

住環境を改善する省エネ・低コスト「サーモクロミック薄層ガラス」

— 極薄サーモクロックフィルムの開発 — (成果要旨)

氏名 和田英男^{※1}

概要 有機金属分解法 (MOD 法) を用いて、極薄フレキシブルガラス基板上に Ta 添加 VO₂ 薄膜を成膜した。本研究では、バッファ層に ZrO₂ を使用して屈折率緩和を行い、可視光透過性と日射透過率変化の向上を図るとともに、バナジウム (V) よりも大きな原子半径を持つニオブ (Nb) および タンタル (Ta) をドーパントとして用いてサーモクロミック特性の改善を試みた。その結果、可視光透過率は 60%以上、近赤外線調光率は 40%以上、相転移温度は 40°C以下に低温化することができた。

研究背景と目的

近年、カーボンニュートラルの実現やデジタル田園都市国家構想におけるテレワークの推進により、小規模オフィスや住宅の省エネの必要性が高まっている。このため、建物における熱損失が大きい窓の日射遮熱性と日射取得性を高めることにより、冷暖房費負担の軽減や CO₂ 排出量の大幅な削減に大きな効果が期待されており、エコガラスに対する補助金事業も実施されている。一方、既存住宅の多くは単板ガラスが使用されており、エコガラスへの交換は高コスト、施工負荷、廃棄負荷をとまなう。また、エコガラスや高性能近赤外吸収または反射材料は、ガラス表面コーティングにより暑熱時の近赤外域の日射遮蔽性は高められるが、遠赤外域の放射も含めた寒冷時の日射取得性が問題となる。そのため、スマートウィンドウ (調光ガラス) を利用して単板ガラスのまま、暑熱時の日射遮熱性と寒冷時の日射取得性を同時に付加し、軽量かつ低コストで施工負荷が少ない窓材開発が望まれている。

二酸化バナジウム (VO₂) は温度変化による結晶相転移に伴い、可視光透過率を下げることなく、近赤外域の光学特性の急激な変化を可逆的に低温透明状態から高温不透明状態へ移行し自動的に太陽熱流束を調整できる。そのため、「サーモクロミックスマートウィンドウ」として期待されている¹⁾。筆者らは、「有機金属分解法 (MOD 法) による VO₂ 薄膜を利用したサーモクロミックガラス」の先行研究において、大気圧下の水素添加窒素ガス雰囲気中 500 °C以下で焼成することにより、化学量論的組成の VO₂ 薄膜を耐熱温度の低いガラス基板へ低温成膜することに成功した²⁾。本研究では、カチオン元素である Nb および Ta 添加により、日射透過率変化と可視光透過率を保ちつつ、相転移温度を 40°C以下に低温化した。本研究の目的は、「省エネ・低コストサーモクロミックガラス」の実用化に向けた有機金属分解法 (MOD 法) による二酸化バナジウム (VO₂) 薄膜を応用した極薄フレキシブルフィルムを開発することである。

^{※1} 大阪工業大学 特任教授

研究成果と考察

1. サーモクロミック VO₂ 薄層フィルム

本研究では、Nb および Ta ドープ VO₂ 薄膜を MOD 法を用いて極薄ガラス基板 (G-Leaf : 50 μm 厚) 上に成膜した。作製したサーモクロミック VO₂ 薄層フィルムは、組成比や結晶密度を制御し、入射角依存性のない屈折率特性を持つ。図 1 に、Nb ドープ VO₂ 薄層フィルムの写真と構造図を示す。特長としては、バッファ層と表面保護膜により、屈折率緩和と不純物拡散および劣化防止を可能とし、① 自然光を効率的に取り入れる高い可視光透明性、② 入射近赤外光を安定して調光する能力、③ 室温付近への転移温度 ④ 多様形状に対応できるフレキシブル性を示すことである。

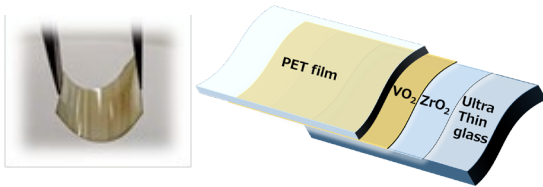


図 1 サーモクロミック VO₂ 薄層フィルム

2. VO₂ 薄膜の測定および結果

成膜試料は、X 線回折装置 (XRD) および X 線光電子分光装置 (XPS) を使用し、結晶性および結晶組成を評価・分析し、原子間力顕微鏡 (AFM) を用いて表面モロロジーと面粗さを測定した。光学特性は、可視・赤外分光光度計を用い、可視・近赤外域の透過率を透明ヒートステージにより温度精度 0.1°C 以下で測定した。

(1) XRD 測定による結晶構造解析

図 2 (a) に極薄ガラス基板に ZrO₂ 薄膜を形成し成膜した Nb 添加 VO₂ 薄膜の GIXRD (Grazing incidence X-ray diffraction : 微小角入射測定) パターンを示す。0 ~ 4 mol% Nb 添加薄膜は、すべて VO₂ 011, 211 が主要ピ

ーク、200, 21-2, 211, 022 のピークがそれ以外に検出され、単一組成の VO₂ 多結晶薄膜の成長が確認されたが、Nb 濃度が増すとともにその強度は小さくなった。また、ZrO₂ バッファ層として、ZrO₂ 111, 220, 113 が検出された。

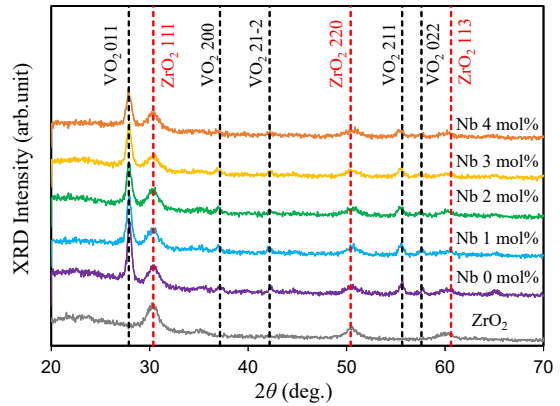


図 2 (a) VO₂ /ZrO₂ 薄膜の XRD パターン

図 2 (b) には、極薄ガラス基板に直接成膜した 0 ~ 7 mol% Ta 添加薄膜の GIXRD パターンを示す。Ta 添加薄膜はすべてにおいて VO₂ 011, 211 が主要ピークとして検出されたが、それ以外では 200, 21-1, 022 のピークが検出され、単一組成の VO₂ 多結晶薄膜の成長が確認された。また、011 ピークは、0 から 7 mol% に高濃度になるに従い、低角度側にシフトしている。これは、V よりもイオン半径の大きい Ta を添加した場合、V に置換された Ta により格子間隔が広がった結果であると推測される。

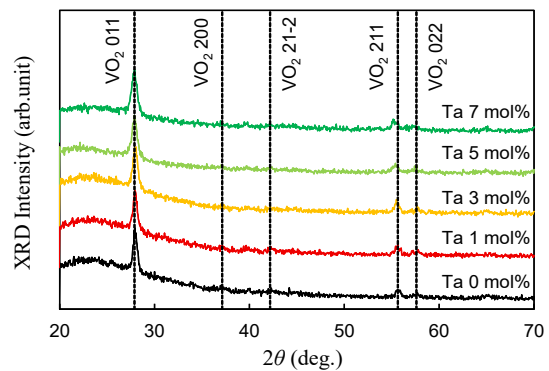


図 2 (b) Ta 添加 VO₂ 薄膜の XRD パターン

(2) サーモクロミック特性

図 3 に Nb 0 mol% ZrO₂ バッファ層なし および 0 ~ 4 mol% Nb 添加 VO₂ 薄膜の相転移前後の透過スペクトルを示す。グラフから ZrO₂ バッファ層を挿入することにより、可視光透過性が約 7%向上したことがわかる。測定温度は、相転移前 30 °C から相転移後 100 °C まで加熱して 5 °C 毎に測定した。

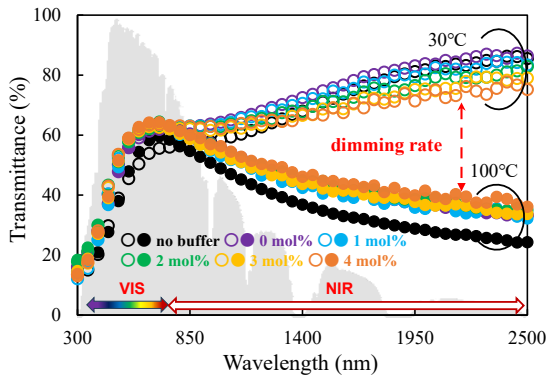


図 3 VO₂ 薄膜の相転移前後の透過率変化

図 4 に Nb 0 mol% ZrO₂ バッファ層なし および Nb 0 ~ 4 mol% 添加 VO₂ 薄膜の波長 1600 nm における転移温度前後での透過率変化を示す。無添加 VO₂ 薄膜は、82 °C の転移温度 (透過率が変化する相転移上限から下限の中心部温度) を示すが、Nb を添加すると、V への置換効果により 1、2、3、4 mol% と添加濃度が増加すると 71°C 以下となり、低温側にシフトすることがわかる。

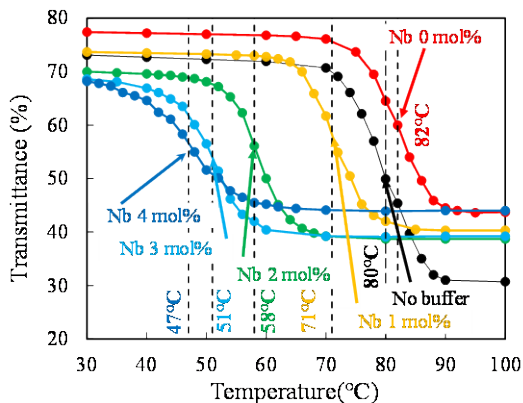


図 4 1600nm での相転移前後の透過率変化

図 5 に Nb 添加 VO₂ 薄膜における添加濃度毎の可視光透過率 (100°Cでの 380~780 nm における平均透過率)、近赤外最大調光率 (100 °C と 30 °C の最大透過率差) を示す。可視光透過率は 55% 以上、近赤外最大調光率は、40% 以上、相転移温度は、47°C 以下を示した。

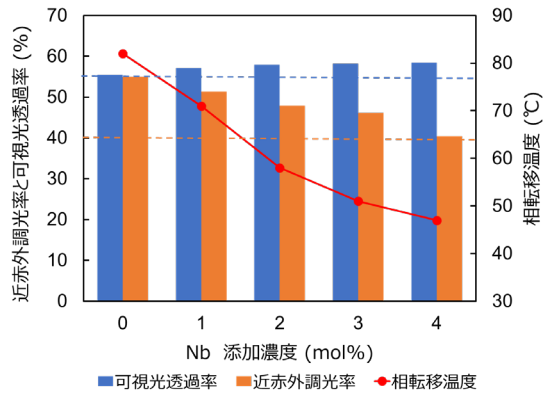


図 5 Nb 添加 VO₂ 薄膜のサーモクロミック特性

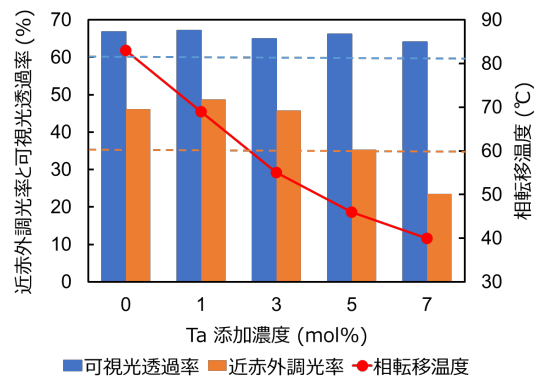


図 6 Ta 添加 VO₂ 薄膜のサーモクロミック特性

図 6 に Ta 添加 VO₂ 薄膜のサーモクロミック特性を示す。可視光透過率は 5 mol% までの試料で 65% 以上、近赤外最大調光率は、3 mol% までの試料で 45% 以上、相転移温度は、7 mol% 試料で 40°C 以下を示した。

Nb 添加 VO₂ 薄膜においては、ZrO₂ バッファ層を形成することにより可視光透過性の向上および近赤外調光率の維持が確認された。Ta 添加 VO₂ 薄膜においては、V に置換された Ta により可視光透過率の向上を確認することができた。

3. 窓ガラスの断熱性能と熱貫流率

日射熱を遮る効率が「遮蔽係数」である。3 mm 厚の透明板ガラスの遮蔽係数を「1」として、それより数値が小さいほど日射熱をよく遮るので、冷房に対する節電効果(省エネ効果)が高くなる。すなわち、遮蔽係数=日射熱の遮蔽効率と考えると、「冷房負担をどれだけ軽減できるか」という指標となる。建物の遮熱性能は、日射取得率で表される。日射取得率は、窓ガラスに入射する日射熱が屋内に侵入する熱の割合のことで、直接透過する成分とガラスに吸収されて再放熱される成分の和となる。

日射透過率を τ 、日射吸収率を α 、日射熱が屋内に再放熱される割合を N とすると、日射取得率 η は次式で表される。

$$\eta = \tau + N \times \alpha$$

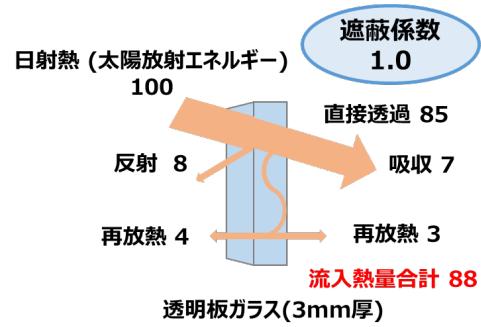
ここで N は伝達係数に逆比例して $N = R_{out}/(R_{in} + R_{out})$ となり、 $R_{in} = 0.116$ 、 $R_{out} = 0.049$ であるので、 $N = 0.297$ となる。3mm 厚の透明ガラスでは、日射透過率 $\tau = 0.86$ 、日射吸収率 $\alpha = 0.07$ で、 $\eta = 0.88$ となる。また、この透明ガラスの日射取得率の相対値から遮蔽係数 $SC = \eta / 0.88$ (Shading Coefficient) が定義されている。

図 3 (a) は、3 mm 厚の透明ガラスに対して、太陽エネルギーの日射熱を 100 とした場合、窓ガラスへの日射の透過、反射、およびガラスに吸収された熱の再放熱について示したものである。図 3 (b)、(c) は、サーモクロミックフィルムによる日射遮蔽効果を示すが、高温時には VO₂ 薄膜の相転移により日射の約 4 割が遮断され、低温時には約 8 割の日射を取り入れることができる。

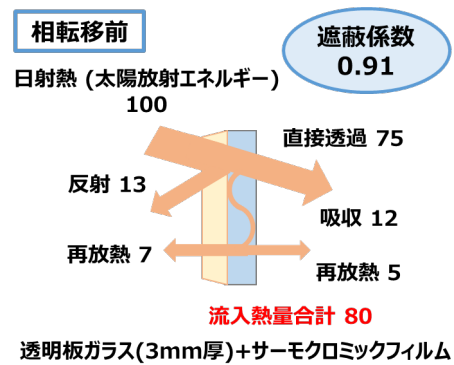
4. 現時点での成果および今後の予定

サーモクロミック VO₂ 薄層の場合、相転移前では遮蔽係数が 0.91、相転移後では、0.67 となり、高温時には日射の約 4 割を遮断し、低温時には約 8 割の日射を取得できることがわかった。

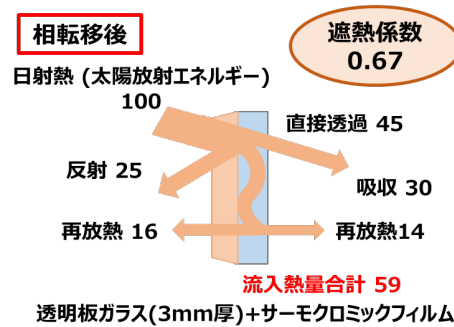
今後は、スプレーノズル噴霧方式により、薄層フィルムの大面積化を図る予定である。



(a)



(b)



(c)

図 3 VO₂ 薄層フィルムによる日射遮蔽効果

5. 参考文献

- 1) 和田英男:MOD法によるナノポーラスVO₂薄膜を用いた赤外線スマートウィンドウ, NEW GLASS 38 (3) pp26 (2023)
- 2) 和田英男:MOD法によるガラス基板上へVO₂薄膜の低温成膜, 材料 73 (2) pp172 (2024)