

令和元年6月26日現在

機関番号：14303

研究種目：基盤研究(C) (一般)

研究期間：2015～2018

課題番号：15K06016

研究課題名(和文) MEMS構造体の高Q値共振と広帯域化を両立する高効率環境振動発電デバイス

研究課題名(英文) Device control and structure design for high conversion efficiency of MEMS vibratory energy harvesters with high Q-value in a wide band

研究代表者

山下 馨 (Yamashita, Kaoru)

京都工芸繊維大学・電気電子工学系・教授

研究者番号：40263230

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 3,800,000円

研究成果の概要(和文)：振動型圧電MEMS(微小電気機械システム)構造体において、機械・電気変換効率を向上して環境発電デバイス等の高効率化を図る。振動のQ値を高く保ったまま広帯域化に対応するために逆圧電応力による共振周波数制御を導入し、同時に非線形歪みによる変換効率向上のために圧電振動体を座屈させ静的撓みを導入した。まず圧電体PZT薄膜のソル・ゲル法による製膜条件が残留応力と圧電特性に与える影響を明らかにし、静的座屈撓みの効果と圧電材料としての変換能力の双方の観点で最適なデバイス構造を形成する条件を明らかにした。さらにこの制御された座屈をもつデバイスに逆圧電応力を印加して、動的な共振周波数制御性を明らかにした。

研究成果の学術的意義や社会的意義

MEMS環境発電素子(エネルギー・ハーベスタ)は来たるIoT(internet of things)社会を支える電源技術として不可欠である。特に人類の活動環境に普遍的に存在する環境振動をエネルギー源とする振動発電素子は重要である。本研究では圧電MEMS型環境発電素子について、環境振動周波数に追従して高効率で発電するための基盤技術となる共振周波数制御方法を追究し、特に単体での振動発電効率を向上する従来にない座屈構造に着目して共振挙動の解明を進めた。

研究成果の概要(英文)：Device control and structure design were investigated on piezoelectric MEMS (micro-electro-mechanical systems) vibratory structures for high efficiency of mechanical-to-electrical energy conversion. A static buckling deflection was introduced in the piezoelectric vibratory structures for high conversion efficiency owing to its nonlinear strain, and converse piezoelectric effect was used to dynamically change the resonant frequency of the vibrators to follow the environmental vibration. Preparation condition of piezoelectric PZT thin films in sol-gel process was optimized from the viewpoints of residual stress dominating the buckling, and piezoelectric property. Converse piezoelectric stress was applied to the buckled structure and vibration behavior was elucidated in its vibration modes and natural frequencies.

研究分野：工学

キーワード：圧電 MEMS 応力 共振周波数 振動モード エネルギー変換

様式 C - 19、F - 19 - 1、Z - 19、CK - 19 (共通)

1. 研究開始当初の背景

環境発電には種々の方法が研究されているが、なかでも環境振動を捉えて発電する手法は太陽電池や温度差発電などに比べて適用範囲が広く、研究開発件数でも中心的な位置を占めている。振動発電の基本的な設計指針は単純で、共振の Q 値を上げることで高効率化を図るというものであるが、環境振動の周波数が変化しないという前提で、振動発電体の共振周波数を精密に合わせ込む設計が行われる。しかしながら、共振の Q 値を高くすることはすなわち発電に対応できる周波数帯域をそれだけ狭めることになる。環境振動の周波数がデバイス設計で合わせ込んだ周波数からずれると、Q 値が高いほどその影響は大きく発電効率が極端に低下してしまう。振動体の Q 値と帯域幅は基本的にトレードオフの関係にあり、Q 値を高く保ったまま帯域幅を広げることは不可能である。しかし、完成したデバイスの発電部である振動構造体の共振周波数を動的に変更することができれば、高い共振の Q 値を保ったまま環境振動の周波数変化に対応して常に高効率で発電を続けることが可能となる。発電部に強誘電体を用いると、強誘電体の圧電効果により発電を行い、逆圧電効果により応力を発生して共振周波数を変化させることができる。さらに強誘電体の分極保持特性により、一旦変更した共振周波数をエネルギー消費なしに維持できる可能性がある。

2. 研究の目的

振動型圧電 MEMS (微小電気機械システム) 構造体において、機械・電気変換効率を向上して環境発電デバイス等の高効率化を図る。高 Q 値をもつ振動体に逆圧電効果による応力を導入して共振周波数制御を試み、同時に非線形歪みによる変換効率向上のために圧電振動体を座屈させ静的撓みを導入する。デバイス構造は、シリコン MEMS プロセスにより形成したシリコン熱酸化膜 (SiO₂) のダイアフラム (周辺固定薄板) 上へ、強誘電体でもある圧電体 PZT (ジルコニウム酸チタン酸鉛; Pb(Zr,Ti)O₃) のキャパシタを形成した形状とした。SiO₂ の圧縮応力が解放されることによりダイアフラムが座屈するが、PZT の応力によりその座屈量を制御できる。キャパシタの電極から発電電力を取り出すとともに、外部から電圧を印加して共振周波数の制御を試みる。これらを組み合わせて総合的な効率を最適化するためのデバイス構造と制御性を追究することを目的として、以下の点について研究を進めた。

(1) ダイアフラムの座屈形状と圧電変換効能を総合的に見た最適化

圧電薄膜の作製条件を変えることで応力を制御することを試みるが、同時に応力だけでなく圧電体としての性能が変化することを考慮し、製膜条件に対して応力と圧電性能の両者がどのように変化するかを明らかにする。これより、最適な製膜条件を導く。

(2) 座屈ダイアフラムの振動様態と共振周波数制御

様々な静的座屈量を持つダイアフラムの振動様態 (振動モードと固有振動数) を詳細に評価し、座屈量に対する振動様態の変化を明らかにする。逆圧電応力印加時には面内応力により共振周波数が影響を受けるとともに、撓み量が増加することにより静的座屈量に起因する共振周波数変化が重畳される。これらを評価して、共振周波数制御性を明らかにする。

3. 研究の方法

(1) 圧電ダイアフラム型 MEMS 振動構造体の作製

図 1 に圧電 MEMS ダイアフラム構造体の模式図を示す。表面熱酸化膜付きのシリコンウェハを出発基板として、下部電極および PZT の下地として Pt(111) 薄膜を RF スパッタリング法により製膜する。なお Pt 薄膜のみでは SiO₂ との密着性が悪いため、同一の製膜室内で予め Ti の薄膜を形成しておく。下地形成後にゾル・ゲル法により PZT 薄膜を製膜し、下部電極へのコンタクトホールをウェットエッチングにより形成する。ゾル・ゲル法は、前駆体溶液を基板へスピンコートして仮焼成によりゲル膜を形成することを繰り返したのち、高温の酸素雰囲気中で本焼成することにより PZT の多結晶膜を得る。ここでは合計 15 回のスピンコートと仮焼成の組み合わせの中で数回の本焼成を行い、最終的に厚さ約 1 μm の PZT 膜を得ている。このとき、仮焼成の温度により PZT の結晶配向性を制御しているが、詳細は次節で述べる。圧電 PZT 薄膜上に上部電極として Au 薄膜を形成し、ウェットエッチングによりパターンニングする。これにより表側の構造が完成する。最後に、裏面の SiO₂ にウェットエッチングにより窓を開け、ICP-RIE (inductively coupled plasma enhanced-reactive ion etching) 装置を用いて Bosch プ

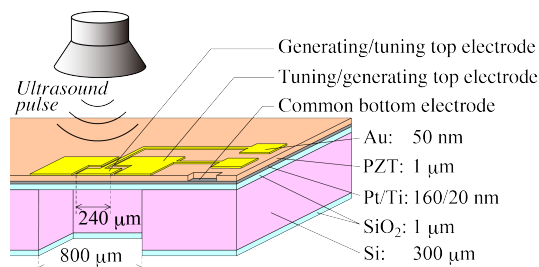


図 1 圧電ダイアフラムデバイスの模式図

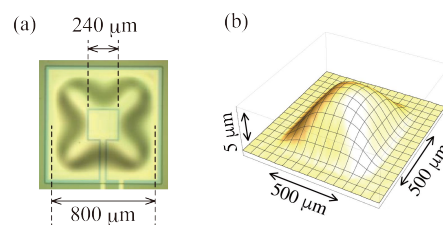


図 2 作製したダイアフラム構造の例。(a) 光学顕微鏡写真。(b) 三次元プロファイル。

ロセスによりシリコンウェハを垂直にエッチングして全体構造を完成する。ダイアフラム直下のシリコンが除去された段階で、 SiO_2 と PZT の応力によって決まる特定の撓み量までダイアフラムが座屈する。ダイアフラムの光学顕微鏡写真と座屈形状を図 2 に示す。

(2) ダイアフラム座屈量の制御と圧電性能

ゾル・ゲルプロセスにおいては、高温の本焼成中に PZT の結晶が形作られるため、常温へ冷却する過程で結晶が収縮するが、その収縮量が結晶方位によって異なる。作製した PZT は正方晶と菱面体晶が混在していると考えられるが、いずれの結晶系においても(111)配向膜の方が(100)配向膜より面内方向の熱膨張率が大きいため、常温における面内の引張応力は(111)配向膜の方が(100)配向膜より強くなる。一方、ゾル・ゲルプロセス中の複数回の本焼成のうち初回の本焼成膜厚が PZT の結晶配向性を決定することがわかっており、これまでとこのころ、100 nm 以下の薄いゲル膜を結晶化すると(100)優先配向、200 nm 程度以上の厚みを持つゲル膜を結晶化すると(111)優先配向となる。これらのことを踏まえて、今回は種々の応力を持つ PZT 膜を作製する目的で、仮焼成温度を高温にしてウェハ面内に意図的に温度勾配を設けた。こうすることにより、高温部分では仮焼成の段階すなわちゲル膜が十分に薄い段階で部分的に結晶化が進み(100)成分を多く含む多結晶を生成し、低温部分ではゲル膜を厚く重ねて本焼成まで結晶化が進まず(111)成分を多く含む多結晶を生成することを目論んだ。

面内引張応力が強いほどダイアフラムの座屈を妨げる効果が大きいため、最終的に(100)成分を多く含む結晶では座屈撓みが大きく、(111)成分を多く含む結晶では座屈撓みが小さくなる。一方で、結晶配向は圧電的性能も左右する。PZT は、正方晶においては(001)方向に自発分極を持つのに対し、菱面体晶では(111)方向に自発分極を持つので、いずれの結晶系においても(111)配向膜の方が(100)配向膜より大きな自発分極を持つ。圧電効果により生ずる分極量は自発分極に比例するので、(111)配向膜の方が(100)配向膜より高い圧電性能を持つことが見込まれる。

(3) ダイアフラムの振動様態の評価

振動構造体の共振周波数を評価する方法として、外部加振機の周波数をスイープして振動振幅ピークを得ることが一般に行われているが、周波数分解能を高く保つためにはスイープ速度を十分に遅くしなければならず、多数のサンプルにおいて多数の条件で測定するには測定に要する時間が非現実的に大きくなる。そこで本研究では、擬似的なインパルス応答により共振周波数を含めた振動様態を評価することとした。具体的には、ごく短い継続周期(1~1.5周期)をもつパルス音波を照射して、走査型レーザドブラ振動計によりダイアフラム振動体上の各点における減衰振動波形を計測する。測定波形の時間同期を行なった上でフーリエ変換し、ダイアフラム上の各点間の位相情報を保って振動振幅をマッピングすることで、各固有周波数におけるダイアフラムの振動モード形状を得ることができる。これにより、種々の撓み量を持つ多数のサンプルおよび単一のサンプルに種々の電圧を印加した状態にて振動様態を評価した。

4. 研究成果

(1) ダイアフラム座屈量の制御と圧電性能

図 3 に種々の条件で製膜したゾル・ゲル PZT 薄膜の X 線回折(XRD)パターンを示す。主要なピーク高さ合計に対する(111)ピーク高さを(111)相対ピーク比 $\rho_{(111)}$ と定義した。作製したサンプル内で 2.7%~99%のバリエーションを得た。これら種々の結晶配向を持つ PZT 膜について残留分極値を評価した結果を図 4 に示す。各結晶系における自発分極軸の方向と膜内の結晶方位の関係から予測されたように、(111)相対ピーク比が大きくなるほど残留分極値が大きくなっていることがわかる。 $\rho_{(111)} = 1.3\%$ の膜に対して $\rho_{(111)} = 99\%$ の膜では約 1.6 倍の残留分極値を持つ。一方、結晶配向に対するダイアフラム撓みの変化を図 5 に示す。各結晶系における各方向の熱膨張率から予想されたように、(111)相対ピーク比が大きくなるほどダイアフラム撓み量が低下している。 $\rho_{(111)} = 70\%$ を超える膜をもつダイアフラムでは測定限界に近い撓み量であり、ほぼ座屈していないとみなせる。これは PZT の面内引張応力が十分に強く、ダイアフラム全体の面内伸長力が座屈限界を超えないためと考える。

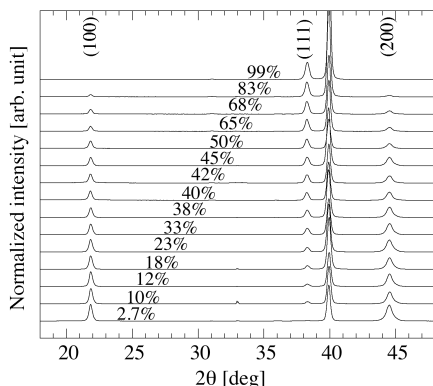


図 3 作製した PZT 薄膜の XRD パターン

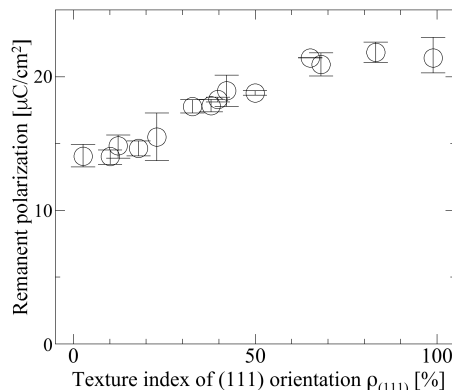


図 4 (111)相対ピーク比に対する残留分極

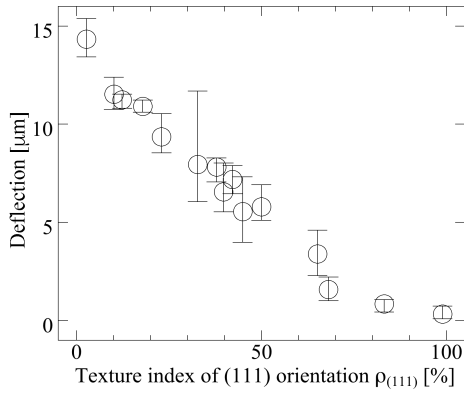


図5 (111)相対ピーク比に対する撓み量

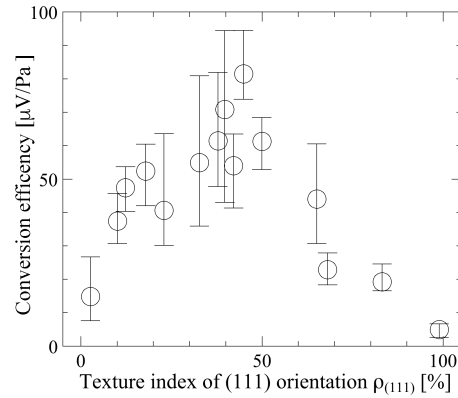


図6 (111)相対ピーク比に対する変換効率

圧電ダイアフラム構造体のエネルギー変換効率は、前節で示した音波パルスの照射に対する圧電出力を基にした。キャパシタの電極間の開放電圧を測定し、その減衰振動波形の最大 peak-to-peak 値を照射した音波パルスの peak-to-peak の音圧で除した値を用いた。各結晶配向を有する PZT 膜で作製した圧電ダイアフラムの変換効率を図 6 に示す。(111)相対ピーク比が大きい領域ではダイアフラム撓みの減少が顕著で、相対ピーク比の増加とともに変換効率が低下している。一方で(111)相対ピーク比が小さい領域では、残留分極の低下が変換効率へ大きく影響しており、相対ピーク比の減少とともに変換効率が低下している。このように、結晶配向が(100)優先であっても(111)優先であっても、ダイアフラム座屈の観点と圧電性能の観点で逆方向の影響を持つため、両極端の単一配向では却って変換効率の低下がみられる。これらの結果より、中間的な配向度の $\rho_{(111)} = 40\% \sim 50\%$ 付近に最適な結晶配向性が存在することが分かる。これは、従来の圧電材料学的な観点からは見いだすことができず、圧電 MEMS ダイアフラムのデバイス形状まで考慮して初めて明らかになったことである。

なお、(111)相対ピーク比が小さい領域の残留分極値の低下から想定されるものよりも激しい変換効率の低下が見られている。現状ではまだはっきりした原因は判明していないが、一つの仮説として PZT 膜の面内方向の連結性の低下が考えられる。残留分極は膜厚方向の電界に対する膜厚方向の分極測定から得られるものであるのに対し、圧電出力は面内方向の伸縮に対する膜厚方向の分極を測定したものである。ここで PZT 膜を構成する結晶が面内方向に強い連結性を持たない場合、デバイス自体の面内方向の伸縮が PZT の結晶そのものに効率的に伝わらず、圧電性が低下しているように観測されるが、残留分極の測定には影響を与えない。この考え方は現状ではまだ仮説の段階であり、本研究終了後も引き続き追究して行きたい。

(2) ダイアフラムの振動様態の評価

走査型レーザドプラ計測による音波パルスに対するダイアフラムの振動応答を図 7 に示す。種々の静的座屈を持つダイアフラムの中から撓み量が(a) $6 \mu\text{m}$ 程度のもの(b) $12.5 \mu\text{m}$ 程度のものを例示している。図 5 に示したように、後者は本研究を通しての最大撓み量に近い。図 7 (i) はダイアフラム中央部での振動のフーリエ変換スペクトル、図 7 (ii) はダイアフラムの静的撓み形状断面、図 7 (iii) は代表的な振動モードと固有周波数を示しており、周波数に付けた番号と色表示は図 7 (i) のピークと対応している。図 7 (a) と (b) を比較すると、撓み量大きい領域では発生する振動モードの数が減少していることがわかる。これは、静的撓みによって複雑な節

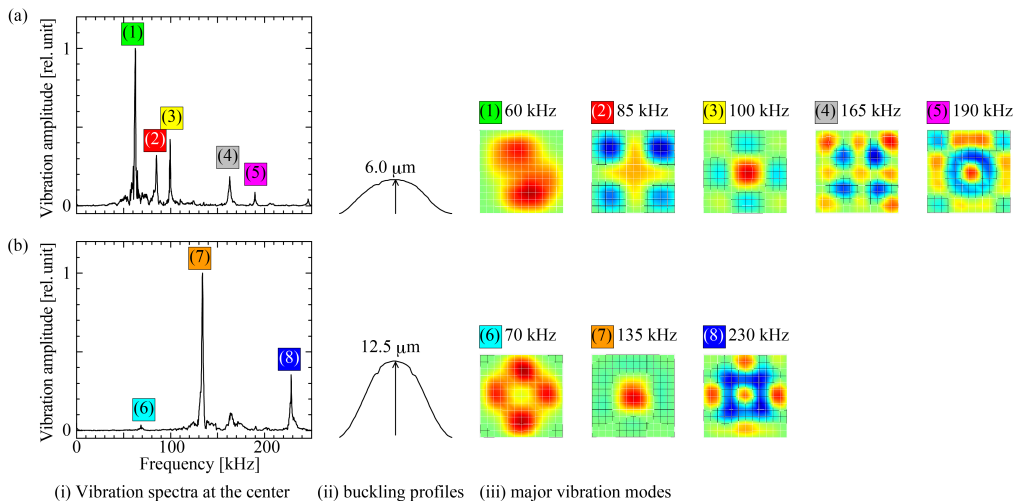


図7 静的座屈撓みを持つ圧電ダイアフラムのパルス応答振動モードの例

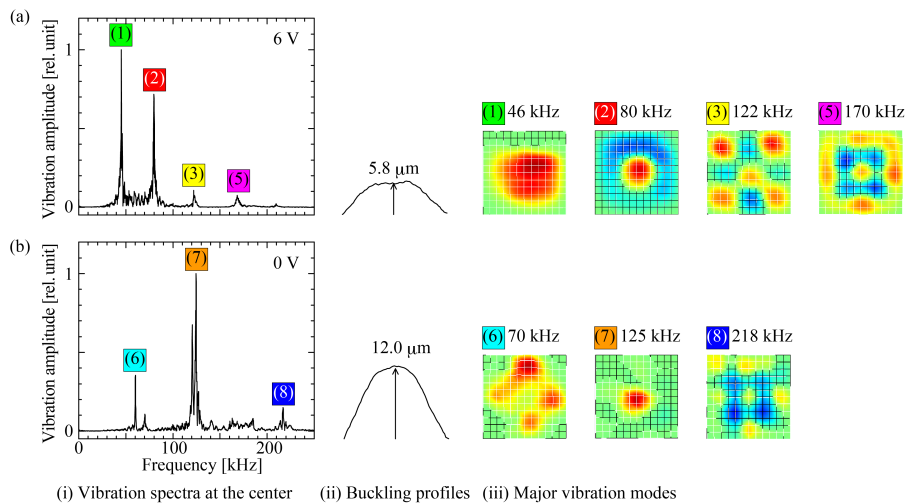


図8 逆圧電応力により撓み量を変化させた圧電ダイアフラムのパルス応答振動モードの例

をもつ振動モードの生成が抑制された結果と考える。図8は、同一のダイアフラムに電圧を印加して逆圧電応力により撓み量を変化させたものである。図8(a)では6Vの印加で撓み量が約6 μm 、図8(b)は電圧印加前(0V)で撓み量が12 μm であり、図7と撓み量が同程度になるように揃えている。図7と図8を比較すると、6 μm と12 μm の例では同程度の撓み量に対してほぼ同様の振動モードが発生し近い固有周波数を持つことがわかる。

これらの振動モードと固有周波数について、ダイアフラム撓み量に対する変化をプロットしたものを図9と図10に示す。図9は50個の異なるダイアフラムについて、静的座屈量に対する各振動モードの固有周波数をプロットしている。一方図10では、同一のダイアフラムに0V~10Vの異なる電圧を印加して動的に変化させた撓み量に対する各振動モードの固有周波数をプロットしている。丸括弧で囲んだ番号と色付けは、各々図7~図10を通して同じ振動モードに対応する。図9から、静的座屈に対する固有周波数は概ね座屈量の増加に従い上昇しているが、モードによりその変化率が異なり、複数のモードの固有周波数が接近すると両モードの合成が生じている。図9の例では撓み量8 μm 付近でモード(2)と(3)が合成されてモード(7)が生じている様子が見える。図7の各モード形状を見ても、モード(2)と(3)の合成により周辺部の逆位相同士がキャンセルし、中心部分の振動のみが顕著に残るモード(7)への変化が理解できる。静的撓みの増加に対しては、このように複雑なモードが合成されて単純なモードへ変化する、あるいは、複雑なモードの振幅が相対的に減少することで、単一に近い単純な振動モードへ変換することがわかる。

一方で逆圧電応力を印加したダイアフラムでは、撓み量の大きい領域では静的座屈の場合と同様の傾向であるが、撓み量の小さな領域では面内の引張力の影響を大きく受ける。すなわち、引張力のために複雑なモードの生成が抑えられ、また撓み量の減少に対して固有周波数が上昇することがわかる。振幅が大きく支配的な振動モードに着目すると、撓み量が大きい領域では固有周波数が高いモード(7)が支配的であり、撓み量が小さくなると固有周波数の低いモード(1)が支配的となる。このことから、静的座屈による撓み量が小さなダイアフラムでは、逆圧電応力による引張力が支配的となって電圧印加に伴い固有周波数が上昇する一方、静的座屈による撓み量が大きなダイアフラムでは振幅が支配的となる振動モードが変化することにより、電圧印加に伴い固有周波数が低下するというメカニズムが考えられる。後者のメカニズムは大きな

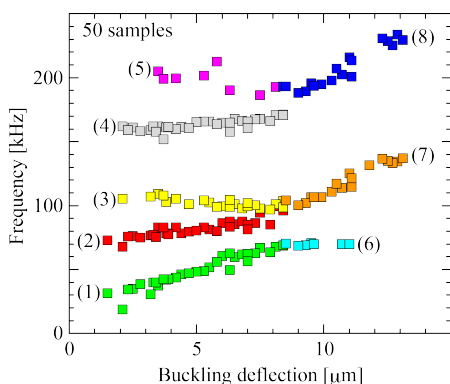


図9 静的座屈たわみを持つダイアフラムの固有振動数変化

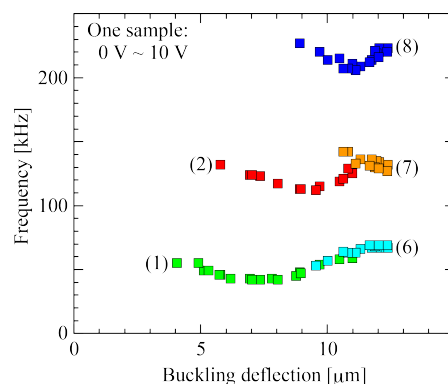


図10 逆圧電応力により撓み量を制御したダイアフラムの固有振動数変化

静的座屈撓みを持つので変換効率の点で有利であり，また振動モード間の遷移により共振周波数を大きく変化させることができる一方，モード間の領域では周波数を精密に制御することが困難であることが予想される。本研究終了後も，静的座屈撓み量が5～10 μm程度のダイアフラムをさらに詳細に調査することにより，最適な周波数制御性が得られる構造を追究したい。

5 . 主な発表論文等

〔学会発表〕(計25件)

1. K. Yamashita, S. Nakajima, J. Shiomi, M. Noda, P. Muralt, Vibrating Piezoelectric Energy Conversion Efficiency of Sol-Gel PZT Films with Various Crystal Orientation on MEMS Buckled Diaphragm Structures, IEEE ISAF, 査読あり, 2019
2. K. Yamashita, T. Nishoka, M. Noda, P. Muralt, Vibration Mode Investigation of Piezoelectric Ultrasonic Microsensors on Buckled Diaphragms, Eurosensors XXXII, 査読あり, 2018
3. K. Yamashita, S. Nakajima, J. Shiomi, M. Noda, P. Muralt, Piezoelectric Ultrasonic Microsensors on Buckled Diaphragms Using Sol-Gel Derived PZT Films, 2018 ISAF-AMF-AMEC-PFM Joint Conference (IFAPP2018), 査読あり, 2018
4. K. Yamashita, J. Shiomi, T. Nishiumi, M. Noda, Stress Control on Sol-Gel PZT Preparation for Highly Sensitive Diaphragm Structures of Ultrasonic Microsensors, ISAF/ECAPD/PFM2016, 査読あり, 2016

6 . 研究組織

(1)研究分担者

研究分担者氏名：藤田 孝之

ローマ字氏名：Takayuki Fujita

所属研究機関名：兵庫県立大学

部局名：工学研究科

職名：准教授

研究者番号(8桁)：50336830

研究分担者氏名：野田 実

ローマ字氏名：Minoru Noda

所属研究機関名：京都工芸繊維大学

部局名：電気電子工学系

職名：教授

研究者番号(8桁)：20294168

(2)研究協力者

研究協力者氏名：田中 恒久

ローマ字氏名：Tsunehisa Tanaka

研究協力者氏名：西海 太貴

ローマ字氏名：Taiki Nishiumi

研究協力者氏名：塩見 丈

ローマ字氏名：Jo Shiomi

研究協力者氏名：西岡 知記

ローマ字氏名：Tomoki Nishioka

研究協力者氏名：中島 将太

ローマ字氏名：Shota Nakajima

研究協力者氏名：日比野 光

ローマ字氏名：Hikaru Hibino