

# 中性子ホログラフィーで強誘電体の酸素原子を観る —自発分極のさらなる理解に向けて—

## [1] 要旨

代表的な強誘電体である  $\text{BaTiO}_3$  に、近年開発された多波長中性子ホログラフィーを適用し、蛍光X線ホログラフィーでは観測が困難だった酸素原子の可視化に成功した。これより、強誘電性の起源である酸素原子の変位の大きさについても評価可能になり、自発分極を原子スケールから理解する上で強力な解析手法になることを示した。

## [2] 本文

誘電体はコンデンサやアクチュエータなど様々な電子機器に利用されている。図 1(a)のように、強誘電体は原子のスケールで見ると正負に帯電したイオンが元の位置から変位することで、電気を蓄えるなどの機能を発揮する。このイオンの変位が電子機器の性能のカギであり、その観測と評価が性能向上や新しい材料創成には不可欠である。

$\text{BaTiO}_3$  は誘電体の中でも電気を蓄える性能が非常に優れている。この物質は、400 Kを下回ると陽イオンであるチタンと陰イオンである酸素が変位して、いわゆる強誘電体となる。しかし、イオン変位の大きさや向きを評価するのは容易ではなく、いまだに定説が確立していない状況である。特に、酸素イオンについては直接観測が難しく、明らかになっていない点が多い。

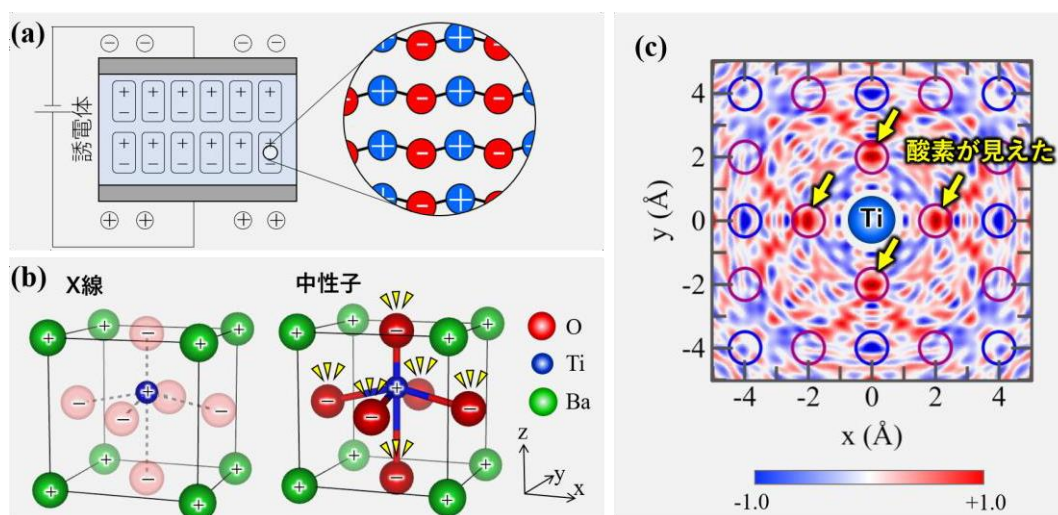


図 1. (a) 誘電体のイオン変位の概略図。(b)  $\text{BaTiO}_3$  の結晶構造。X線では酸素が見えにくいですが、中性子を使うと検出できる。(c) 中性子ホログラフィーで得られたチ

名古屋工業大学理工学科のメンバーを中心とする研究グループは、原子分解能ホログラフィーと呼ばれる手法を独自に発展させ、ここ 10 年ほどの研究で、誘電体のイオ

ン変位の評価に極めて有用であることを示してきた。ホログラフィーは、物質の3次元像を再構成する技術であるが、量子ビーム(電子線、X線、中性子線など)を利用することで、原子スケールの3次元像を与える手法となる。これまではイオン変位の評価に蛍光X線ホログラフィーという手法を用いてきたが、X線は原子番号の小さい元素ほど観測が難しくなることから、陰イオンである酸素原子は検出できなかった。即ち、正負のイオンの内、片方だけしか見ることができず、全貌が分からない状況が続いていた。

そこで本研究では、2017年に当該研究グループが初めて実証した多波長中性子ホログラフィーという手法を用いて、BaTiO<sub>3</sub>のチタン原子に加え酸素原子を直接観測することを試みた。図1(b)に示すように、中性子はX線とは異なり酸素原子を敏感に検出できるため、原理上、酸素原子像を観測できるはずである。実験は、世界最高峰の中性子強度を誇るJ-PARC(Japan Proton Accelerator Research Complex)で行った。中性子特有の性質で、酸素原子は正の値(赤色)、チタン原子は負の値(青色)の原子像として現れると予測される。実際に再生されたチタンの周りの原子像を図1(c)に示すが、まさに狙い通り、中央のチタンを囲む4つの酸素原子(矢印)およびその外側にあるチタン原子が、それぞれ赤色、青色の原子像として明瞭に観測された。この成果はJPSJの2024年10月号に掲載された。

さらに、実験で得られた像強度を詳しく解析すると、チタン原子に対する酸素原子の変位の大きさは、0.16 Åと評価された。これは、先行研究と非常に近い値であり、今回の新しい解析方法の有用性が実証された。ここでは、標準的な強誘電体に対して実験を行ったが、異種元素添加により強誘電性が大きく向上する材料も多い。本来、中性子ホログラフィーはそのような添加元素を標的とすることもでき、他の手法では解明できない局所的な分極構造を明らかにする可能性を秘めている。本成果はその第一歩であり、今後の研究の展開が期待される。

原論文 (2024年9月5日公開済)

### **Atomic Imaging of BaTiO<sub>3</sub> by Multiple-Wavelength Neutron Holography**

Kota Yamakawa, Hajime Nakada, Koji Kimura, Kenichi Oikawa, Masahide Harada, Yasuhiro Inamura, Kenji Ohoyama, and Koichi Hayashi, *J. Phys. Soc. Jpn.* **93**, 104601 (2024).

< 情報提供 : 林 好一 (名古屋工業大学物理工学科)  
木村 耕治 (名古屋工業大学物理工学科) >