

令和 5 年 6 月 22 日現在

機関番号：13801

研究種目：挑戦的研究（萌芽）

研究期間：2020～2022

課題番号：20K21886

研究課題名（和文）フレキシブル熱電変換素子を用いた自己発電型生体情報センサの開発

研究課題名（英文）Development of self-powered physiological sensor based on flexible thermoelectric generator

研究代表者

池田 浩也（Ikeda, Hiroya）

静岡大学・電子工学研究所・教授

研究者番号：00262882

交付決定額（研究期間全体）：（直接経費） 4,900,000円

研究成果の概要（和文）：マイクロ波支援ソルボサーマル合成法により、従来法より短時間（100分の1）で垂直かつ密にZnOナノロッドをNiCu布上に形成することに成功した。またナノロッド長を制御できることも見出した。

3種類の導電性布材料で試作したフレキシブル熱電デバイスにおいて、温度差に応じた出力電力を得た。異種布間の接続方法を工夫して電気的接触抵抗を抑制し、内部抵抗を低減した。アルメルクロメル熱電対とコンデンサを用いて、熱電発電デバイスのセンサ・増幅機能の模擬実験を行った。周期的波形がコンデンサを通して熱電対端子で観測され、熱電対の数に応じて信号振幅も増加した。

研究成果の学術的意義や社会的意義

本研究にて、熱電対とコンデンサを用いた模擬実験ではあるものの、熱電発電デバイス構造を使って増幅機能を持つセンシングの可能性を示すことができたことは、新しい自己発電型センサ構造への展開が期待できる意味でも大きな成果である。その基盤となるフレキシブル熱電材料の性能向上の観点から、長尺の酸化亜鉛ナノロッドを垂直かつ密に、短時間で形成する手法を確立したことは、生体センサへの応用のみならず、エナジーハーベスターとしてカーボンニュートラル社会の実現に向けても非常に意義がある。

研究成果の概要（英文）：By microwave-assisted solvothermal synthesis, we successfully formed ZnO nanorods on NiCu fabric surface densely and vertically, with a much shorter time comparing to conventional solvothermal synthesis. We can also control the nanorod length. We measured the output power properties under a temperature gradient for a flexible thermoelectric generator consisting of three kinds of conductive fabrics. By tuning the contact structure between the different fabrics, we successfully lowered the electrical contact resistance, which leads to reduction of the internal resistance in the generator. Using thermocouples and capacitors, we simulated the sensing and amplifying functions of thermoelectric generator. Periodic waves were observed at the thermocouple terminals through the capacitors. In addition, it was found that the amplitude of signal increases with increasing the number of thermocouples.

研究分野：半導体デバイス工学

キーワード：生体情報センサ 熱電変換 フレキシブルデバイス 酸化亜鉛 ナノ結晶 マイクロ波支援ソルボサーマル合成法

## 様式 C-19、F-19-1、Z-19 (共通)

### 1. 研究開始当初の背景

自由に動き回る患者を長期間継続的に生体信号モニタリングする場合、生体情報検知システムをワイヤレス化するのが理想的である。その際に問題となるのが、端末におけるセンシングや無線送信に要する電力を確保する方法であるが、現状の電池では頻繁に交換・充電の必要が生じるという課題がある。

### 2. 研究の目的

本研究ではウェアラブル発電として期待されているフレキシブル熱電発電デバイスに注目した。体温をエネルギー源とした熱電発電デバイスを電源として利用することにより、電池の交換・充電などのメンテナンスが不要で、かつ電力の安定供給が期待できる。さらに、熱電発電デバイスが p 型半導体と n 型半導体を対にした  $\Pi$  (パイ) 型構造を基礎としていることに着目し、発電デバイス自体に生体信号センシング機能と信号増幅機能を付加することを目的とした。熱電発電デバイスで得られる電力は時間的変動が小さいため、時間変化の大きい生体信号と直流/交流 (DC/AC) 分離回路を使って分離し、その直流成分を無線送信回路の電源に利用する。最終的に、フレキシブル熱電発電デバイスを基盤とした自己発電型ワイヤレス生体情報センサデバイスの実現を目指している。

### 3. 研究の方法

(1) 酸化物半導体である酸化亜鉛のナノロッド結晶(直径がナノメートルサイズの柱状構造)を、導電性の布であるニッケル銅布の表面に垂直に並べるように形成して(図1)、フレキシブル熱電材料としての性能を向上する。試料作製方法は、短時間で大面積にナノロッド結晶を形成するために、マイクロ波(電子レンジ)を利用したソルボサーマル合成法(圧力釜と同様の原理)により行った。作製した試料の結晶構造を観察して、形成されるナノロッドの形状やサイズ、数密度(単位面積あたりのナノロッド本数)と作製条件との関係を明らかにした。

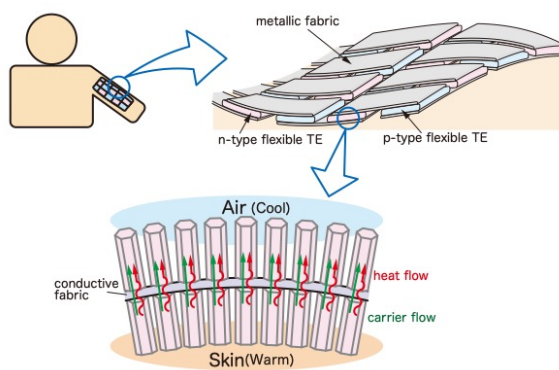


図1：ナノロッド結晶を利用したフレキシブル熱電発電デバイスの概念図

(2) 材質の異なる3種類の導電性布を用いて図1のようなフレキシブル熱電発電デバイスを実際に試作した。試作デバイスの発電特性を測定し、その性能とデバイス構造の問題点を明らかにした。

(3) 熱電発電デバイスによる生体信号の増幅機能を調べるために、熱電対と回路素子(抵抗とコンデンサ)を使って電気回路を組み、模擬実験を行った。熱電発電デバイスを模した回路に対して交流信号を入力したときの出力信号を測定し、回路パラメータと波形パラメータ(振幅や位相など)の関係を調べた。

### 4. 研究成果

(1) 自己発電型センサの基本材料となるフレキシブル熱電材料として、酸化亜鉛ナノロッド結晶/ニッケル銅布を作製した。炉を使った一般的なソルボサーマル合成法に代えて、試料作製プロセス時間の短縮化のため、電子レンジを使用したマイクロ波ソルボサーマル合成法を導入した。成長プロセス条件を変えて作製した試料を、電子顕微鏡および X 線回折装置により解析した結果、柱状の酸化亜鉛ナノロッド結晶がニッケル銅布表面に成長することを確認した(図2)。一般的なソルボサーマル合成法では5~20時間かけて酸化亜鉛ナノロッド結晶を成長していたが、マイクロ波ソルボサーマル合成法では成長時間を3~20分程度と、劇的に短くすることができた。

マイクロ波照射時間を変えたときの結晶構造を調べたところ、ナノロッドの直径は時間とともに大きくなり、ナ

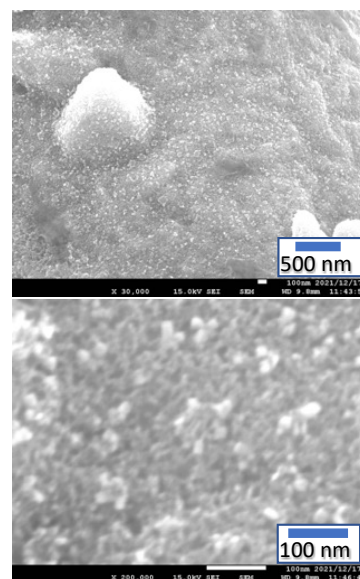


図2：マイクロ波を100Wで3分間成長したときの試料表面の電子顕微鏡像

ノロッドの数密度は減少した。成長するに連れて、隣り合うナノロッドが結合して太くなると考えられる。また、マイクロ波の出力を 100W と 200W で比較したところ、直径および数密度に顕著な差は観察されなかった。

さらに酸化亜鉛ナノロッドを長く形成するために成長工程を繰り返し行ったところ、成長工程回数に比例してナノロッドを長くできることを見出した。具体的には、1回の成長プロセスでは 140nm ほどの長さのナノロッドであったが、成長プロセスを4回繰り返すことにより 500nm の酸化亜鉛ナノロッドを形成できた。この結果は、フレキシブル熱電発電デバイスの膜厚方向に印加される温度差を、酸化亜鉛ナノロッドに効果的に印加できる可能性を示している。ナノロッドの直径についても、成長プロセス回数に対して一次関数的に増加することを見出した。成長プロセス4回のナノロッドでも直径は 60nm ほどであり、特性向上に有効であると考えられる 20nm 以上 300nm 以下の範囲に収まっていた。

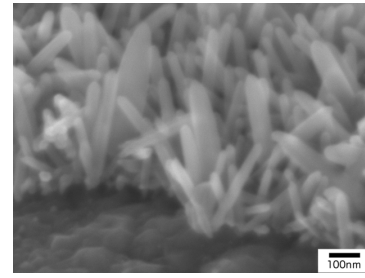


図3：成長プロセスを2回繰り返した試料の電子顕微鏡像

(2) 炭素布 (CAF) を p 型半導体材料、ニッケル銅布 (NCF) を n 型半導体材料、そして銀布 (AGF) を電極材料として、綿糸で縫うことにより 50 対の  $\Pi$  型構造を持つフレキシブル熱電発電デバイスを試作した (図4)。デバイスの厚さ方向に温度差を与えたときの出力電力を測定するための装置を自作して (図5左)、試作デバイスの出力電力測定を行なった。その結果、温度差を 5K 与えたときに 6.4pW の出力電力が得られた (図5右)。布材料を組み合わせて作製したデバイスが熱電発電デバイスとして機能することを実証できたものの、各布材料のゼーベック係数 (温度差 1K 当たりの熱起電力) と電気抵抗率から期待される電力に比べて、得られた電力は非常に低かった。この原因として、試作デバイスの内部抵抗が大きいことが考えられる。

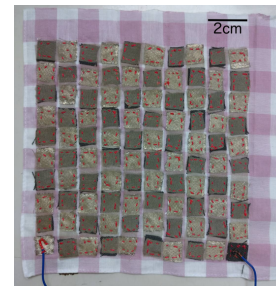


図4：試作したフレキシブル熱電発電デバイス

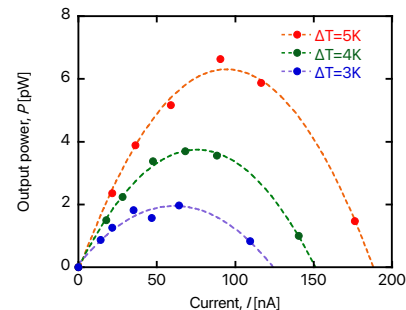
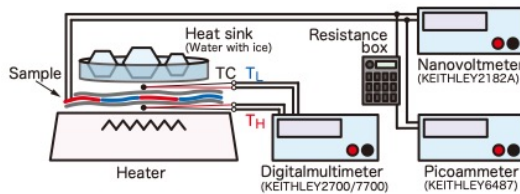


図5：出力電力測定装置と温度差  $\Delta T = 3 \sim 5$  K における出力電力特性

内部抵抗に関するデータを得るために、接触抵抗測定装置を自作して、炭素布/銀布 (CAF/AGF) とニッケル銅布/銀布 (NCF/AGF) について接触抵抗を測定したところ、布材料自体が持つ抵抗値と同レベルであった (図6)。綿糸で縫うだけでは界面の接触が悪いため、異種布間の接合に導電性両面テープを用いた。その結果、界面接触抵抗が抑制され、デバイスの内部抵抗を減らすことができた。しかし期待される特性には及ばなかったため、さらなる界面抵抗の低減が必要である。

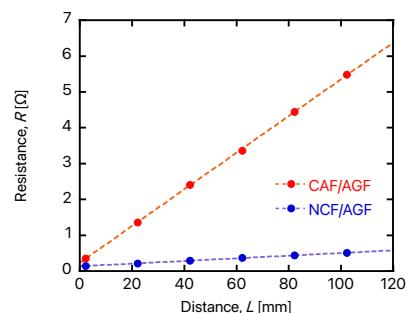
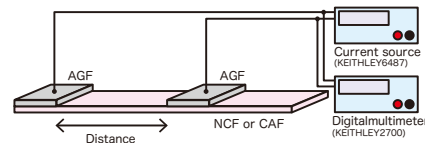


図6：接触抵抗測定装置と炭素布/銀布およびニッケル銅布/銀布の測定結果

(3) p 型半導体と n 型半導体の対で構成される熱電発電デバイスにおけるセンサ機能および信号増幅機能を確認するために、アルメル・クロメル熱電対と回路素子 (コンデンサ) を用いて模擬実験を行なった。図7のように、5 対の  $\Pi$  型構造を5つのアルメル・クロメル熱電対で模し、ヒト

の皮膚をコンデンサで置き換えた．熱電対に温度差を与えつつ周期的信号を印加したところ，コンデンサを通して周期的な波形が熱電対端子に観測された（図7）．得られた信号振幅は，直列につないだ熱電対の数に比例はしないものの増加しており，熱電発電デバイスによる信号増幅機能の可能性が示された．

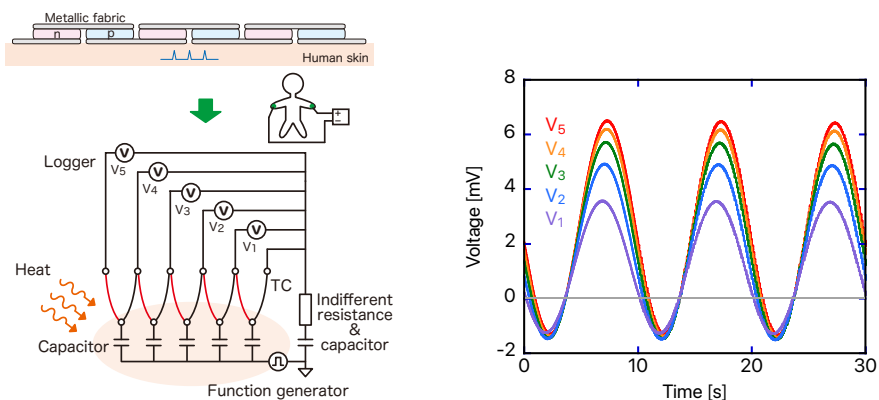


図7：熱電対と回路素子による熱電発電デバイス模擬回路と出力応答結果

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計2件（うち査読付論文 2件/うち国際共著 2件/うちオープンアクセス 0件）

1. 著者名 A.P. Kristy, N. Kawase, M. Navaneethan, K.D. Nisha, T. Yamakawa, K. Ikeda, M. Shimomura, Y. Hayakawa, H. Ikeda	4. 巻 -
2. 論文標題 Effect of capping agent for synthesis of ZnO nanostructures on carbon fabrics for thermopower production	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 Journal of Materials Science: Materials in Electronics	6. 最初と最後の頁 -
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1007/s10854-021-07295-2	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 該当する

1. 著者名 D. Kansaku, N. Kawase, N. Fujiwara, F. Khan, A.P. Kristy, K.D. Nisha, T. Yamakawa, K. Ikeda, Y. Hayakawa, K. Murakami, M. Shimomura, H. Ikeda	4. 巻 -
2. 論文標題 Output Power Characterization of Flexible Thermoelectric Power Generators	5. 発行年 2022年
3. 雑誌名 IEICE Transactions on Electronics	6. 最初と最後の頁 -
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1587/transele.2021FUS0003	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 該当する

〔学会発表〕 計7件（うち招待講演 0件/うち国際学会 5件）

1. 発表者名 神作大輝, 川瀬暢大, カーン ファイザン, アロクヤサミ ベリヤナヤガクリスティ, 山川俊貴, 池田和司, 早川泰弘, 村上健司, 下村勝, 池田浩也
2. 発表標題 フレキシブル熱電発電デバイスの発電特性評価
3. 学会等名 電子情報通信学会ED研・CPM研・SDM研合同5月研究会
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 D. Kansaku, N. Kawase, F. Khan, P.A. Kristy, T. Yamakawa, K. Ikeda, Y. Hayakawa, K. Murakami, M. Shimomura, H. Ikeda
2. 発表標題 Output power characterization of flexible thermoelectric power generators
3. 学会等名 Virtual Conference on Thermoelectrics (国際学会)
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 D. Kansaku, N. Kawase, N. Fujiwara, F. Khan, P.A. Kristy, K.D. Nisha, T. Yamakawa, K. Ikeda, Y. Hayakawa, K. Murakami, M. Shimomura, H. Ikeda
2. 発表標題 Output power characteristics of flexible thermoelectric power generators
3. 学会等名 2021 Asia-Pacific Workshop on Fundamentals and Applications of Advanced Semiconductor Devices (AWAD2021) (国際学会)
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 H. Ikeda, D. Kansaku, T. Yamakawa, K. Ikeda
2. 発表標題 Output power characterization of flexible thermoelectric power generator for self-powered physiological sensors
3. 学会等名 International Symposium on Biomedical Engineering 2021 (国際学会)
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 池田浩也, 神作大輝, 早川泰弘, 村上健司, 下村勝, 山川俊貴, 池田和司
2. 発表標題 導電性布材料を用いたフレキシブル熱電発電デバイスの出力電力特性
3. 学会等名 第69回応用物理学会春季学術講演会
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 N. Kawase, A.P. Kristy, M. Navaneethan, K.D. Nisha, T. Yamakawa, K. Ikeda, Y. Hayakawa, H. Ikeda
2. 発表標題 Formation of ZnO nanorods on a NiCu fabric for flexible thermoelectric power generator
3. 学会等名 ISPlasma2021/IC-PLANTS2021 (国際学会)
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 A.P. Kristy, N. Kawase, M. Navaneethan, K.D. Nisha, T. Yamakawa, K. Ikeda, Y. Hayakawa, H. Ikeda
2. 発表標題 Effect of capping agent on synthesis of ZnO nanostructures on Ag mesh for thermopower production
3. 学会等名 ISPlasma2021/IC-PLANTS2021 (国際学会)
4. 発表年 2021年

〔図書〕 計0件

〔産業財産権〕

〔その他〕

<p>静岡大学電子工学研究所 池田研究室ホームページ  <a href="https://wpp.shizuoka.ac.jp/ikedalab/">https://wpp.shizuoka.ac.jp/ikedalab/</a></p>
---

6. 研究組織

	氏名 (ローマ字氏名) (研究者番号)	所属研究機関・部局・職 (機関番号)	備考
研究協力者	池田 和司  (Ikeda Kazushi)		
研究協力者	山川 俊貴  (Yamakawa Toshitaka)		

7. 科研費を使用して開催した国際研究集会

〔国際研究集会〕 計0件

8 . 本研究に関連して実施した国際共同研究の実施状況

共同研究相手国	相手方研究機関		
インド	SRM科学技術大学	インド技術研究所	