

反電場の誘電率からみる渦分域の矛盾

Contradiction of Vortex Domains Indicated by Appropriate Permittivity for Depolarization Field

九大理 〇渡部 行男

Kyushu Univ. 〇Yukio Watanabe

E-mail: watanabe@phys.kyushu-u.ac.jp

欠陥による静電遮蔽がなれば、有限サイズの強誘電体には、自発分極 P_s から生じる電場(反電場 E_d)が存在する。多くの場合、 E_d は、誘電応答で小さくなった値が用いられるが、これは誤りであり^[1,2]、反電場が重要になる現象では問題になる。例えば、自由表面の場合、標準は $E_d = -P_s/\epsilon_f\epsilon_0$ (ϵ_f : 強誘電体の比誘電率(100 程度))、正しくは $E_d = -P_s/\epsilon_0$ か $-P_{s0}/\epsilon_f\epsilon_0$ (P_{s0} : $E_d = 0$ の P_s)。平行平板キャパシターでは、この違いは、通常小さいが、反電場による臨界膜厚近傍では本質的誤差になる。

同様の問題に、標準的な理解になろうとしている「渦分域」がある。渦型分域は第一原理計算 (分子動力学) から提案され、電子的遮蔽^[3]や欠陥を含まないので、反電場が存在する。このため、これらの著者らが主張するよう反電場によって、Kittel の平行分域のナノスケール版^[4]である渦型分域が生じる。このような「渦分域」は、実験で多数確認されている。この場合、遮蔽されない場合、上記 $E_d = -P_s/\epsilon_0$ 。渦では向きが変わることを考えると $E_d \sim -P_s/3\epsilon_0 \sim 30(10)\text{V/nm}$ [PbTiO₃ (BaTiO₃)]。即ち、これらの理論の「渦分域」は、このような巨大電場があつてのみ存在できる。このような電場があれば、自由電子励起が起こる^[3](図)か欠陥が生成する。即ち、「渦分域」理論の前提条件は成立しえない。

この視点から、「渦分域」の実験を見直すと、電場の測定がなく、薄膜界面の報告のみで「自由表面での渦分域」の報告がない。このため、応力起源が排除できない。さらに、これらの薄膜試料は、高温(>500°C)真空中で、逐次体積されているので、薄膜作成中少なくとも最表面は $P_s=0$ ($=E_d$)。

このため、反電場による「渦分域」ができるとすれば、これが体積した後の反電場によるが、高温真空中は薄膜に十分な欠陥があるので温度を下げるまでは、 $E_d=0$ 。即ち、「渦分域」に必要な $E_d \sim 30(10)\text{V/nm}$ が、「高温真空中で作成された薄膜に存在できるか」が、実験で見られる「渦分域」の起源を決めることになる。特に、報告されるものは、作成後十分時間がたったものなので、反電場は殆ど消えているはずである。

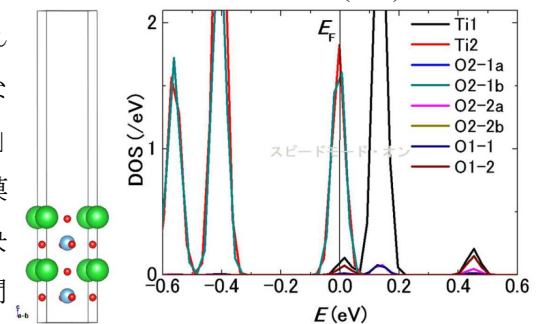


図 1.5 格子の BaTiO₃ の表面自由電子

このように、「渦分域」と報告されているものを、主流の理論に拘らず素直に見れば、薄膜界面で見られる点に注目すべきと思える。特に、これらの試料は生成が不可避な真空高温で作成された薄膜なのでなおさらである。薄膜界面では、格子不整合や欠陥による巨大な応力で、 a/c 分域ができることが共通認識である。すると、「渦型分域」という実験報告は、理論の「渦型分域」でなく、旧来の応力起源の a/c 分域^[4]を原子スケールでの記述と見做すべきと思える。

[1] Watanabe, *Scientific Reports* 11:2155 (2021) (<https://rdcu.be/ceaeW>), [2] Watanabe, *J. Phys. Soc. Jpn.* 79, 034713 (2010), [3] Watanabe, *Phys. Rev. B* 57, 789(1998); *Phys. Rev. Lett.* 86, 332 (2001) [4] Watanabe, *Ferroelectrics* 401, 61 (2010).