

物質探索空間の拡大による未来材料の創製  
2021 年度採択研究代表者

2022 年度  
年次報告書

片山 司

北海道大学 電子科学研究所  
准教授

誘電・光学応用に向けた新奇酸フッ化物材料の創出

## 研究成果の概要

従来、誘電・光学材料で用いられているセラミック材料のほとんどは酸化物材料であり、酸フッ化物材料の応用は限られていた。しかし、酸フッ化物の有する大気安定性と酸化物以上の電気絶縁性・広バンド幅は、酸フッ化物が酸化物以上の機能を誘電・光学材料分野で発揮する潜在的な力を持っていることを示している。

当年度、申請者は転写法の開発を行った。近年、 $\text{Sr}_3\text{Al}_2\text{O}_6$  (SAO) 水溶性犠牲層を使用した剥離および転写法が開発された。この方法では、目的のペロブスカイト酸化物薄膜をまず初めに SAO 層が製膜された  $\text{SrTiO}_3$  単結晶基板上に作製する。その後、得られた膜を水中に置き、SAO 層を溶かすことでシートを基板から剥離することができる。この合成方法は簡便で、様々なペロブスカイト酸化物に適用可能であり、酸化物にフレキシブル性を加え、また高価な単結晶基板の再利用も可能である。しかし、合成中にクラックを抑制することが困難であるという課題がある。そのため、大きなサイズ、均一性、高品質を持つ単結晶酸化物シートを転写する技術を開発することが重要であった。そこで本研究では、シート中のクラック生成を防ぐ手法の開発を行った。特に、剥離前の目的のペロブスカイト酸化物膜に保護酸化物層を堆積することで、シート中のクラック抑制を目指した。保護層の厚さ、ペロブスカイト酸化物膜の厚さ、および保護層の種類の影響を系統的に調べ、その結果、高いクラック抵抗性と高いヤング率により、非晶質  $\text{Al}_2\text{O}_3$  保護層が有効であることを見出した。できたシートは最初丸まっているが、力学的な力で広げることが可能だった。また、クラックは  $5\text{ mm} \times 5\text{ mm}$  のサイズでは観測されず、非晶質  $\text{Al}_2\text{O}_3$  保護層がクラックを防ぐのに有用であることが分かった。さらに基板から剥離する前に転写させたい他の基板と密着させることで、平坦なシートを得ることも確認した。この簡単な方法に得られたクラックのない  $5 \times 5\text{ mm}^2$  La-doped  $\text{SrSnO}_3$  (LSSO)シートは幅広いバンドギャップ (4.4 eV) と高い電気伝導度 ( $> 10^3\text{ S/cm}$ ) を示した。これらの結果は LSSO シートが深紫外光用の透明電極として高いポテンシャルを持つことを示唆している。

### 【代表的な原著論文情報】

1. “Significant suppression of cracks in freestanding perovskite oxide flexible sheets using a capping oxide layer”  
L. Gong, M. Wei, R. Yu, H. Ohta, and T. Katayama\*,  
**ACS Nano** 16, 12, 21013 (2022).
2. “Half-metallicity and magnetic anisotropy in double-perovskite  $\text{GdBaCo}_2\text{O}_6$  films prepared via topotactic oxidation”  
T. Katayama\*, S. Mo, A. Chikamatsu, Y. Kurauchi, H. Kumigashira, and T. Hasegawa,  
**Chem. Mater.** 35, 1295 (2023).
3. “Antiferroelectric-to-ferroelectric phase transition in hexagonal rare-earth iron oxides”  
B. Chen, T. Hasegawa, H. Ohta, and T. Katayama\*,  
**J. Mater. Chem. C** 10, 5621 (2022).