



Title	Synthesis and Functionality of Freestanding Perovskite Oxide Sheets Using Amorphous Oxide Protection Layer [an abstract of dissertation and a summary of dissertation review]
Author(s)	Gong, Lizhikun
Citation	北海道大学. 博士(工学) 甲第16004号
Issue Date	2024-03-25
Doc URL	<a href="http://hdl.handle.net/2115/91975">http://hdl.handle.net/2115/91975</a>
Rights(URL)	<a href="https://creativecommons.org/licenses/by/4.0/">https://creativecommons.org/licenses/by/4.0/</a>
Type	theses (doctoral - abstract and summary of review)
Additional Information	There are other files related to this item in HUSCAP. Check the above URL.
File Information	Gong_Lizhikun_review.pdf (審査の要旨)



[Instructions for use](#)

## 学位論文審査の要旨

博士の専攻分野の名称 博士(工学) 氏名 Gong Lizhikun

審査担当者 主査教授 本久 順一  
副査教授 葛西 誠也  
副査教授 島田敏宏 (大学院工学研究院)

### 学位論文題名

#### Synthesis and Functionality of Freestanding Perovskite Oxide Sheets Using Amorphous Oxide Protection Layer

(アモルファス酸化物保護層を用いた自立型ペロブスカイト酸化物シートの合成と機能性)

高い配向性と結晶性を併せ持つ機能性酸化物フレキシブルシートは、次世代デバイスの開発において重要である。しかし、結晶性酸化物は硬く、フレキシブル性を実現するためにはサブマイクロメートルレベルの厚さに薄くする必要がある。近年、水溶性の  $\text{Sr}_3\text{Al}_2\text{O}_6$  (SAO) 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、まず目的のペロブスカイト構造を有する酸化物膜を SAO-バッファーされた単結晶の  $\text{SrTiO}_3$  (STO) 基板上に製膜し、その後、SAO 層を水で溶解することで、膜を基板から剥離する。この方法により、強誘電  $\text{BiFeO}_3$  や  $\text{BaTiO}_3$  (BTO)、強磁性マンガン酸塩および  $\text{SrRuO}_3$ 、透明導電  $\text{La}:\text{BaSnO}_3$  (LBSO) など、高配向の機能性ペロブスカイト酸化物シートが得られている。この合成方法は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付加し、高価な単結晶基板の再利用を可能である。しかし、これまでシート内にクラックが生じやすいという問題点があった。実際、著者が従来からの剥離および転写法を用いて  $\text{La}:\text{SrSnO}_3$  (LSSO)、LBSO、および  $\text{Ba}_{1-x}\text{Sr}_x\text{O}_3$  (BST) シートを作製すると、多数のクラックが発生した。したがって、大きなサイズの高結晶性・高配向性単結晶酸化物シートの転写技術の開発は重要な課題であった。

著者はこの課題解決に取り組み、シート剥離前に酸化物保護層をペロブスカイト酸化物膜層上に堆積させることで、シートのクラック抑制を可能にした。保護層の厚さ、ペロブスカイト酸化物膜の厚さ、および酸化物保護層の種類の影響を系統的に調査し、非晶質  $(\alpha)\text{-Al}_2\text{O}_3$  保護層がクラック抑制に有効であることを見出した。これは、 $\text{Al}_2\text{O}_3$  ガラスの高いクラック抵抗性および/または高いヤング率に起因している。この簡単な方法により、クラックのない  $5 \times 5 \text{ mm}^2$  LSSO シート、 $5 \times 5 \text{ mm}^2$  LBSO シート、および  $5 \times 5 \text{ mm}^2$  BST シートが得られた。これらの発見は、任意の基板上で大きなサイズかつ高品質の単結晶シートを得るための簡単な剥離および転写法であり、今後の材料探索に繋がる結果である。第 1 章では、関連する研究の背景と目的が紹介されている。第 2 章では、非晶質酸化物保護層を使用した LSSO シートのクラック抑制について書かれている。 $\alpha\text{-Al}_2\text{O}_3$  が最も効果的なクラック抑制保護層であることが示されており、この剥離・転写法を用いて、大きなサイズのクラックのない LSSO シート (最大  $5 \times 5 \text{ mm}^2$ ) を得た。また、LSSO シートは広い光学バンドギャップ (4.4 eV) と室温での高い  $\sigma$  値 (1600 S/cm) を示した。さらに、高価な STO 単結晶基板を再利用も可能であった。第 3 章では、最適化された  $\alpha\text{-Al}_2\text{O}_3$  保護層を使用して、大きな格子不整合にもかかわらずミリメートルサイズのクラックのない LBSO シートを得た。さらに、

LBSO シートの形状を制御し、チューブ形状と平らな形状などを得た。チューブ形状のシートは直径 1 mm、長さ 5 mm の管状の形状を持ち、平らなシートのサイズは  $25 \text{ mm}^2$  であった。a- $\text{Al}_2\text{O}_3$  保護層の存在により、大きなクラックのない領域を得ることが可能になった。LBSO シートは広い光学バンドギャップ (3.5 eV) と高いホール移動度 ( $80 \text{ cm}^2 \text{ V}^{-1} \text{ s}^{-1}$ ) を示し、次世代の光電子デバイスに有望であった。第 4 章では、基板誘起ひずみの解放による BST 自立膜の誘電率の変調性の向上を観察した。高い電気伝導性と低い製膜温度を持つ多結晶 ITO が下部電極に適していることも見出した。 $x = 0.25$  シートは優れた強誘電性を示した。一方、 $x = 0.5$  シートは基板からのひずみを受けず、高い誘電率と大きな電場による誘電率の変調性を示した。

これを要するに、著者はペロブスカイト酸化物シートの剥離・転写に関する研究を系統的に行った。その結果、非晶質 (a-)  $\text{Al}_2\text{O}_3$  保護層を利用することで、シート内のクラック密度を大幅に削減することに成功した。著者の得た単結晶酸化物シートは単結晶由来の高い機能性を示しており、そこに自立膜由来のフレキシブル性、軽量性といった付加価値を加えることができた。これらの研究から得られた知見は、単結晶酸化物フレキシブルシートの材料探索・応用開発に繋がるものである。よって著者は、北海道大学博士 (工学) の学位を授与される資格あるものと認める。