

## 科学研究費助成事業 研究成果報告書

平成 30 年 6 月 25 日現在

機関番号：57403

研究種目：基盤研究(C) (一般)

研究期間：2015～2017

課題番号：15K04725

研究課題名(和文) 走査型非線形誘電率顕微法による極性反転圧電薄膜の層状構造測定法の研究

研究課題名(英文) Measurement method for polarity-inverted layered piezoelectric thin films using scanning nonlinear dielectric microscopy

研究代表者

小田川 裕之 (ODAGAWA, HIROYUKI)

熊本高等専門学校・地域イノベーションセンター(熊本キャンパス)・教授

研究者番号：00250845

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 3,700,000円

研究成果の概要(和文)：最近の研究で、ZnO やAlNなどの圧電薄膜を用いて、層状に極性反転した構造の作製が可能になってきており、今後の圧電デバイスの開発に重要である。本研究では、走査型非線形誘電率顕微法(SNDM)を応用し、非破壊で表面から層構造を測定する方法の開発を行った。その結果、反転層が1層ある場合については、具体的な測定と層厚の決定手順を確立した。実験結果は実際の層厚によく一致し、更に、層厚の面内分布の計測も可能となった。次に、反転層が2層ある場合についても同様に検討した。探針の押し込み量を調節して電界分布を変える実験を行い、押し込み量による出力信号の変化を確認し、多層構造での層厚推定の可能性を示した。

研究成果の概要(英文)：Recently, it is reported that the polarity of ZnO and AlN piezoelectric thin film fabricated by radio frequency (RF) magnetron sputtering method can be switched by changing the growth condition, and polarity-inverted structure has been obtained. In this research, we have developed the quantitative measurement method for the thickness of a polarity inverted layer using scanning nonlinear dielectric microscopy (SNDM). We derive an equation that represents the relationship between the output signal and the oscillation frequency of the SNDM probe, and developed the measurement procedure that can determine the thickness of polarity-inverted single layer structure. We applied it to two-dimensional distribution measurements of the layer thickness. Moreover, we investigated the measurement for double layered structure. We showed that it is possible to determine the thickness of two layers by controlling depth profile of electric field inside the measurement materials using a soft probe tip.

研究分野：圧電材料の評価技術、圧電デバイス

キーワード：分極反転 圧電薄膜 走査型非線形誘電率顕微法 極性反転構造

### 1. 研究開始当初の背景

(1) 圧電体は、超音波デバイス、アクチュエータ、光デバイス等に広く用いられている。高性能化にあたっては、材料の開発とデバイス構造の開発の観点から研究が進められているが、これらに加えて極性(分極)を任意に反転させた構造を用いることも、デバイスの高性能化への有効な手段となる。分極反転構造の形成方法は古くから様々なものが提案されているが、近年、早大の柳谷らは ZnO や AlN 等の圧電薄膜をスパッタリングで成膜する際、条件を制御することで極性を変える技術を開発し、研究を進めている。また、極性の向きを基板面に対して垂直な方向に制御することも可能になっている。この技術が確立すれば、層状に極性が反転した構造を作製することが可能となり、また、マイクロ・ナノマシン(MEMS)技術との融合も可能であるため、次世代の圧電デバイスの開発に大きく貢献するものと期待される。しかし、このような層構造の極性反転構造を非破壊で測定する方法がなかった。

(2) 一方、東北大の長による走査型非線形誘電率顕微法(SNDM)は、従来のエッチングレートの違いによる形状観察や、光学顕微鏡レベルでの観察ではなく、純電氣的にナノレベルでの極性評価が可能であり、しかも非破壊で測定が可能である。従って、微細な極性反転構造をもつ材料やデバイスの計測に非常に有効である。しかし、面内に極性分布がある構造の研究は進んでいるが、厚さ方向で層状に極性が反転している構造の測定については、検討がまだ十分にはされていなかった。

### 2. 研究の目的

本研究の目的は、層状極性反転構造の材料およびデバイスの研究を支援するために、走査型非線形誘電率顕微法を応用することで、層状に極性が反転した構造の圧電薄膜の層厚を、表層から非破壊で測定する技術を確立することである。

### 3. 研究の方法

(1) 一般に、誘電体試料に接触した探針下の電界分布は、試料と探針との接触点近傍に集中することが知られている。SNDM ではその電界の 2 乗に比例した信号が得られるため、測定範囲は更に狭い。SNDM が面内で非常に高い分解能を有しているのは、そのためである。この電界分布は、試料の誘電率と探針半径に依存し、誘電率が大きいほど、また、探針半径が小さいほど探針直下に集中する。SNDM の信号強度と誘電率及び探針半径の関係については、電気映像法により詳しく調べられているので、この特性を利用し、探針半径を適切に変えて SNDM の測定を行うことで、極性反転層の厚さを推定することが可能であると考えられる。図 1 は層厚測定のコセプトを示している。

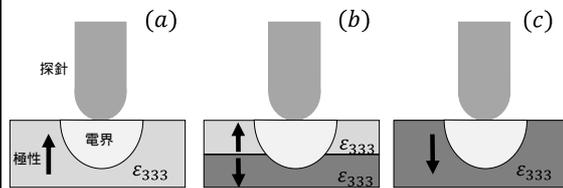


図 1 探針半径と測定深さの関係

図 1(a)は反転層厚に対して探針半径が小さい場合で、極性が上向きの部分にのみ電界が印加されている。図 1(c)は探針半径が大きい場合で、極性が下向きの部分に広く電界が印加されている。図 1(b)はその中間の場合で、極性が上向きの上層と極性が下向きの下層の両方に電界が印加されている。奇数次の非線形誘電率は極性が反転すると符号も反転するので、図 1(a)の SNDM 信号で規格化すると、規格化 SNDM 信号は+1~-1 の間で得られる。層状極性反転構造における反転層厚の測定は、反転層に起因する SNDM 信号の減少を観測することで可能となる。比誘電率 30 の場合における規格化層厚  $t/a$  と規格化 SNDM 信号の関係を図 2 に示す。図 2 より、有効範囲内の測定によって得られた規格化 SNDM 信号から反転層の厚さ  $t$  を求めることができる。

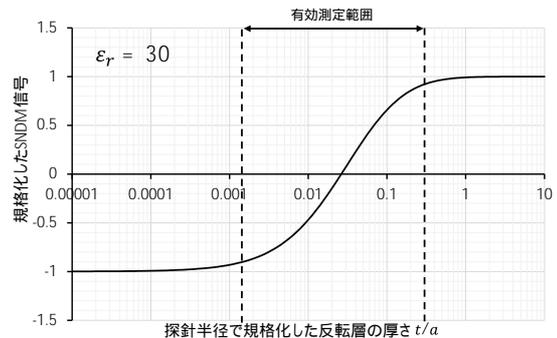


図 2 探針半径で規格化した反転層厚と信号強度

### 4. 研究成果

(1) 上記の基本原理に基づき、定量的に反転層の層厚を得る測定法について確立した。その概要を以下に説明する。SNDM 信号は非線形誘電率  $\epsilon_{333}$  だけでなく、装置の浮遊容量  $C_0$  にも依存するが、実際には装置の浮遊容量や試料の非線形誘電率が未知の場合が多い。このため定量的な測定をするには、層構造の上層のみを測定する探針と層厚を測定する探針の、半径の異なる 2 本のプローブが必要である。また、探針半径の大きさによって浮遊容量が変わるため、極性が均一に分布した標準試料を用いて測定を行い、信号を校正することとした。

(2) 図3はSNDMの定量測定概念図である。探針部分はLC共振器を構成しており、 $L$ は共振器内部のインダクタンス、 $C_0$ は試料による容量を除いた浮遊容量である。図の左から順に、プローブが試料から十分に離れているとき、試料に接したとき、試料に接した状態で交番電圧をステージと探針間に印加したときを表している。

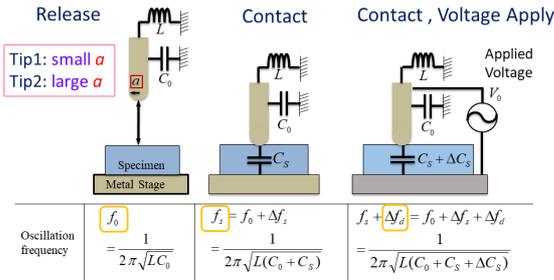


図3 定量測定概念図

探針先端が試料表面から十分に距離がある場合、共振周波数は次式となる。

$$f_0 = \frac{1}{2\pi\sqrt{LC_0}}$$

探針が試料表面に接触すると、試料の容量 $C_s$ により、周波数は $\Delta f_s$ 変化し、このときの周波数を $f_s = f_0 + \Delta f_s$ とする。また、この状態で探針に高周波電圧を印加すると更に容量変化 $\Delta C_s$ が得られ、周波数が $\Delta f_d$ 変化する。したがって共振周波数 $f = f_s + \Delta f_d$ は次式で表される。

$$f_s + \Delta f_d = \frac{1}{2\pi\sqrt{L(C_0 + C_s + \Delta C_s)}}$$

これらの各場合の周波数を測定すると、最終的には次式が得られる。

$$\frac{\Delta C_{s2}}{\Delta C_{s1}} = \frac{f_{s2}^{st} \Delta f_{d1}^{st} f_{s1}^{ui} \Delta f_{d2}^{ui}}{f_{s1}^{st} \Delta f_{d2}^{st} f_{s2}^{ui} \Delta f_{d1}^{ui}}$$

ただし、添字1及び2は探針1及び探針2による測定を表し、 $st$ は反転層のない標準試料を、 $ui$ は測定試料を表す。上式は、探針2の測定信号を探針1の測定信号で規格化したものである。このように、層状構造におけるSNDMの規格化信号は、共振周波数のみから得られることが分かった。実際に、Sc-AlNの極性反転構造を測定したところ、層厚1.5  $\mu\text{m}$ に対して、1.38  $\mu\text{m}$ が得られ、妥当な値が得られた。

(3) 反転層が2層ある場合についても検討を行った。図4は極性基板の上に反転層が2層形成された場合の、出力信号と探針半径の関係を映像電化法で求めた結果である。この図からわかるように、2層の場合は、同一の規格化SNDM信号に対して複数の層厚の組み合わせが存在するため、1層の時と同じ測定では層厚を求めることができない。そのため、

例えば、1層の場合の測定に加え、更に半径の異なる探針を用いて測定すれば、2つ以上の異なる半径の探針を用いて測定することが可能であると考えられる。

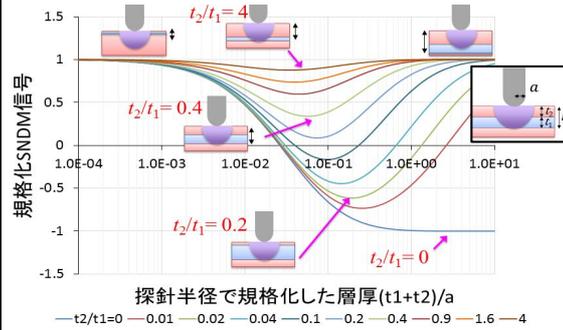


図4 反転層が2層の場合の規格化SNDM信号と反転層の厚さの関係

しかし、探針半径の異なるプローブで何度も測定するのは手数がかり、実用的ではない。そこで、シリコンゴムのような柔らかい探針を用いることで、押し込み量により探針半径が連続的に変化させ、プローブや探針を交換することなく測定する方法を考案した。図5の横軸は探針を試料に押し込んでいったときの移動距離で、縦軸がSNDMの信号強度である。移動距離5~7  $\mu\text{m}$ 付近で信号強度が急激に増加していることがわかり、試料に探針が接触した点であると思われる。その後、信号強度がピーク値をとった後、押し込むに従って信号強度が徐々に小さくなっていく。これは、押し込みと共に等価的に探針半径が大きくなったために、より深い反転層まで電界が侵入し、下の層の影響で出力信号が打ち消されていることを表していると考えられる。この結果から、本方法を用いることにより、2層以上の多層構造であっても、深さ方向の構造を推定することが可能であるとわかった。本研究により、今まで非破壊では得ることが困難であった圧電薄膜の極性反転層の層厚の分布を測定することが可能となり、今後の層構造の薄膜圧電デバイスやその基板の開発において貢献するものと考えられる。

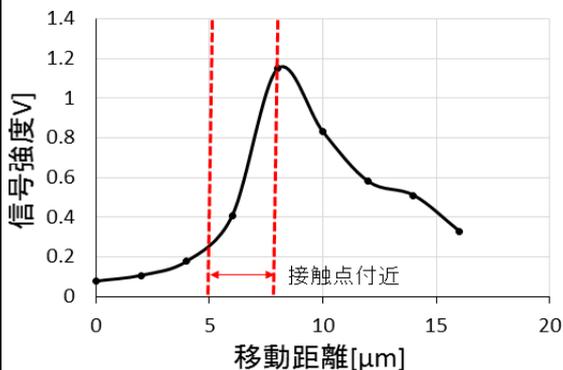


図5 押し込み量と出力信号の実験結果

5. 主な発表論文等  
(研究代表者、研究分担者及び連携研究者には下線)

[雑誌論文](計2件)

(1) Hiroyuki Odagawa, Koshiro Terada, Yohei Tanaka, Hiroaki Nishikawa, Takahiko Yanagitani and Yasuo Cho, "Quantitative thickness measurement in polarity-inverted piezoelectric thin film layer using scanning nonlinear dielectric microscopy", JAPANESE JOURNAL OF APPLIED PHYSICS, No.56, 10PF18, (2017). DOI: 10.7567/JJAP.56.10PF18

(2) HIROYUKI ODAGAWA, KOSHIRO TERADA, HIROAKI NISHIKAWA, TAKAHIKO YANAGITANI and YASUO CHO, "METHOD FOR MEASURING POLARITY-INVERTED LAYERED STRUCTURE IN DIELECTRIC THIN FILMS USING SCANNING NONLINEAR DIELECTRIC MICROSCOPY", Ferroelectrics, Vol. 498, Issue 1, pp.47-51 (2016.5).

[学会発表](計8件)

(1) H. Odagawa, K. Terada, H. Nishikawa, Y. Tanaka, T. Yanagitani and Y. Cho, "Quantitative thickness measurement in polarity-inverted piezoelectric layered thin film using scanning nonlinear dielectric microscopy", 2017 Joint IEEE ISAF - IWATMD - PFM (26th International Symposium on Applications of Ferroelectrics (ISAF)), (May 7-11, 2017, Atlanta).

(2) Hiroyuki Odagawa, Koshiro Terada, Hiroaki Nishikawa, Yohei Tanaka, Takahiko Yanagitani and Yasuo Cho, "Quantitative thickness measurement in polarityinverted piezoelectric layered thin film using scanning nonlinear dielectric microscopy", 2016 Joint IEEE International Symposium on the Applications of Ferroelectrics, European Conference on Applications of Polar Dielectrics & Workshop on Piezoresponse Force Microscopy (ISAF/ECAPD/PFM), (Augst 21-25, 2016, Darmstadt, Germany).

(3) Koshiro Terada, Hiroaki Nishikawa, Yohei Tanaka<sup>1</sup>, Hiroyuki Odagawa, Takahiko Yanagitani, and Yasuo Cho, "Quantitative Thickness Measurement in Layered Polarity-Inverted Piezoelectric Thin Films Using Scanning Nonlinear Dielectric Microscopy", The 3rd International Conference of Global Network for Innovative Technology (IGNITE2016), (Jan 27-29, 2016, Penang, Malaysia).

(4) Hiroyuki Odagawa, Koshiro Terada, Hiroaki Nishikawa, Takahiko Yanagitani and Yasuo Cho, "Method for Measuring Polarity-Inverted Layered Structure in Dielectric Thin Films Using Scanning Nonlinear Dielectric Microscopy", 13th European Meeting on Ferroelectricity (EMF2015), (June 28 - July 3, 2015, Porto, Portugal) P2\_18.

6. 研究組織

(1) 研究代表者

小田川 裕之 (ODAGAWA HIROYUKI)  
熊本高等専門学校・地域イノベーションセンター・教授

研究者番号：00250845

(2) 研究分担者

柳谷 隆彦 (YANAGITANI TAKAHIKO)  
早稲田大学・理工学術院・准教授

研究者番号：10450652

(3) 連携研究者

長 康夫 (CHO YASUO)  
東北大学・電気通信研究所・教授  
研究者番号：40179966