

名古屋大学工学研究科 エネルギー理工学専攻
エネルギー材料工学講座

エネルギー機能材料工学グループ

長崎正雅 (教授)、山田智明 (教授)、吉野正人 (助教)
Xueyou Yuan (特任助教)、博士後期課程 1 名、前期課程 7 名、学部 4 名 (2023 年度の実績)

研究分野と研究方針

【概要】

エネルギー機能材料とは、狭い意味ではそれ自身がエネルギーの種類(形態)を変換する機能を持つ材料のことであり、より広い意味ではエネルギーシステムの中で使われる特異な機能を持つ材料のことである。当研究グループでは、エネルギー(無機)機能材料の多結晶体、単結晶、薄膜、ナノ構造などを様々な手法で作製し、機能の発現・劣化のメカニズムをミクロとマクロ、実験と計算の両面から探るとともに、得られた知見を生かした新奇機能材料の創製をめざしている。

【キーワード】

イオン伝導、欠陥化合物、圧電効果(機械-電気エネルギー変換)、エナジーハーベスタ (環境発電)、電気熱量効果(熱-電気エネルギー変換)、電気光学効果、燃料電池、強誘電体メモリ、熱電変換、薄膜・ナノ構造、核融合炉材料、発光材料、シンチレータ、第一原理計算

【主な研究と内容】

(A)酸化物プロトン伝導体における水素の存在状態の解析

水素イオンがキャリアとなる酸化物プロトン伝導体の特性向上や新物質の創製のための基礎となる物質中の水素の存在状態の理解のために、第一原理計算を用いて酸化物中での水素の安定位置やその間の移動経路、それらに対する添加元素の影響を調べている。また、水素の存在位置や存在状態を明らかにするため、中性子散乱や赤外吸収分光法などの実験も行っている。

(B)スパッタ収率の結晶方位依存性の研究

高エネルギーイオンによるスパッタリングは、薄膜作製や表面エッチングに広く利用されている現象である。また、核融合炉におけるプラズマ-壁相互作用の素過程としても重要な現象である。本研究では、金属多結晶試料をイオンビームでスパッタし、スパッタクレータ深さマッピングと結晶方位マッピングを行うという新しい手法を用いて、スパッタ収率の結晶方位依存性を調べるとともに、その依存性を決める要因を明らかにすることをめざして分子動力学シミュレーションを行っている。

(C)ナノ成長プロセスによるエネルギー機能材料の創製と応用

強誘電体、圧電体、誘電体を始めとするエネルギー機能材料を対象として、新しいエネルギー変換メカニズムの創発や特性向上に取り組んでいる。これらの目的に対し、従来は材料の化学組成制御が広く行われてきたが、我々は、化学組成制御に加え、材料のナノスケール構造におけるサイズ・次元性や、その電氣的・機械的境界条件が機能に及ぼす影響に着目し、これまでにない新しいアプローチで機能の創発と制御を目指している。

具体的には、1) 強誘電体ナノロッド(1次元構造)の分極操作による巨大圧電応答の発現と応用、2) 強誘電体人工超格子膜を用いた新規機械-電気エネルギー変換メカニズムの創発、3) 強誘電体薄膜の剥離・転写技術の開発と応用、4) 強誘電体薄膜が示す電気熱量効果の解明、5) 強誘電体薄膜の電気光学特性の制御と応用、6) 新規メカニズムに基づく誘電体薄膜の特性向上、などを理論・実験の両側面から取り組んでいる。

(D)希土類イオン添加酸化物蛍光体の発光特性の解析

ホストとなる酸化物と希土類イオンの組み合わせによって大きく発光特性が異なる蛍光体材料において発光波長や発光強度を決めるメカニズム解明や特性向上のために、結晶構造、添加元素、温度の影響について実験を行い、電子状態の計算とあわせて解析している。積極的な水素添加の影響およびシンチレータ応用についても検討を行っている。

2023 年度の研究・教育の概要

【プロトン伝導性酸化物における格子歪みとその電場応答】

いくつかのペロブスカイト型プロトン伝導性酸化物では、プロトンの存在により格子歪みが誘起され、さらには電場印加によってプロトンの移動を伴う動的な歪みが生じることが報告されており、強誘電体に代わる新しい電歪材料として注目されている。しかし、プロトンが格子歪みに与える影響の詳細や、その電場応答のメカニズムは明らかになっていない。そこで、2023 年度は $\text{BaSn}_{1-x}\text{In}_x\text{O}_{3-x/2-y}\text{H}_2\text{O}$ (BSI)を対象として、パルスレーザ堆積法を用いてエピタキシャル薄膜を作製し、水蒸気溶解が格子歪みに与える影響と、その電場応答の解明に取り組んだ。薄膜の水蒸気溶解に適した電極/基板構造を明らかにしたほか、水蒸気溶解によって BSI の格子定数が増加すること、電場印加によって格子定数が減少すること、などを見出し、今後のさらなる展開に向けた見通しを得た。

【スパッタリング収率の結晶方位依存性の分子動力学シミュレーション】

スパッタリングの収率は、ターゲットの結晶方位によって異なることが知られている。我々は、金属多結晶試料を用いて事実上すべての結晶方位に対するスパッタリング収率を測定する方法を開発し、その結晶方位依存性を実験的に明らかにしてきた。さらに、結晶方位依存性が現れる原因をより詳しく理解するため、分子動力学法を用いたシミュレーションを行っている。2023 年度は、ポテンシャル関数がスパッタリング収率に与える影響の詳細を調べた。

【強誘電体薄膜における機械-電気エネルギー変換メカニズムの解明と特性制御】

強誘電体薄膜の強弾性ドメインや、強誘電体薄膜の界面における分極の不連続性を利用して、これまでにない新しい機械-電気エネルギー変換メカニズムの創出を試みている。これまでに、分極軸の方位が異

なる2つの強誘電体を用いた人工超格子膜を作製しその圧電特性を明らかにしてきたほか、分極の有無が異なる強誘電体と常誘電体を用いた人工超格子膜を作製し、その強誘電層に現れる特異な分極の Vortex (渦) 構造の形成条件や電気機械特性について明らかにしてきた。2023年度は、Zr/Ti 比が異なる2つ強誘電体 $\text{Pb}(\text{Zr},\text{Ti})\text{O}_3$ を用いた人工超格子膜における電界誘起格子歪みの詳細を、実験と理論の両側面で明らかにした (ACS Appl. Mater. Interfaces に掲載)。また、単斜晶 $(\text{K},\text{Na})\text{NbO}_3$ 薄膜におけるドメインスイッチングが圧電応答に及ぼす影響についての詳細を明らかにした (Adv. Electron. Mater. に掲載)。さらに、強誘電体の自立膜の作製に向けた犠牲層の研究に取り組んだ。犠牲層を溶解して強誘電体膜を基板から剥離する際に、しばしば応力解放によってクラックが生成する。2023年度は強誘電体膜の残留応力を低減することで、クラックの抑制に成功した。本研究成果は現在論文投稿準備中である。

【強誘電体薄膜における電気光学効果の解明】

強誘電体は電場によって屈折率が変化する電気光学効果を示すことが知られている。強誘電体の薄膜を用いることで、従来の光変調素子を大幅に小型化できる可能性があるが、強誘電体薄膜と光の相互作用の詳細は明らかになっていない。我々はこれまでスイス連邦工科大学ローザンヌ校 (EPFL) およびチューリヒ校 (ETHZ) 等と協力して、強誘電体薄膜の電気光学効果の理論の構築と実験的実証に取り組んできた。2023年度は、新規強誘電体として知られる Sc 添加 AlN 薄膜において、Sc の添加濃度が電気光学効果に与える影響を明らかにした。本研究成果は現在論文投稿準備中である。

【パイロクロア型酸化物に添加したイオンの存在位置の広がりと誘電特性に与える影響】

常誘電体であるパイロクロア型酸化物では、イオンがもつ複数の安定位置間での移動により温度に対して安定で比較的大きな誘電率やチューナビリティを示す物質系が知られている。本研究室の第一原理計算による研究で、パイロクロア型酸化物 $\text{A}_2\text{B}_2\text{O}_7$ の一部において A サイトに置換した小さなイオン M が存在位置に広がりをもつことが予想される結果が得られている。2023年度は、パイロクロア型酸化物 $\text{Y}_2\text{Ti}_2\text{O}_7$ における最適な M イオンの探索に取り組んだ。また、酸素を一部フッ素に置換した Pb-Ti-O-F 系パイロクロアについて、Ti サイトを Zr で置換することで、絶縁特性を大幅に改善できることを明らかにした。本成果は国際会議 AMF-13 & AMEC-13 にて Best poster award を受賞した。

【本年度の研究成果発表の概要】

	国内会議発表	国際会議発表	国際会議予稿	学術論文
教員	5	3	0	2
学生	6	3	0	1

本年度の卒業論文・修士論文・博士論文のタイトル

【卒業論文】

- 水蒸気を溶解させたプロトン伝導性酸化物 $\text{BaSn}_{1-x}\text{In}_x\text{O}_{3-x/2}$ 膜の格子ひずみとその電場応答
- 渦分極を有する強誘電体 PbTiO_3 /常誘電体 SrTiO_3 人工超格子の電気機械特性の向上を目指した自立膜の創製
- 誘電率の向上を目指したパイロクロア型酸化物 $\text{Y}_2\text{Ti}_2\text{O}_7$ 薄膜への Sc, La 共添加と特性評価

- 脳型コンピュータの実現に向けた強誘電体(Ba,Sr)TiO₃薄膜を用いたトンネル接合素子の創製と特性評価

【修士論文】

- 強誘電性 2 次元 SnS の広域成長に向けたパルスレーザー堆積法の適用と成長過程の観察
- 真空固相反応法によるパイロクロア型酸フッ化物 Pb₂(Ti_{1-x}Zr_x)₂O_{6-δ}F_δ の合成と誘電特性
- Pb(Zr, Ti)O₃ 膜の水溶性犠牲層を用いた転写プロセスにおけるクラック抑制
- 古典分子動力学法によるスパッタリング収率の結晶方位依存性の評価とポテンシャルの違いが及ぼす影響

その他・特記事項

- Best poster award, The 13th Asian Meeting on Ferroelectrics jointly with the 13th Asian Meeting on Electroceramics (AMF-13 & AMEC-13), M2 佐藤 遥紀, 受賞対象「Synthesis of Pyrochlore Oxyfluoride Pb₂(Ti_{1-α}Zr_α)₂O_{6-δ}F_{2δ} and their Dielectric Properties」2023 年 11 月