研究成果展開事業　研究成果最適展開支援プログラム
産業ニーズ対応タイプ　完了報告書（公開版）概要

技術テーマ：セラミックスの高機能化と製造プロセス革新
研究課題名：非鉛圧電配向体の焼結しない低温作製法の確立
～ IoT センサーおよびエネルギーハーベスター応用に向けて ～
プロジェクトリーダー
機関名　　：東京工業大学
氏　名　　：舟窪　浩

１．研究の目的

本研究の目的は、IoT社会構築に向けて、環境適用型の非鉛圧電体の圧電特性を飛躍的に向上させる配向体を、水熱法を用いることで焼結することなく低温で作製する方法を確立することである。

インターネットにセンサーを接続したセンサーネットワークは、安全安心社会構築に向けた次世代の最も重要な IoT（Internet of Things）技術であり、少子高齢化が進む日本で特に重要である。圧電体は、対象物の運動・位置等多様なセンサーに応用できるだけでなく、振動発電によりバッテリーレスも実現可能なセンサーネットワーク構築のキーデバイスである。これまでの“低温で焼結する”のではなく、水熱法を用いて“焼かない配向体作製”を行うことで、非鉛圧電体の従来の問題解決を提案する。

２．研究成果の創出状況

マイルストーン	達成状況
(1) 高品質材料の製造を目的とする水熱合成プロセスの開発　（令和 2 年 7 月末）	(1)-1.　非晶質ニオブ原料を用いることにより、粉末の生成を抑制することで、原料の高効率使用を実現し、結果として厚い配向体作製が実現できた。 (1)-2.　作製プロセスを解明し、容器サイズ等に依存しない汎用性の高い作製条件を見出した。（図 1 参照） (1)-3.　水熱合成で最も懸念される不純物である格子内 OH^- の低減方法を見出した。 (1)-4.　マイクロ波加熱による水熱合成反応の促進効果を新たに見出し、短時間作製を実現した。また、同手法によるサブミリ配向体の形成を実現することができた。 (1)-5.　有機基材上への作製方法を確立、非鉛圧電体を直接フレキシブル基材上に集積できる可能性を示した。
(2) バッファー層導入による結晶配向性制御（平成 30 年度末）	(2)-1.　基材によらない配向制御を実現するバッファー層を見出し、基材の種類によらない配向制御を実現した。 (2)-2.　広い周波数範囲において圧電特性評価を可能にする測定法を確立した。

	(2)-3.　広い厚さ範囲で、非平坦な基材上に配向体が作製できるという、本研究の配向体の特徴を用いた新デバイスを提案した。
(3) 材料組成制御による最適組成探索 （令和元年度末）	(3)-1.　5種類の元素を含む酸化物配向体を作製し、水熱法で多成分系が作製可能なことを示した。多成分組成によって、圧電特性を向上させることに成功した。(図 2 参照) (3)-2.　作製したままの配向体が自己分極し、分極処理を不要である(分極フリー特性)ことに加えて、高い圧電特性と低い比誘電率を有することを見出した。これらは、結果として高いセンサー性能指数を示すことを明らかにした。さらに回路まで考慮すると、現状最も高い値が得られている AlN 系の材料をしのぐ性能を有することを明らかにした。(図 3 参照) (3)-3.　低温作製に起因する小さな熱歪によって、厚さ 20 μm まで安定した特性が得られることを明らかにした。 (3)-4.　作製したままの配向体の高い長期安定性や連続使用耐性を明らかにした。 (3)-5.　大きなセンサー特性、ハーベスティング特性が期待できる$(Bi,K)TiO_3$ の単ドメイン(単結晶)配向体の作製に成功した。
(4) 新規装置の設計開発とミリ領域材料の製造への応用 （令和 2 年度末）	(4)-1. 原料の連続合成を可能にする装置の開発を行い、材料の連続合成に不可欠な基礎データの把握に成功した。 (4)-2. すべての原料を溶液で供給できるようにし、連続合成に目途を立てた。

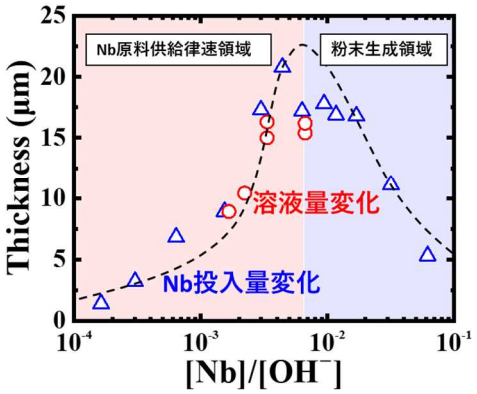

図1　最大厚みを得られる原料の投入量.

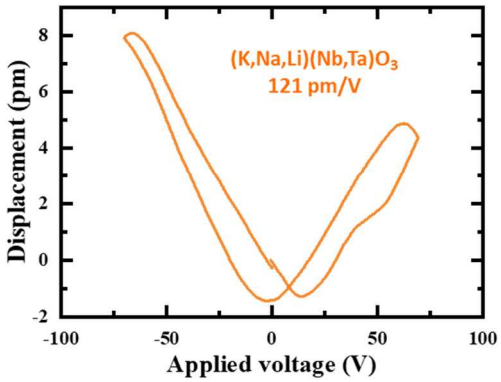

図 2　$(K,Na,Li)(Nb,Ta)O_3$ 配向体の圧電測定結果.

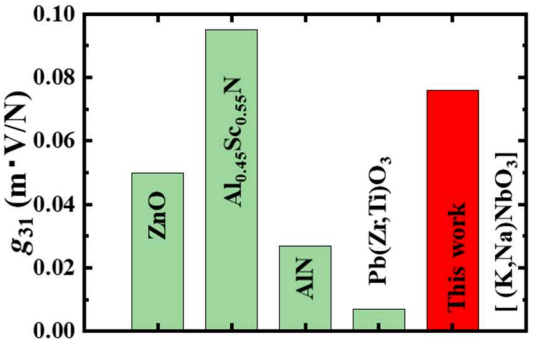

図 3 水熱法で作製した(K,Na)NbO_3 配向体のセンサー特性.

3. 今後の展開

本研究を通して、実用化の基礎となる以下の水熱プロセスの特徴を明らかにした。

① 低温作製法であること

1) 反応性が低く、結果として良好な配向体/基材界面が形成可能である。[例:(Bi,K)TiO_3]
2) 熱歪が小さいため、厚い配向体が作製可能であることに加え、広い厚さ範囲の配向体が作製できる。
3) キュリー温度以下で材料作製が可能であるため、強誘電相が直接作製できることに加え、自己分極した配向体の作製が可能であり、高電圧の印加が不要な“分極処理フリーの特性”が得られる。
4) 蒸気圧が高く気相法で作製が難しい材料の作製が可能であり、K や Na などを含む(K,Na)NbO_3 や(Bi,K)TiO_3 等の材料製造において良好な特性を取得することができる。

② 表面反応を用いること

1) 複雑な形状の基材上での材料作製を実現することができ、レンズ形状等の作製が可能である。

上記の特徴を踏まえ、まず圧電体材料の製造技術としての観点から本プロセスを俯瞰すると、当初の想定通り幅広い領域の厚さの材料が製造可能であるという利点を活用し、様々な圧電デバイス素子のプロセス技術として水熱法を積極的に利用できるものと期待される。また、本研究で明らかになった特徴は、他の製造プロセスでは実現することが難しい独自性に富んだ材料性能の発現を示唆するものであり、それらを活用した新たな圧電デバイスの設計・開発を更に推し進めることができるものと考えている。

さらに、今回明らかになったプロセスの特徴を踏まえると、圧電体材料以外の他分野での応用展開も十分期待できると考えている。

以上