

論文審査の結果の要旨および担当者

報告番号	※ 甲 第 14067 号
------	---------------

氏 名 岡本 一輝

論 文 題 目

チタン酸ジルコン酸鉛ナノロッドの自己組織化成長とその圧電特性に関する研究
(Study on growth of self-assembled $\text{Pb}(\text{Zr},\text{Ti})\text{O}_3$ nanorods and their piezoelectric property)

論文審査担当者

主査	名古屋大学	工学研究科	教授	山田 智明
委員	名古屋大学	工学研究科	教授	長崎 正雅
委員	名古屋大学	未来材料・システム研究所	教授	八木 伸也
委員	大阪府立大学	工学研究科	准教授	吉村 武

論文審査の結果の要旨

岡本一輝君提出の論文「チタン酸ジルコン酸鉛ナノロッドの自己組織化成長とその圧電特性に関する研究」は、IoTのセンサーや自立電源としての利用が期待されている圧電体の特性向上について、従来の化学組成制御ではなく、ナノスケール強誘電体に発生する脱分極電界に着目し、強誘電体チタン酸ジルコン酸鉛 ($\text{Pb}(\text{Zr}, \text{Ti})\text{O}_3$, PZT) ナノロッドの自己組織化成長手法の確立と、その脱分極電界を利用した圧電特性の向上を明らかにしている。各章の概要は以下の通りである。

第1章では、本研究の背景と目的を与えている。

第2章では、高い酸素圧力下でのパルスレーザー堆積法を用いることで、自己組織的にPZTナノロッドが成長することを示し、その成長過程を明らかにしている。基板温度・ターゲット-基板間距離・ターゲットのPb組成が成長に及ぼす影響を調べ、ナノロッドの成長には射影効果と表面拡散のバランスが必要であることを示している。また、 $\text{SrTiO}_3(111)$ と(001)基板上に配向が異なるPZTナノロッドが自己組織化成長することも見出している。この結果から、射影効果に基づく動力学的な過程が、ナノロッド成長において最も支配的な因子であると結論づけている。このことは、本手法が成長異方性の小さな他の材料にも適用できる可能性を示しているほか、スパッタリング法をはじめとする他の物理気相成長法にも応用できることを示唆しており、デバイス応用に向けた工学的知見として有用である。

第3章では、第2章で確立した手法を用いて、 $\text{SrTiO}_3(001)$ 基板上に作製した正方晶PZTナノロッドの分極軸制御とその電場応答を明らかにしている。その結果、PZTナノロッドが基板に対してエピタキシャル成長すること、脱分極電界の影響により(001)配向シングルドメインが安定化することを示している。また、圧電応答顕微鏡観察より、個々のナノロッドが強誘電性による分極反転を示し、明瞭な圧電応答を示すことを明らかにしている。さらに電界下放射光X線回折(XRD)を用いて、PZTナノロッドの圧電 d_{33} 定数がバルク単結晶の理論値とほぼ等しいことを見出し、これが基板拘束の低減と脱分極電界によるシングルドメインの安定化によって説明できることを示している。このような基板拘束のないPZTのシングルドメインの圧電特性を測定した例はこれまでにない。この成果は、自己組織化成長により基板拘束のないナノロッドが作製できること、ナノロッドの脱分極電界が分極制御に利用できること、を実験的に示す重要な基礎的知見である。

第4章では、分極軸がロッドの成長軸から傾斜した正方晶(111)配向PZTでは、ロッドの半径減少によって強い脱分極電界が生じると、[111]方向に分極軸が安定化する可能性に着目し、これが圧電特性に及ぼす影響について、理論・実験の両側面から検証を行っている。 $\text{SrTiO}_3(111)$ 単結晶基板上に半径の異なる(111)配向PZTナノロッドを作製して評価を行った結果、半径の小さいナノロッドほど電界誘起格子歪みが大きく、圧電 d_{33} 定数は最大で236 pm/Vと、バルク単結晶と比較して約4倍の値を示すことを見出している。さらに、ランダウ理論に基づく熱力学現象論モデルを構築して理論検証を行った結果、半径の小さいナノロッドでは電界による分極方位の変化(電界誘起構造相転移)が容易化することが、圧電特性の向上の主要因であることを見出している。また、電界下時間分解放射光XRD測定から、圧電応答の可逆性に時間依存性があることを見出しており、これが電界誘起構造相転移における履歴現象もしくはナノロッド側面の補償電荷の除去・供給過程によって律速されている可能性を明らかにしている。

第5章では、他の研究報告例との比較を行うとともに、本研究手法の有効性について議論し、結論を与えている。

以上のように本論文では、強誘電体PZTナノロッドの自己組織化成長手法を確立し、その脱分極電界の制御で、(001)配向シングルドメインPZTナノロッドではバルク単結晶と同等の圧電特性、(111)配向PZTナノロッドでは分極回転を伴う電界誘起構造相転移の容易化によりバルク単結晶以上の圧電特性を達成している。本研究で得られたナノロッドの脱分極電界に関する基礎的知見は、PZTだけでなく環境適合性の高い無鉛圧電材料の圧電特性向上にも活かすことができると考えられるほか、確立されたナノロッドの作製手法は、産業利用されているスパッタリング法など、他の物理気相成長法にも応用できると考えられ、工学の発展に寄与するところが大きいと判断できる。よって、本論文の提出者である岡本一輝君は博士(工学)の学位を受けるに十分な資格があると判断した。