

機関番号：12601

研究種目：若手研究(B)

研究期間：2009～2010

課題番号：21760250

研究課題名(和文) 小型・軽量・柔軟な超音波診断デバイスの開発

研究課題名(英文) Small, light and soft piezoelectric transducer

研究代表者

森田 剛 (MORITA TAKESHI)

東京大学・大学院新領域創成科学研究科・准教授

研究者番号：60344735

研究成果の概要(和文)：

柔軟な圧電性フィルムは医療用超音波振動子、エネルギー発電デバイス等に有効であるが、従来はそのようなフレキシブルな圧電材料を製作するのは困難であった。本研究では、チタン薄膜をプラスチック基板(PEEK)上に電子ビームで蒸着し、ジルコン酸チタン酸鉛(PZT)の圧電薄膜を、超音波アシスト水熱法により成膜した。この手法を開発することにより、柔軟・軽量の圧電トランスデューサを実現できることを示した。

研究成果の概要(英文)：

It had been difficult to produce a flexible piezoelectric material which is useful for the medical ultrasound transducer and the energy harvesting device, etc. In the present study, the titanium thin film was deposited on the plastic substrate (PEEK) with the electron beam deposition method, and the piezoelectric thin film of lead zirconate titanate (PZT) was obtained with the ultrasonic assisted hydrothermal method. It was verified to be able to achieve a flexible, light piezoelectric transducer by developing this technique.

交付決定額

(金額単位：円)

	直接経費	間接経費	合計
2009年度	1,600,000	480,000	2,080,000
2010年度	1,700,000	510,000	2,210,000
年度			
年度			
年度			
総計	3,300,000	990,000	4,290,000

研究分野：工学

科研費の分科・細目：電気電子工学 電子デバイス・電子機器

キーワード：波動利用工学、超音波、圧電薄膜

1. 研究開始当初の背景

チタン酸ジルコン酸鉛(PZT)は優れた圧電性、焦電性や高い抗電界を有し、これを利用したデバイスの開発が行われている。同時に、小型軽量化や高集積化を目的とした薄膜生

成プロセスの研究も盛んに行われている。数ある成膜法の中でも、水熱合成法は、高温高圧下の水溶液中での反応を利用するため、不純物の混入が少なく高品質な材料を得ることができ、アニーリングや分極処理が不要、3次元構造物への成膜可能など有利な点を多

く持つ。また、水熱合成法によって合成した PZT 多結晶は音響インピーダンスが小さく、生体組織や水と近いため、医療用超音波デバイスへの応用に適すると考えられる。

一方、従来のスパッタリングや、ゾルゲル用、CVD 法などでは、600℃程度の結晶化プロセスが不可欠であったために、このような柔軟基板上に圧電薄膜を成膜するのはできなかった。

2. 研究の目的

今まで研究を行ってきた水熱合成法では、チタン基板上に PZT の成膜を行っていたが、基板を柔らかいプラスチックのようなものにする事で、前述した低音響インピーダンスという特性をより効果的に応用することができる。

本研究では、水熱合成法の反応速度向上を目的として開発した超音波アシスト水熱合成法を用いて、柔軟な基板であるエンジニアリングプラスチック(ポリエーテルエーテルケトン: PEEK)基板上への PZT 薄膜を試みた。

3. 研究の方法

水熱合成法は反応速度が遅く、成膜プロセスに多くの時間がかかるという問題点があった。本研究ではこの問題を解決するため、反応溶液中へ超音波照射(超音波アシスト)を行い、超音波キャビテーションや音響流を発生させ、その効果により反応速度を向上させるという試みを行った。水熱合成反応中の溶液内への、強力超音波の照射を可能とする装置として、Fig. 1 のような振動子と反応容器を製作した。この振動子は、反応容器の蓋部分との接合部を共振のノード点となるように設計されており、圧電駆動部を容器の外側に配置しながら、反応容器内部へ強力超音波の照射が可能となるような工夫をしている。

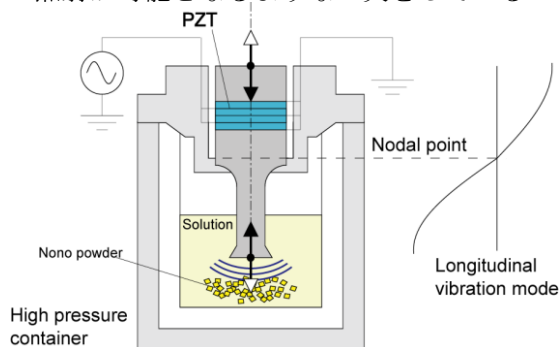


Fig. 1. The ultrasonic transducer and the reaction vessel.

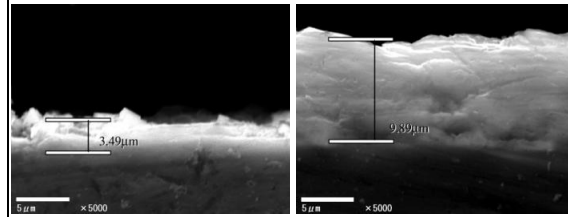


Fig. 2. The cross sectional SEM images. The left one is not ultrasonically assisted. The right is ultrasonically assisted

本研究で用いた水熱合成条件を Table I に示す。チタン基板上に PZT を成膜した場合の薄膜断面図を Fig. 2 に示す。この結果から、超音波アシストを行うことで、3 倍以上の膜厚が実現でき、一回の成膜で約 10μm もの厚い薄膜が得られることが明らかとなった。

水熱合成反応中の反応溶液内に、直接強力な超音波を照射するための振動子と反応容器を製作し、それらを用いて、超音波アシストが水熱合成反応の促進に効果的であることを実験的に示した。

Table. I. The condition of the hydrothermal method

Hydrothermal Method		
Pb(NO ₃) ₂		2.898 g
ZrCl ₂ O·H ₂ O		0.846 g
TiO ₂		0.140 g
KOH	8N	17.5 ml
H ₂ O		52.5 ml
Solution Volume		70 ml
Temperature		140 °C
Reaction Time		12 hour

水熱合成反応による PZT 薄膜の合成では、基板材料としてチタンを用いる必要がある。本研究では、柔軟基板上に成膜する手法を提案し、薄膜の合成実験を行うこととした。ただし、水熱合成法による PZT の合成では、反応溶液が強アルカリであるため、一般的なプラスチックでは反応中に溶解してしまう。試行錯誤の結果、耐アルカリ性の高い PEEK を基板として使用することとした。この PEEK 基板上に電子線真空蒸着法を用いてチタニウム層を蒸着し、さらにその上に水熱合成法で PZT を合成する。超音波アシストの有無による成膜の状態の違いも確認した。

PEEK 基板と電子線蒸着するチタン薄膜の結合力を強くするために、PEEK 基板の表面に凹凸を形成させ、この後、電子ビーム蒸着

により数 μm 厚のチタニウムを PEEK 基板に蒸着した。この際のチタニウムの厚みは非常に薄いため、前述したプラスチックの基板を使用するメリットを損なわない。しかし、一方で約 $2\mu\text{m}$ 以上のチタン厚がないと、水熱合成反応中にチタンが完全に溶解してしまうことが明らかとなった。このようにして製作した基板の上に、超音波アシスト水熱合成法を用いて PZT 薄膜の合成を行った。

4. 研究成果

上記のように、柔軟基板である PEEK 材料にチタン薄膜を電子線蒸着し、その上に超音波アシスト水熱合成法によって成膜した PZT 薄膜を、走査型電子顕微鏡(SEM)と X 線回折分析により評価した。Fig.3 は PZT 薄膜表面の SEM 画像である。薄膜表面に、粒径 $1\sim 3\mu\text{m}$ 程度の PZT 結晶が隙間なく生成されていることが観察できる。同条件(140 度, 12 時間)で、超音波照射を行わなかった場合の薄膜表面には空孔が散見され、超音波照射を行うことにより、緻密な薄膜構造となることが再確認できた。また X 線回折分析結果により、不純物を全く含まない PZT 薄膜が得られていることが示された。さらに、Fig.4 に示すように、この圧電薄膜はフレキシブル基板上に成膜されているために、容易に変形させるが可能であり、今までにない特徴を持っていることが実証された。

以上のように、本研究では、水熱合成法によって PZT 薄膜の合成を行う際に使用する基板を、金属であるチタンから柔軟材料であるプラスチック(PEEK 材)へ置き換えるための手法を提案し、超音波アシスト水熱合成法を用いて実際に合成実験を行った。その結果、柔軟な構造を有する圧電フィルムを合成することができた。走査電子顕微鏡と X 線回折を用いて薄膜の評価を行い、PZT 多結晶が基板上に形成されたことを確認できた。

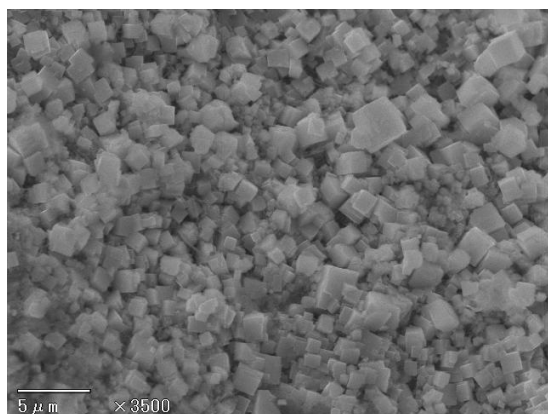


Fig.3. The SEM image of the surface of the PZT

thin film on PEEK.

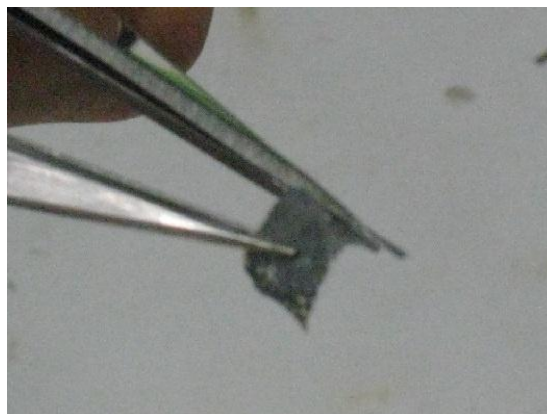


Fig.4. Flexibility of the PZT films on PEEK substrate.

5. 主な発表論文等

[雑誌論文] (計 2 件)

- ① Ryo AGEBA, Yoichi KADOTA, Takafumi MAEDA, Norihito TAKIGUCHI, Takeshi MORITA, Mutsuso ISHIKAWA, Peter BORNMANN and Tobias HEMSEL, "Ultrasonically assisted hydrothermal method for ferroelectric material synthesis", *J. Korean Phys. Soc.*, vol. 57, No. 4, pp. 918-923, 2010 (査読有)
- ② Takeshi MORITA, "Piezoelectric materials synthesized by the hydrothermal method and their applications", *Materials*, vol. 3, pp. 5236-5245, 2010 (査読有)

[学会発表] (計 5 件)

- ① 揚場 遼, 五十部 学, ジョン デヨン, ヘムゼル トビアス, 森田 剛, "超音波アシスト水熱合成法による圧電材料の合成とその評価", 第 31 回超音波エレクトロニクスの基礎と応用に関するシンポジウム講演論文集, pp.9-10 (2010.12.6-8) 明治大学
- ② 揚場 遼, ジョン デヨン, 森田 剛, "超音波アシスト水熱合成法を用いたフレキシブル圧電薄膜の合成", 2010 年度精密工学会秋季学術講演会講演論文集, pp.855-856 (2010.9.27-29) 名古屋大学
- ③ Ryo AGEBA, Yoichi KADOTA, Takafumi MAEDA, Norihito TAKIGUCHI, Mutsuso ISHIKAWA, Peter BORNMANN, Tobias HEMSEL and Takeshi MORITA, "Synthesis of the piezoelectric materials by Ultrasonic Assisted Hydrothermal Method",

International Workshop on Piezoelectric Materials and Applications in Actuators & International Symposium on Electroceramics 2009, pp.78-79, Jeju, Korea (2009. 11.9-11)

- ④ 揚場 遼, 門田洋一, 前田孝文, 滝口哲史, 石河睦生, Peter Bornmann, Tobias Hemsel, 森田 剛, "水熱合成法における強力超音波照射の効果", 日本セラミックス協会 第 22 回秋季シンポジウム, p.16(2A22), (2009.9.16-18) 愛媛大学
- ⑤ 揚場遼, 門田洋一, 前田孝文, 滝口哲史, 石河睦生, ペーターボルンマン, トビアスヘムゼル, 森田 剛 "超音波アシスト水熱合成法による圧電材料の合成", 電子情報通信学会技術報告会(超音波), pp. 7-12, (2009.5.29) 機械振興会館・東京

[その他]

ホームページ等

<http://www.ems.k.u-tokyo.ac.jp/morita>

6. 研究組織

(1) 研究代表者

森田 剛 (MORITA TAKESHI)

東京大学・大学院新領域創成科学研究科・
准教授

研究者番号 : 60344735