

強誘電体薄膜における「負のキャパシタンス」 発現の第一原理シミュレーション

笠松 秀輔

表題のテーマの研究成果[1]について物性研・工学系研究科共同でプレスリリースを出させていただいたことがきっかけで、今回本誌での研究紹介の機会をいただいた。この研究は筆者がマテリアル工学専攻の大学院生であった頃に開始したものであり、物性研着任後 3 年近くも引っ張ってしまったが、一応まとめることができ大変ほっとしたところである。あまり物性研ではなじみの薄いテーマかもしれないので、少し背景説明を丁寧に行いたい。その分結果の部分はあっさりとしているように見えるかもしれないが、ご容赦いただければと思う。なお、余談ではあるが、今回のプレスリリースは結局、筆者の知る限り記事などにはなっていない。取り上げて欲しければ、もっと平易な内容でキャッチーかつウソをつかないリリースを書く必要があると同僚の渡辺宙志氏からダメ出しされたが(物性研だより 55 巻第 3 号参照)、なかなかさじ加減が難しい。研究成果を分かりやすく伝えることが求められる中で、そのような技術も研究者としてもっと磨くべきなのか、あるいは広報の専門家に任せるべきなのか、悩ましいところである。

【研究背景】

半導体産業では、トランジスタやキャパシタを小型化し、限られた面積の中により多く敷き詰めることで計算機の演算性能やデータ容量の増大を図ってきた。小型化しつつ性能を維持するためには、デバイス 1 つあたりの面積が小さくなる中でキャパシタンスを維持する必要がある、言い換えると、面積当たりのキャパシタンスを向上させる必要がある。そのために、絶縁膜の薄膜化や高誘電率(high-k)材料の採用が推進されているが、いずれのアプローチも、近い将来物理的な限界が来ることが目に見えている。すなわち、誘電率には限界があり、また、薄膜化を進めると最終的には原子が足りなくなる。そこで最近注目されているのが「負のキャパシタンス」である[2]。幾つかの研究グループが、常誘電体キャパシタと、同じ厚さの常誘電体に強誘電体薄膜を加えた 2 層キャパシタのキャパシタンスを比較し、後者の方が大きくなることを報告している。直列のキャパシタンスは $C_{\text{tot}}^{-1} = C_{\text{常誘電}}^{-1} + C_{\text{強誘電}}^{-1}$ のように表されるので、これらの結果は強誘電体薄膜部分のキャパシタンスが負であることを示唆している。これは、誘電体の薄膜化を進めなくてもキャパシタンスを増幅させることができることを意味する。

ここで、キャパシタンスが負であるということがどのような状況であるかをもう少し説明する。通常、誘電体は外部電場を遮蔽しようとして分極するが、この分極が行き過ぎると、外部電場と内部電場の向きが逆になり、電圧の増幅が起こる。このような性質を示すときに、その材料のキャパシタンス、あるいは誘電率が負であるという。なお、過渡的な誘電体応答のみで誘電率が負になるということがあり得るが、本稿では、静的な応答において誘電率が負になるような状況について紹介する。

誘電体のキャパシタンスは、電気変位を D 、内部エネルギーを U として、 $C^{-1} = d^2U/dD^2$ と表すことができる。強誘電体では $U(D)$ が二重井戸型なので、 $D = 0$ 近傍で負のキャパシタンスを示すことになる。通常はこの $D = 0$ 近傍の領域は不安定で自発的に分極してしまうが、何らかの方法で分極を抑制できれば、負のキャパシタンスが発現すると考えられる。具体的には、強誘電体表面の分極電荷の不完全遮蔽によって生じる反分極電場[3]や、分極ゼロが安定状態である常誘電体を強誘電体に直列に積層することで生じる分極抑制効果が提案されている[4]。

一方で、上記のような議論では、強誘電体が分極ドメインを生成することを念頭に置いていないという批判がある[5]。実際に、薄膜では多くの場合、図 1 のような縞状の分極ドメインを形成することが知られている。このようなドメイン形成によって表面分極電荷

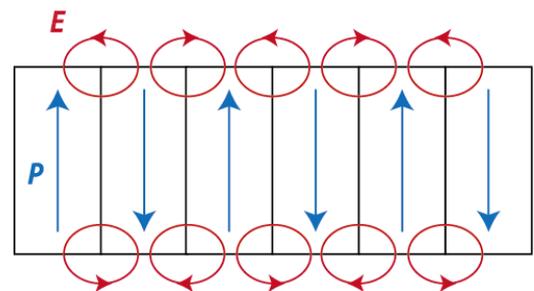


図 1: 縞状ドメイン構造形成時の分極 P と電場 E 。

【今後の展望】

この研究では、基本的には絶対零度で系のポテンシャルをなぞった計算を行っているわけで、例えば膜厚依存性や物質依存性は十分議論できておらず、種々の有限温度効果や、欠陥の影響、核生成からの分極ドメインの成長なども考慮できていない。また、負のキャパシタンス効果はなにも強誘電体に限られたものではなく、 $U(D)$ が負の曲率を持つような物質系なら何でも生じ得るものである。強相関電子系なども含めると、実はありふれた現象である可能性があり [6]、今後も興味深い研究対象であり続けるのではないかと思う。

【謝辞】

本研究は、マテリアル工学専攻の渡邊聡教授、ソウル大の Han 教授、Hwang 教授との共同研究である。計算資源としては主に、物性研スパコンシステム B を用いた。また、日本学術振興会アジア拠点プログラム、日本学術振興会特別研究員プログラム、グローバル COE プログラム「機械システムイノベーション」、および科研費による助成を受けた。

【参考文献】

- [1] S. Kasamatsu, S. Watanabe, C. S. Hwang, and S. Han, *Adv. Mater.* **28**, 335 (2016).
- [2] G. Catalan, D. Jiménez, A. Gruverman, *Nature Mater.* **14**, 137 (2015).
- [3] M. Stengel and N. A. Spaldin, *Nature* **443**, 679 (2006).
- [4] A. I. Khan *et al.*, *Appl. Phys. Lett.* **99**, 113501 (2011).
- [5] S. Kasamatsu, S. Han, and S. Watanabe, *Phys. Rev. B* **84**, 085120 (2011); *Phys. Rev. B* **92**, 115124 (2015).
- [6] L. Li *et al.*, *Science* **332**, 825 (2011).

