

Characterization of piezoelectric coefficient $e_{31,f}$ for {100}-oriented (K,Na) NbO₃ films prepared by hydrothermal method

H31海自39

派遣先 Joint ISAF-ICE-EMF-IWPM-PFM meeting 2019

(スイス・ローザンヌ)

期 間 2019年7月14日～2019年7月19日 (6日間)

申請者 東京工業大学 物質理工学院 博士後期課程1年 館 山 明 紀

海外における研究活動状況

研究目的

IoT社会に不可欠なセンサとセンサを駆動するために不可欠な環境にあるエネルギーで発電する“ハーベスタ”を実現できる圧電体膜について研究を行っている。圧電体膜はこれまで毒性元素の鉛を含む物質が検討されてきたが、非鉛の圧電体の使用が強く求められている。

しかし、非鉛圧電体材料は、KやNaといった蒸気圧の高い元素を多く含有し、組成ズレが容易に起こるため、これまでの方法では十分な特性が得られてこなかった。申請者は“水熱法”を用いることで最大の問題であった構成元素の揮発の問題を解決し、非鉛圧電体である(K,Na) NbO₃膜を作成し、その特性について議論を行った。

海外における研究活動報告

貴財団より海外派遣援助を受け、2019年7月14日から19日にかけてスイス・ジュネーブで開催された国際会議に参加し、講演を行った。本国際会議は、IEEEの強誘電体材料部門、電子セラミックス国際学会、ヨーロッパ強誘電体学会、圧電MEMS学会、圧電応答顕微鏡学会が合同で行われ、その発表件数は900件を超

える該当分野の世界の一流研究者が一堂に会する会議である。本会議では、申請者が世界で初めて見出した以下の3つの結果を報告した。

- a) 通常の圧電体では不可欠な分極の方向をそろえる分極処理が、水熱合成(K,Na) NbO₃膜では不要であること
- b) 水熱法で作製した膜の圧電特性が単結晶とほぼ同等の高い値を示すこと
- c) これまでで最も厚い膜厚である22μmまでの特性が一定であること

圧電体は電圧を印加することで変位を生じる逆圧電効果と、歪を印加することで電荷を生じる正圧電効果を持つエネルギー変換材料である。圧電材料はこれらの特性を活かしてアクチュエータやセンサなど様々なアプリケーションに応用されているが、中でもエネルギーハーベスタへの応用が注目を集めている。

エネルギーハーベスタへ圧電薄膜を応用する際は膜厚が厚いほど発電量が増加し、有利である。しかし、広く用いられる薄膜作製プロセスは作製温度が500℃以上と高温であり、室温と製膜温度の差から生じる熱歪が大きくなり、膜厚を厚くすると剥離やクラックが生じるという問題がある。さらに、一般的な強誘電体材料は作製直後の分極の方向が揃っておらず、そのままでは圧電性を示さないため、圧電性の

発現のためには高電圧を印加し分極の方向を揃える分極処理と呼ばれるプロセスを必要とするが、膜厚を増加させると分極処理に必要な電圧も増加し、分極処理が困難となる。

申請者は種々の作製法の中で水熱合成法に注目した。水熱合成法は作製温度が240℃と低温であるため、剥離などを生じることなく膜厚を増加させることが可能である。また、キュリー点以下の低温で強誘電相を直接作製でき、かつイオンの豊富な溶液中で作製するため、分極の方向が揃った状態で作製できる可能性がある。

研究ではまず、水熱合成法で作製したままの膜（以降「as-depo.膜」と呼称）が分極処理をすることなく圧電性を発現する自己分極膜であることを正圧電応答および逆圧電応答より明らかにした。圧電性は横方向圧電定数 $e_{31,f}$ を評価し、その値は約 -5C/m^2 であった。また、比較のため、製膜後に酸素雰囲気中600℃で熱処理した膜（以降「600℃熱処理膜」と呼称）の評価

を行い、自己分極は「as-depo.膜」の特徴であることを明らかにした。

次に膜厚を増加させて圧電性の評価を行った。「as-depo.膜」は膜厚2μmから22μmの範囲で安定した圧電性が得られることを明らかにした。一方で「600℃熱処理膜」は膜厚7μmでクラックが生じ、それ以上の膜厚では圧電性を得られなかった。

最後に「as-depo.膜」の連続駆動による疲労特性を評価した。10⁹回の電圧印加後も顕著な劣化はなく安定した圧電性を示すことを明らかにした。

以上より水熱合成法で作製した(K,Na)NbO₃膜はハーベスタへの応用に期待できることを見出した。また、発表後の質疑応答では自己分極のメカニズムについて議論し、有益な知見が得られた。

最後に、本会議への渡航費用を助成して頂いた、村田学術振興財団に厚く御礼申し上げます。