

# 第一原理電子状態計算による $\text{Sc}_x\text{Al}_{1-x}\text{N}$ の自発分極特性評価

## Evaluation of spontaneous polarization properties of $\text{Sc}_x\text{Al}_{1-x}\text{N}$

### by first-principles calculation

九大総理工<sup>1</sup>, 産総研<sup>2</sup> (M2)古田 紘雅<sup>1</sup>, 平田 研二<sup>2</sup>, Anggraini Sri Ayu<sup>2</sup>, 秋山 守人<sup>2</sup>

上原 雅人<sup>1,2</sup>, 山田 浩志<sup>1,2</sup>

Kyushu Univ.<sup>1</sup>, AIST<sup>2</sup>, (M2) Koga Furuta<sup>1</sup>, Kenji Hirata<sup>2</sup>, Sri Ayu Anggraini<sup>2</sup>, Morito Akiyama<sup>2</sup>

Masato Uehara<sup>1,2</sup>, Hiroshi Yamada<sup>1,2</sup>

E-mail: hiro-yamada@aist.go.jp

**【緒言】**近年、Fichtnerらはスカンジウム添加窒化アルミニウム( $\text{Sc}_x\text{Al}_{1-x}\text{N}$ )の強誘電性を確認し、代表的な強誘電材料である $\text{Pb}(\text{Zr,Ti})\text{O}_3$ より高い残留分極( $P_r$ )を有することを見出した<sup>[1]</sup>。 $P_r$ が高い程、多くの静電容量の保持が可能であるため、 $\text{Sc}_x\text{Al}_{1-x}\text{N}$ は高性能な強誘電体として期待される。 $P_r$ は自発分極( $P_{sp}$ )に関連した値であり、材料設計の指針を得る上でSc濃度と $P_{sp}$ の系統的な知見を得ることは重要である。しかしながら、実験的に全Sc濃度範囲を評価するのは困難である。例えば、Sc高濃度域ではウルツ鉱型(WZ)構造が熱力学的に不安定で、岩塩型(RS)構造に構造相転移する問題がある。そこで、実験的に評価が困難な組成域でも物性評価が可能な第一原理電状態計算は有効な手段である。

本研究では、第一原理電子状態計算を利用して $\text{Sc}_x\text{Al}_{1-x}\text{N}$ における $P_{sp}$ のSc濃度依存性を評価し、Sc原子が $P_{sp}$ に与える影響を調査した。

**【計算方法】**WZ構造を有する $\text{Sc}_x\text{Al}_{1-x}\text{N}$ の固溶体結晶モデルは、SQS(Special Quasirandom Structure)法により構築した。その際に、スーパーセルのサイズはWZ構造の単位セルを基準とし $3 \times 3 \times 2$ (72原子)とした。また、極性を求める際の基準構造としてc軸方向の内部パラメータ( $u_3$ )を0.5に固定した無極性六方晶窒化ホウ素型(h-BN)構造モデルも構築した。構築したモデルの第一原理電子状態計算をVienna Ab initio Simulation Package(VASP)コードを使用して、WZ構造は原子位置・格子形・体積を構造最適化計算、h-BN構造は格子形のみ構造最適化計算を行った。構造最適化後のモデルについて、Density Functional Perturbation Theory(DFPT)法を使用してWZ構造及びh-BN構造のボルン有効電荷( $Z_{33}$ )の計算を行った。その後、文献[2]の算出式を用いて $P_{sp}$ を求めた。

**【結果及び考察】**Fig.1に $\text{Sc}_x\text{Al}_{1-x}\text{N}$ における $P_{sp}$  (■)のSc濃度依存性を示す。同時に実験(○、△)と理論計算(◆、★)の先行研究<sup>[1-4]</sup>と比較

を行った。本計算におけるAINの $P_{sp}$ は $1.33 \text{ C/m}^2$ であり、理論計算で報告されたAINの $P_{sp}$ (◆、★)<sup>[2,3]</sup>と同程度の値であった。また、実験で報告された $P_r$ (○、△)<sup>[1,4]</sup>はSc濃度の増加に伴い非線形的に低下するが、本計算で求めた $P_{sp}$ もSc濃度の増加に伴い同様の低下傾向が確認された。次に、カチオン原子が $P_{sp}$ に与える影響を評価した。アルミニウム-窒素(Al-N)結合由来の $P_{sp}$ はスカンジウム-窒素(Sc-N)結合由来の $P_{sp}$ より高いことが判明した。 $P_{sp}$ はカチオンの平均 $Z_{33}$ ( $\bar{Z}_{33}$ )と無極性h-BN構造を基準とした $u_3$ の変位( $\Delta u_3$ )の積で表現される。Sc原子の $\bar{Z}_{33}$ は、Al原子より概して高い値を示した。一方、Sc-N結合の $\Delta u_3$ は、Al-N結合に比べて低い値を示した。さらに、 $\Delta u_3$ と $P_{sp}$ の傾向は類似していた。したがって、Al-N結合由来とSc-N結合由来の $P_{sp}$ の差は、 $\bar{Z}_{33}$ ではなく $\Delta u_3$ に由来していることが分かった。

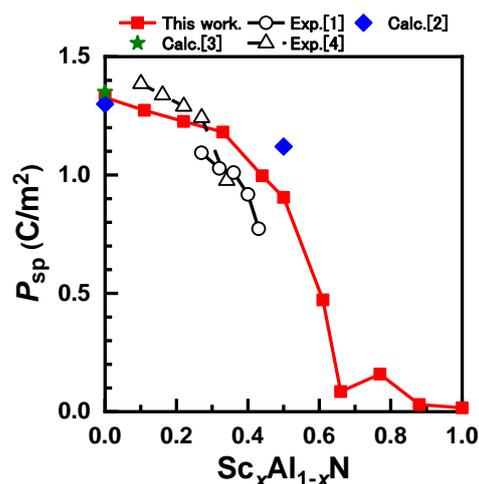


Fig.1 Calculated spontaneous polarization of  $\text{Sc}_x\text{Al}_{1-x}\text{N}$  with experimental and theoretical values by previous works<sup>[1-4]</sup>.

### 【参考文献】

- [1] S. Fichtner *et al.*, J. Appl. Phys. **125**, 114103 (2019).
- [2] M. Noor-A-Alam *et al.*, ACS Appl. Mater. Interfaces **11**, 20482 (2019).
- [3] F. Bernardini *et al.*, Phys. Rev. B **65**, 129903 (2002).
- [4] S. Yasuoka *et al.*, J. Appl. Phys. **128**, 114103 (2020).