. Ohno³, K. Kinoshita¹

E-mail: b13t3052@faraday.ele.tottori-u.ac.jp

【序論】これまで我々は実験結果に基づいた多結晶金属酸化物計算モデルを構築して, Vo の荷電状態を変えた第一原理計算及び第一原理分子動力学シミュレーション(MD)を実行し, 荷電状態の変化による Vo の拡散・凝集が表面近傍でおこることを報告してきた[1]. 今回, さらに, 結晶表面と内部で Vo の拡散・凝集の繰り返し可能性に差異を見出したので報告する. 【計算方法】本研究では第一原理分子動力学プログラム PHASE/0[2]を用いた. 実験結果から構築した $\text{HfO}_2(110)$ 表面モデルとバルクモデルに Vo を導入し, 電子数を調整して Vo の荷電状態を中性(Vo^0)・二価(Vo^{2+})とした構造の静的なエネルギーを評価した. さらに, Vo^0 及び Vo^{2+} を拡散・凝集させた構造に 1000 K の温度を与える MD を行い, 構造の変化を観測した. 【結果及び考察】MD の結果として, Fig. 1 に Vo の荷電状態の変化に伴う構造変化を(a)表面モデル, (b)バルクモデルそれぞれについて示す. Vo^{2+} を2個導入した場合, いずれも Vo^{2+} は互いに反発し, 分散する(i)→(ii)のに対し, Vo^0 の場合は表面モデルのみ Vo^0 が引き合い凝集する((iii)→(iv))ことがわかった. つまり, 可逆的な Vo の拡散・凝集は結晶粒表面のみで生じている. Vo^{2+} 間の反発力は Vo^{2+} のクーロン相互作用に起因し, 表面近傍でもバルク中でも同じ現象を示す. 一方, 中性状態に関しては, Vo^0 を導入した静的なエネルギーの比較を行い, Vo^0 の生成エネルギーはバルク中よりも表面近傍, 特に, 表面第2層で 0.76 eV 低いことが分かった. これは, Vo^0 は表面第2層に向かう力を受けることを意味する. 複数の Vo^0 が同一の安定層に集まることで, Vo^0 間に, 言わば疑似的な凝集力が生じる. 故に, 可逆的な Vo の拡散・凝集は Vo^{2+} の強い反発力と, 表面近傍特有の格子の歪みややすさに起因する Vo^0 の見せかけの引力によって初めて実現する. [1] 肥田等, 第79回応用物理学会秋季学術講演会, 20a-222-1 (2018). [2] T. Ohno *et al.*, SC '07 Proc. 2007 ACM/IEEE conference on Supercomputing, 57. 【謝辞】本研究の一部は NIMS の材料数値シミュレータを用いて得られた.

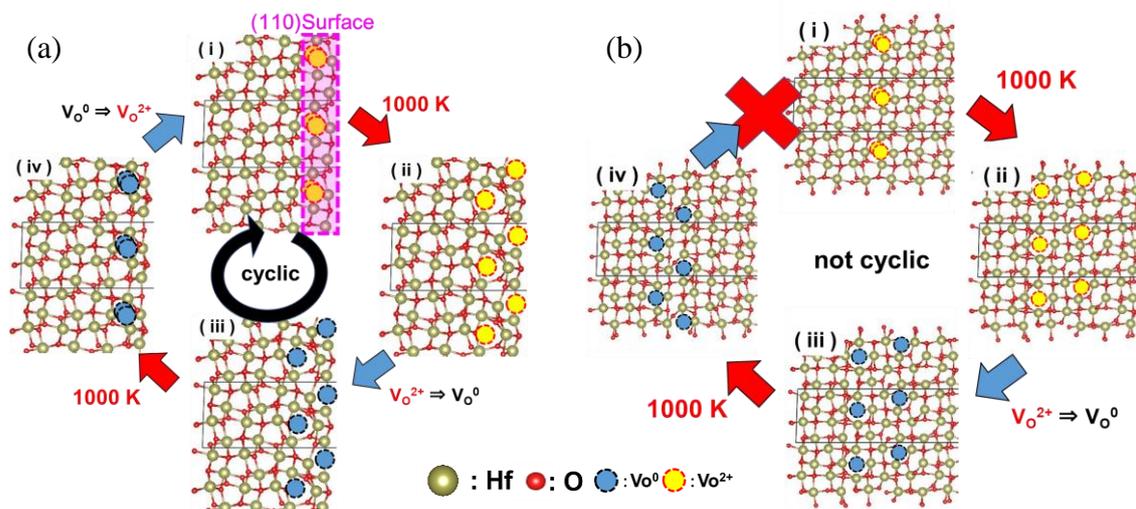


Fig. 1 Structure changes that (a) (110) surface model and (b) bulk model