

NdNiO₃ 薄膜における水素誘起高抵抗化現象と密度汎関数理論シミュレーション Hydrogen-induced high resistivity phenomenon in NdNiO₃ thin films and its density functional theory simulations

阪大産研¹, 阪大院工² ◯谷口勇貴¹, Musa Alaydrus², 濱田 幾太郎², 田中秀和¹

SANKEN, Osaka Univ.¹, Graduate School of Engineering, Osaka Univ.², ◯Yuki Taniguchi¹,
Musa Alaydrus², Ikutaro Hamada², Hidekazu Tanaka¹

E-mail: taniguchi77@sanken.osaka-u.ac.jp

ReNiO₃ (Re=rare earth 元素, RNO) に水素イオンをドーピングすることで幅広い温度領域に渡り非常に大きな抵抗変調が報告されている[1]。ドーピングしたイオンを電界で駆動し、イオンの空間分布を変調することによって、電界を用いて巨大抵抗変調を可能とする酸化物イオントロニクスデバイスの創製が期待される。イオンの伝導は従来キャリアとして用いられてきた電子と比べてかなり遅いため、スイッチングデバイス展開に向け、水素イオンの拡散速度の向上が課題である。本研究ではパルスレーザー蒸着法を用いた薄膜作成及び Pt 触媒による水素ドーピング抵抗変調/拡散共同観察実験と、密度汎関数法に基づくシミュレーションを併せ、水素ドーピング抵抗変調現象の解明と設計を試みた。

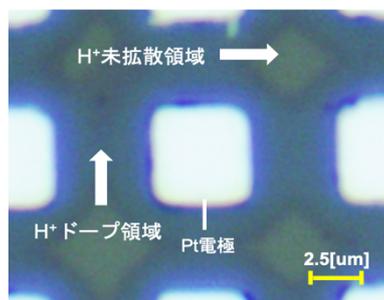


Fig 1. NdNiO₃ thin film After proton doped
t=3500 [s] T= 473 [K]

【実験】SrTiO₃(100)基板上に PLD 法で成膜した NdNiO₃ エピタキシャル薄膜に一辺 5 μm のドット状の Pt 電極を付与し、5%H₂+Ar ガス中で、T=473[K]において Pt 触媒法によりプロトドーピングを行った。プロトドーピング(ドーピング時間 t=3500[s])により抵抗が約 10⁴ 倍上昇することを確認した。Fig.1 にプロトドーピング後の NdNiO₃ 薄膜の光学顕微鏡像を示す。Pt 電極近傍が約 2.5 μm に渡って透明化しておりプロトドーピングされていることを確認した。水素の拡散挙動の計算にあたっては self-consistent Hubbard U 補正を加えた GGA 法により、安定構造を求め、Climbing-Image Nudge Elastic Band (CI-NEB)法により、水素の拡散経路を求めた。Fig.2 に NdNiO₃ 中の水素の拡散経路とその遷移エネルギーを示す。a-b 面を横切る経路のエネルギーが 0.484[eV]と見積もられ、この経路が拡散を支配していると考えられる。これより、拡散係数は $D=4.5 \times 10^{-10}$ [cm²/s] 程度と推定された。光学顕微鏡像及び抵抗変調速度より見積もった拡散係数、活性化エネルギーとの比較により、その設計可能性を報告する。

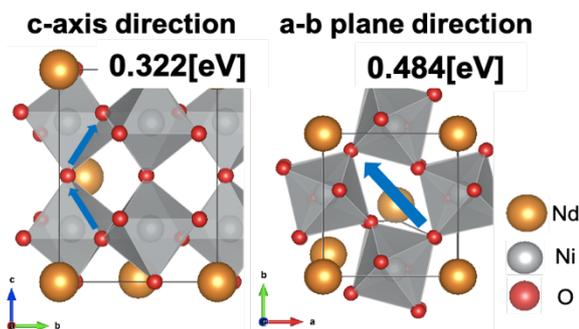


Fig 2. Schematic illustration of hydrogen diffusion and their activation energy of NdNiO₃ derived from the CI-NEB method

[1] J. Shi et al., Nat. Commun. 5 (2014) 4860.