

「セラミックスインテグレーション技術による新機能材料創製に関する研究」

(H12年～H14年：第1期)

研究代表者：羽田 肇（独立行政法人 物質・材料研究機構）他8機関

研究の概要・目標

1. 何を目指しているのか

セラミックス分野で用いられる材質、あるいはそれらに備わっている機能の統合化を図る。

3年後の目標：

セラミックスインテグレーション要素技術の開発、バッファー層科学の構築

5年後の目標

セラミックスインテグレーション技術を用いた新規デバイスの開発

2. 何を研究しているのか

「フロンティアセラミックスプロジェクト」ではセラミックスのモデル界面研究を行ってきたが、これらによって得られた知見をベースに、多機能、多材質をインテグレーション化する研究を行い、さらにバッファー層の科学を構築する。

3. 何が新しいのか

機能やプロセスのインテグレーションも新しい考え方であるが、この際必要なバッファー層の考え方は、二次元的な広がり持った界面の科学と連続体としての結晶（バルク）の科学の中間的なものと位置づけられ、ある場合には空間的に制限された三次元体、ある場合には境界が曖昧な二次元と三次元の中間的なものも考えられ、セラミックスの持つ複雑性と似た性格を持つ領域の全く新しい科学の対象分野となりうる。

諸外国等の現状

1. 現状

機能性セラミックス素子は益々小型化が進んでいるが、実装等の問題点が解決できないためこの分野でのブレークスルーが求められている。さらに、セラミックス分野では材料の複合化が進んできており、単機能に関してはこの威力が十分發揮しうる材料が開発されている反面、多機能性に関しては未開発の分野である。

また、半導体産業分野では日常的な技術としてインテグレーション技術が使用されているが、多材質を一つの材料中に組み込んだ様な種類のインテグレーション化は未解決な領域として残されている。またインテグレーションに不可欠なバッファー層の考え方方が未成熟である。

2. 我が国の水準

従来型のセラミックス技術はファインセラミックス分野で典型的に現れているように世界をリードしたものとなっている。しかしながら、近年生産拠点としては発展途上国に移された結果、技術移転が進展している。セラミックス技術分野で21世紀においても世界をリードしていくに当たっては、新規な科学技術を根本的に構築する必要性がある。

本提案ではこの一つとしてセラミックス材料のインテグレーション化を目指しているが、この基礎となる界面技術や薄膜などのような次世代技術については十分であるものの、これらの技術を複合化したものについては、基礎的な理解が十分になされているとは言えない。さらに複合的な機能を一つの材料に取り組むためには、これまで以上の複合化技術を必要としている。

研究進展・成果がもたらす利点

1. 世界との水準の関係

セラミックス材料分野ではこれまで我が国は世界をリードする立場にあったが、発展途上国におけるキャッチアップの進展に伴い従来法のセラミックス材料だけでは現在の地位を保っていくのは難しい。

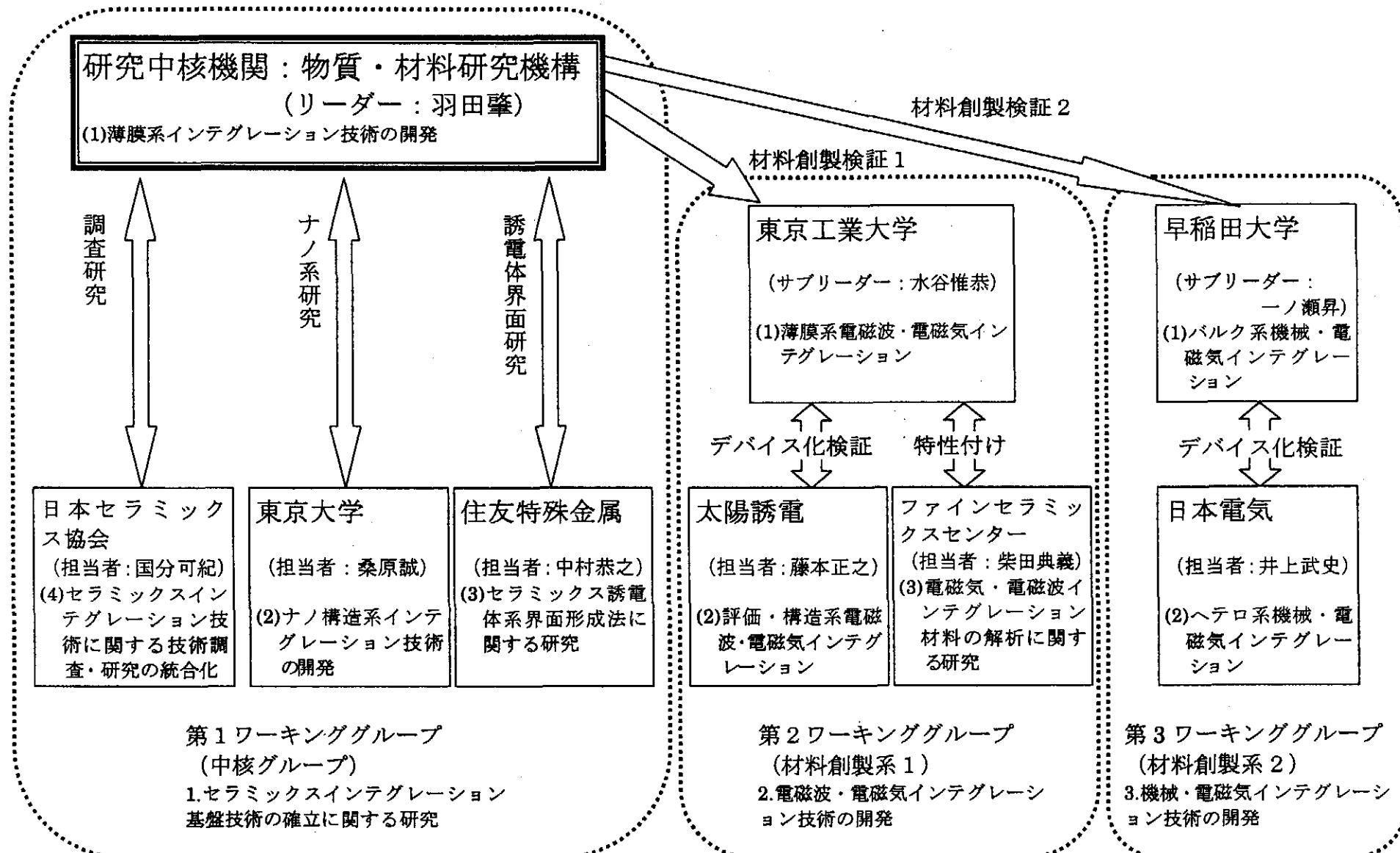
一方、欧米では次世代セラミックス分野での主導権を握るべく活発に研究が進められているが、環境面あるいは情報社会の進展に伴って材料の複合化、ナノストラクチャー化が一段と進展している。また、インテリジェント材料と類似の考え方から進歩してきたスマートストラクチャーの考え方が普及しており、次の方向としての材料のインテリジェント化を目指すこととなるが、この際重要な点が材料の複合化である。すなわち、現段階でこの方面的な基盤的な研究を早急に着手しないと、情報あるいはバイオエンジニアリングと同様の結果となる可能性がある。

全く新しいバッファー領域の科学を提案することで複雑性に起因した材料特性の解明を世界に先駆けて提案できる。

2. 波及効果

情報産業の進展に伴った素子の小型化に呼応した研究であり、この方面での発展が革命的小型化につながる可能性がある。また、原材料の省資源につながるため環境負荷を最低限に押さえることが可能である。セラミックのアクチュエーターとしての優れた性能を利用することでマイクロマシンの高機能化が計られ、生体等のこれらの使用が予測される分野でのエンジニアリングの飛躍的な発展が期待される。

「セラミックスインテグレーション技術による新機能材料創製に関する研究」研究体制



科学技術振興調整費「セラミックスインテグレーション技術による新機能材料創製に関する研究」所要経費一覧

研究項目	研究担当機関	研究担当者	平成12年度 (千円)	平成13年度 (千円)	平成14年度 (千円)	第1期所要経費 (千円)
セラミックスインテグレーション技術による新機能材料創製に関する研究						
1. セラミックスインテグレーション基盤技術の確立に関する研究						
(1) 薄膜系インテグレーション技術の開発	(独) 物質・材料研究機構	羽田 鞍	36,682	53,802	45,901	136,385
(2) ナノ構造系インテグレーション技術の開発	東京大学大学院 工学研究科	桑原 誠	13,987	18,129	14,249	46,365
(3) マクロ構造系インテグレーション技術の開発	(株) 住友特殊金属	中村 恒之	17,489	17,527	12,917	47,933
(4) セラミックスインテグレーション技術に関する新規技術調査研究	(社) 日本セラミックス協会	国分 可紀	8,987	10,234	10,195	29,416
2. 電磁波・電磁気インテグレーション技術の開発						
(1) 薄膜系電磁波・電磁気インテグレーション	東京工業大学大学院 理工学研究科	水谷 惟恭	17,963	19,640	15,383	52,986
(2) 評価・構造系電磁波・電磁気インテグレーション	太陽誘電(株)	藤本 正之	25,468	26,217	19,801	71,486
(3) 電磁気・電磁波インテグレーション材料の解析に関する研究	(財) ファインセラミックスセンター	柴田 典義	19,623	20,362	15,928	55,913
3. 機械・電磁気インテグレーション技術の開発						
(1) パルク系機械・電磁気インテグレーション	早稲田大学 理工学部	一ノ瀬 昇	18,818	20,372	15,307	54,497
(2) ヘテロ系機械・電磁気インテグレーション	日本電気(株)	井上 武史	23,671	24,410	19,886	67,967
4. 研究推進	文部科学省 研究振興局		546	364	364	1,274
合計			183,234	211,057	169,931	564,222

研究成果の概要

課題名（研究代表者）：

「セラミックスインテグレーション技術による新機能材料創製に関する研究」
(物質・材料研究機構/物質研究所 電子セラミックスグループ 羽田 肇)

【研究目標の概要】

本課題の最終的な目標はセラミックスインテグレーションを科学することで、電磁波・電気・機械の三つを性質をうまくコントロールした材料を提案し、その有用性を示すことにある。そこで、本課題ではこれら三つをキーワードとした「電磁波・電磁気インテグレーション技術の開発」と「機械・電磁気インテグレーション技術の開発」という三つのサブテーマを設定し、機能のインテグレーション化を目指した。さらに最終的にはこれらの統合化をも視野に入れているが、この目的に添った基盤的な材料設計技術、プロセス開発も目標の一つとして掲げた。

第I期においては、以下に具体的に述べる「(1) セラミックスインテグレーション基盤技術の確立に関する研究」、「(2) 電磁波・電磁気インテグレーション技術の開発」、「(3) 機械・電磁気インテグレーション技術の開発」の三つのテーマに従って基本となるBLの科学の解明を図り、続く第II期においてはセラミックスインテグレーションの考え方やBLの科学の有効性を示すことを目的として、第I期で培われた基盤的技術を利用し、具体的な材料開発やデバイスを提案する。なお、第II期移行に当たっては効率的な開発を目指すため、第I期の進捗状況を鑑み組織の見直しを行っていく。

(1) セラミックスインテグレーション基盤技術の確立に関する研究のサブテーマでは、「(2) 電磁波・電磁気インテグレーション技術の開発」と「(3) 機械・電磁気インテグレーション技術の開発」の材料機能に着目した材料創成グループに共通な単位プロセス、解析技術を開発することを目的とした。本課題の第I期の目的であるBL科学・技術を統合化し、“拡大バッファーレイヤーの科学”を構築することを使命としている。本目標達成に向けて、本サブテーマは、以下に説明する「① 薄膜系インテグレーション技術の開発」、「② ナノ構造系インテグレーション技術の開発」、「③ マクロ構造系インテグレーション技術の開発」、「④ セラミックスインテグレーションに関わる新規技術調査研究」の四つの研究項目をそれぞれ物質・材料研究機構（以下、NIMS）、東京大学（以下、東大）、住友特殊金属（以下、住特金）、日本セラミックス協会が担当し、研究を遂行した。

(2) 電磁波・電磁気インテグレーション技術の開発のサブテーマでは、Siを中心とした単結晶基板上に、多様な結晶構造、異なる結合様式、多元素種をもつ酸化物、窒化物、炭化物等の薄膜をエピタキシャル成長させるための科学と技術の構築を目指した。これらの多種多様なエピタキシャル薄膜を実現するために、ヘテロ界面の接合技術とBL制御技術をインテグレーションした“拡大化したBuffer Layer (BL) の科学”という新しい概念の学問分野の構築を目指すとともに、BLの制御により薄膜系全体の特性を変化させ、バルクでは得られない特性や新規な機能を持つ積層薄膜デバイスを実現することを目的とした。さらに本目標達成に向けて、「① 薄膜系電磁波・電磁気インテグレーション」、「② 評価・構造系電磁波・電磁気インテグレーション」、「③ 電磁気・電磁波インテグレーション材料の解析に関する研究」の三つの研究項目を、それぞれ東京工業大学（以下、東工大）、太陽誘電、ファインセラミックスセンター（以下、JFCC）が担当し、研究を遂行した。

(3) 機械・電磁気インテグレーション技術の開発のサブテーマでは、マクロなサイズのセラミックスを対象とし、微構造を有するセラミックスを連続体として扱う物性を対象とした。それゆえ、扱うBLも、 μ からcmのオーダーに及ぶ領域として捉える。具体的には、典型的な物性として音波の伝搬に関わる材料、すなわち圧電材料を研究対象として選択し、この材料における音波の伝搬とBLとの関係を明確にすると共に、この関係を有効に活かしたデバイスの提案を目標とした。本目標達成に向けて、「①バルク系機械・電磁気インテグレーション」、「② ヘテロ系機械・電磁気インテグレーション」の二つの研究項目を、それぞれ早稲田大学（以下、早大）、NECが担当し、研究を遂行した。

【研究成果の概要】

セラミックスインテグレーション技術においては、基本的には異種材料（異結晶構造、異電子構造、異組成etc）を接合することによって初めて現実のものとなる。これを可能とするには異種材料間のインターフェースが最も重要な位置付けとなる。本課題では、上記したようにこの部分に関して「バッファレイヤー（BL）」と呼称しているが、従来、一般的に半導体分野で使われるBLという概念を拡張したもの対象とした。ここでのBLは、シリコンをプラットフォームとするインテグレーションで精緻なまでに製法・考え方が築き上げられているBLの考え方を基礎とした。しかし、この概念だけではセラミックスインテグレーション技術は十分で無い事は明白である。その主な違いは、ア. 対象とするサイズが原子オーダーからcmあるいはそれ以上に及ぶこと、イ. 単に材料と材料を結びつける緩衝帯としての役割でなく、情報、物質の伝達、遮断の役割等の積極的な機能を有していること、ウ. 様々な材料が関与することにある。実際には材料は物質自身は全く機能する材料と同一であってもイのような役割を担っている部分が多く、従来のBLの考え方を拡張して材料を再構築することも可能である事を示した。

以上の考えに立脚しBLの科学を究明するとともに、それにより誘導されるシーズとしてのデバイスの基礎を確立した。第Ⅱ期では、本デバイスを実現する事で、セラミックスインテグレーション技術の有効性を実証する予定となっている。

（1）セラミックスインテグレーション基盤技術の確立に関する研究

本サブテーマの使命は、セラミックスインテグレーションに関わる単位プロセスを確立・統合することであった。このことを実現するにあたって、従来のBLとは異なった「陰空間を積極的に評価」するという視点を設けた。陰空間とは、原子オーダーでは格子欠陥、転位、粒界、異相であり、ナノ、マクロなサイズではボイドを含んだ気孔、異相結晶に相当し、これまで負の印象しかもたれないものであった。一方、本課題では陰空間の一種である非平衡な空孔の持つ物質移動・反応促進性を利用する事で、比較的低温でBLを最適化させることに成功した。メソスコピックな孔構造を有することで柔構造性を備えたBLを導入することで、チューナブルなフォトニック結晶の考え方を可能とした。さらに、気孔の持つ音波吸収性を利用する事で音波伝搬制御の可能性も示した。以上のように陰空間を積極的に活用する事で新たな機能や反応性を獲得したBLを形成することが、可能であることを示した。

以上の新しい考え方に基づくプロセスは、創製系の二つのサブテーマ適用することで、新たなデバイスの萌芽となる材料の導出につながり、デバイスによりセラミックスインテグレーション技術の有効性を示す第Ⅱ期において、威力を発揮するものと期待される。

（2）電磁波・電磁気インテグレーション技術の開発

本サブテーマでは、BLの科学の主要な成果として以下ものが得られた。①様々なエピタキシャル薄膜の成膜に成功した。また、② BL構造を変調することで薄膜特性の制御に成功した。さらに、③ BLの役

割を科学的に解明するために、透過電子顕微鏡を中心とした評価・観察技術を開発し、電子線フォログラフィ法によって磁界を定量解析することに成功した。④第1サブテーマと連携し、薄膜の結晶化温度を低減化することが可能であることを見いだした。

以上のBLの科学的成果を受けて、デバイスの基礎として次のような研究成果が得られた。①周期的な欠陥をBLに3次元的に導入することで、耐リーク性が良く、従来に比べてチューナビリティの高い電圧-静電容量特性(C-V特性)を有する薄膜キャパシタを得た。また、②任意の方向から来る電波に対し自動的に指向するフェーズドロックアンテナ・デバイスの基礎となるチューナビリティが向上したキャパシタが得られた。さらに、③メモリー面積を変えずに不揮発性の多値記憶を実現する強磁性-強誘電性積層薄膜メモリ(F-Mメモリ)の薄膜部分の基本薄膜構造をSi基板上に形成することに成功した。④テスト用のFETのゲート上にF-Mメモリの基本となる磁性体薄膜を形成し、F-Mメモリの動作原理の確認に成功した。さらに、⑤光デバイスとしての可能性が期待されるヘテロウルツァイト構造を有する薄膜を、第1サブテーマと連携することにより得られた。

(3) 機械・電磁気インテグレーション技術の開発

本サブテーマでは、①優れた圧電係数を持つ新たな圧電単結晶の育成に成功し、高性能アクチュエーターの可能性を示した。この種のデバイス形成に不可欠な②圧電単結晶の加工法を新たに開発し、圧電単結晶デバイスへの道を拓いた。第1サブテーマと連携し、③圧電セラミックスに傾斜機能を導入することで、優れたパルス性を有する材料を開発した。さらに、④電極-圧電体界面のBLを制御し、圧電トランステューサーの入力-出力界面に電子の移動を妨げる優れた絶縁性を有するBLを導入することで、出力30W以上(温度上昇22°C以下、従来十数W)、変換効率96% (従来は90%程度)以上の性能を持つ圧電トランステューサーの開発に成功した。また、⑤本プロジェクトでは圧電性を利用し、地球の自転程度の検出感度を備えたジャイロの開発を目指した研究も行ってきたが、第I期では、圧電単結晶を用いて胴部をバッファー領域とする六脚型圧電振動ジャイロスコープを提案し、圧電ジャイロ特性シミュレータを用いた振動モードを計算し、面内振動(駆動)及び面垂直振動(検出)が縮退する寸法条件を求めた。この知見に基づき六脚素子を作製した結果、0.1deg/sec (最終目標の1/20)の角速度検出感度有する試作品を作成することができた。

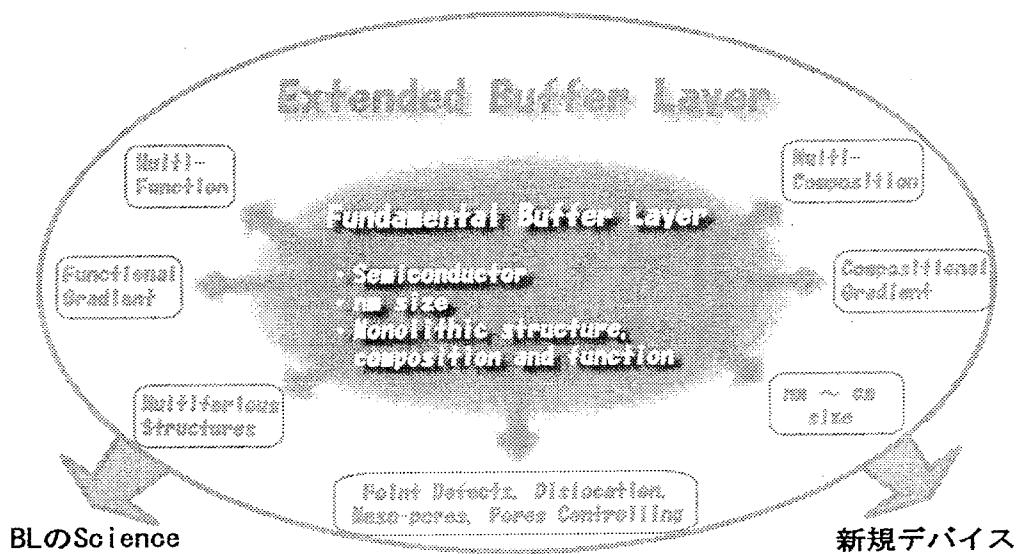
以上のように第I期では、目標としたBL科学の構築においては、陰空間の利用を中心とした新しい構造や反応性・機能性を持つBLの有用性を示すことができ、この知見を基に25%程度の大きなミスフィット下においてもエピタキシャル成長させることに成功する等、多くの成果を得た。またこれを基礎として、第II期のデバイスプロトタイプの作製・評価によるセラミックスインテグレーション技術の有用性の実証に連なる、F-Mメモリや光デバイスチ、チューナブルキャパシタ、圧電トランステューサー、圧電ジャイロ等、数々のデバイスの可能性が示された。これらの結果は、初期の具体的な第I期目標を概ね満たしたこと意味し、第II期での研究遂行のためには、十分な成果であったと判断される。

課題名：セラミックスインテグレーション技術による新機能材料創製に関する研究
研究代表者名：羽田 肇 (NIMS)
参画機関：NIMS, 東大, 住特金, セラ協, 東工大, 太陽誘電, JFCC, 早大, NEC

概要：本研究課題では、バッファーレイヤー (BL) の科学を明確化することで多様なセラミックス材料・機能の複合化を可能とし、新たな機能を備えた材料の開発を目指す。第I期においては、「(1) セラミックスインテグレーション基盤技術の確立に関する研究」、「(2) 電磁波・電磁気インテグレーション技術の開発」、「(3) 機械・電磁気インテグレーション技術の開発」の三つのテーマに従って基本となるBLの科学の明確化に貢献する。

「BL科学の明確化」と「デバイスシーズの探索」の二つの目標を設定し基盤系サブテーマ(第1ST)と創製系サブテーマ(第2, 3ST)で推進した

本課題におけるBuffer Layerの考え方



BL科学の明確化

- ・結晶格子が大きなミスマッチを持つ材料の接合
- ・結晶核としてのBL制御
- ・欠陥、格子歪を起因とした応力利用
- ・新規メモリ
- ・傾斜組成BL
- ・柔構造BL
- ・BLの組成、結晶構造、電子構造、磁気構造の評価法の確立

第II期につながるデバイスシーズの探索

- ・超音波デバイス
- ・新規光機能デバイス
- ・マイクロ・ミリ波デバイス
- ・新規メモリ

成果の発信

- 論文: 210報
口頭: 342件
特許: 12件
受賞: 22件

BLの科学への貢献：BLの基盤的な科学の明確化に努め、新しいデバイスのシーズ開発の基礎とした。

研究成果公表等の状況

課題名（研究代表者）：

「セラミックスインテグレーション技術による新機能材料創製に関する研究」

（物質・材料研究機構/物質研究所 電子セラミックスグループ 羽田 肇）

【研究成果発表等】

	原著論文による発表	左記以外の誌上発表	口頭発表	合計
国内	6件	24件	267件	297件
国外	166(13)件	1件	75件	242(13)件
合計	172(13)件	25件	342件	539(13)件

(注：既発表論文について記載し、投稿中の論文については括弧書きで記載のこと) (注)

【特許出願等】 12件 (国内12件、国外 0件)

【受賞等】 22件 (国内19件、国外 3件)

1. 日本セラミックス協会学術賞、篠崎和夫、2000年5月19日
2. 日本セラミックス協会進歩賞、脇谷尚樹、2000年5月19日
3. 日本セラミックス協会学術論文誌優秀論文賞、水谷惟恭、2000年5月19日
4. 日本セラミックス協会関東支部研究発表会優秀賞、山田智明、2000年7月26日
5. 日本セラミックス協会電子材料研究奨励賞、陳 章華、2000年10月27日
6. 日本セラミックス協会関東支部研究発表会優秀賞、水上 智、2001年7月
7. 日本セラミックス協会日豪合同セラミックス賞、脇谷尚樹、2001年5月18日
8. 日本セラミックス協会電子材料研究奨励賞、脇谷尚樹、2001年10月26日
9. 東京工業大学無機材料工学科・窯業同窓会優秀学士論文賞、田澤祥吾、2002年6月21日
10. 日本セラミックス協会21世紀記念国際交流 倉田元治賞、木口賢紀、2002年5月17日
11. 日本セラミックス協会関東支部研究発表会優秀賞、横井博和、2002年7月25日
12. 日本セラミックス協会第2回アジアエレクトロセラミックス会議研究奨励賞 齋藤 紀子、羽田 肇、河本 邦仁、2001年10月26日、
13. 文部科学大臣賞 一ノ瀬 昇 2001年4月18日
14. スガウェザリング技術振興財団 技術功労賞 一ノ瀬 昇 2002年4月24日
15. 日本ファインセラミックス協会 国際賞 一ノ瀬 昇 2002年5月21日
16. 日本セラミックス協会平成14年度学術賞、羽田 肇、2002年5月17日
17. 韓国結晶成長学会感謝碑、羽田 肇、2002年5月24日
18. ファインセラミックス協会平成13年度技術振興賞、越智 篤、内海和明、高橋貞行 (平成14年5月21日受賞)
19. 日本粉末冶金協会技術功績賞、藤本正之、2001年5月22日
20. 日本セラミックス協会技術賞、藤本正之、2001年5月18日
21. 日本セラミックス協会学術写真賞優秀賞、鈴木利昌、西湯二、藤本正之 2001年
22. 日本セラミックス協会学術写真賞優秀賞、池田賢司、鈴木利昌、小林和義、藤本正之 2002年

【主要雑誌への研究成果発表】

Journal	Impact Factor	#フ'テーマ			合計
		1	2	3	
Adv Mat.	5.579	1			1
Appl. Phys. Lett.	3.849	3	4		7
Phys. Rev. B	3.070	2			2
LANGMUIR	2.963	2			2
Surf. Sci.	2.189	2			2
J. Appl. Phys.	2.180	3	3		6
J. Electro Chem. Soc.	2.033	1			1
J. Am. Ceram.	1.748	1	7		8
J. Sol. State Chem.	1.614		1		1
Phil. Mag. A	1.532		1		1
J. Mat. Res.	1.315	2	2		4
J. Cryst. Growth	1.283	2		1	3
Thin Sol. Films	1.266	3	4		7
J. Phys. D. Appl. Phys.	1.260		2		2
JPN. J. Appl. Phys.	1.157	4	9	3	16
Appl. Surf. Sci.	1.068	3			3
Nuc. Inst. Meth. B	1.041	2			2
主要雑誌小計		31	33	4	68
発表論文合計		102	99	9	210

注) 国内誌であっても英語で記述されており、かつ広く世界的に認められている雑誌は国外として集計した。また、学会も同様で国際会議は国内で開催されても国外として集計した。なお、個別項目でも同様に扱っている。