

令和元年6月25日現在

機関番号：24403

研究種目：基盤研究(B)（一般）

研究期間：2016～2018

課題番号：16H04353

研究課題名（和文）圧電MEMSと強誘電体ゲートFETの集積化素子による高感度超音波検出の実証

研究課題名（英文）Demonstration of high sensitive ultrasonic detection by the integration of piezoelectric MEMS and ferroelectric gate FET

研究代表者

吉村 武 (Yoshimura, Takeshi)

大阪府立大学・工学（系）研究科（研究院）・准教授

研究者番号：30405344

交付決定額（研究期間全体）：（直接経費） 12,700,000円

研究成果の概要（和文）：本研究では、急峻なスイッチング特性を有するトランジスタと圧電体を集積化することで超音波信号を高感度に受信する方法の開発に取り組みました。急峻スイッチング特性が強誘電体/半導体ヘテロ構造において、定常状態と非定常状態の遷移から発現する新しい機構を理論的に見出しました。また、高性能な圧電体薄膜の開発にも取り組みました。数 μm 程度の厚みを有する有機強誘電体薄膜が超音波検出に有用であることを見出しました。

研究成果の学術的意義や社会的意義

超音波画像診断は、現代医療において欠かすことができないものになっています。本研究では超音波診断装置の空間分解能の向上に向けて、高感度の超音波の受信方法の開発に取り組みました。負の静電容量という特異な性質を利用した、急峻なスイッチング特性を有するトランジスタの動作メカニズムを理論的に明らかにしました。これは超音波の高感度検出に有効であるだけでなく、低消費電力の論理演算素子の実現においても有用な知見と考えます。

研究成果の概要（英文）：In this research, a method to detect ultrasonic signals with high sensitivity was developed by integrating a transistor with steep switching characteristics and a piezoelectrics. From the theoretical analysis, mechanism of the steep switching characteristics was established, which is originated from the transition from steady-state and non-steady-state in ferroelectric/semiconductor heterostructures. Moreover, high-performance piezoelectric thin films were developed. It was found that organic ferroelectric thin films with a thickness of several micrometers are useful for ultrasonic detection.

研究分野：電気電子材料

キーワード：圧電 MEMS 超音波 負性容量 急峻スイッチング 強誘電体

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

1. 研究開始当初の背景

X線の発見以来、画像診断は近代医学の欠かせない要素として発展してきた。超音波、CT、MRIなど様々な手法が開発され、多くの疾患の診断で用いられている。一方で、X線や磁場を用いた手法は、被検者に対する身体的負担が大きい、装置が高価で限られた医療機関にしか導入されていないなどの課題がある。これに対し、超音波診断装置は、痛みや放射線被曝の心配がなく体への負担が少ない、装置が小型で利便性が高い等の特徴を有している。しかしながら、超音波診断装置の空間分解能はmmオーダーであり、癌の早期発見のような用途においては性能が不足している。超音波診断装置の空間分解能の向上は、用いる超音波の中心周波数を増加させることで実現できるが、体内での減衰も大きくなり深部からの信号が得られにくくなる。人体に対して照射できる超音波の強度には上限があるため、高空間分解能と高診断深度を両立させた超音波診断装置を実現するには、超音波の高感度検出が鍵となる。

現在の超音波トランスデューサは中心周波数が1-10MHzであり、主に圧電方式が採用されている。空間分解能を0.1mm以下に向上するには、中心周波数を30-50MHzに増加させ、2次元アレイ構造にする必要がある。それには μm オーダーの微細加工が要求され、現状の強誘電体単結晶を用いた超音波トランスデューサ等では実現が困難である。それを打開する技術の一つとして、1990年にミシガン大学のCarsonらによって圧電MEMS技術を用いた超音波トランスデューサ(pMUT)が提案された。近年では高い電気機械結合係数が得られる静電方式(cMUT)に対する関心も高まってきているが、pMUTは低電圧で駆動できる、非線形成分の検出が可能など、cMUTに対する優位性を有している。

圧電トランスデューサにおける超音波検出は、正圧電効果によって発生した電圧を測定することによって行われているが、素子が微細化されるpMUTでは寄生静電容量の影響が大きくなり検出感度が低下するという課題がある。また従来の圧電体薄膜の性能はセラミックスや単結晶よりも劣っており、十分な電気機械結合係数が得られないという点も実用化の障壁となっていた。

2. 研究の目的

本研究では、pMUTと強誘電体ゲート電界効果トランジスタによる超音波の高感度検出方法の開発を目的とした。pMUTからの出力を、電界効果トランジスタのスイッチング領域で受信することで、従来技術よりも高い検出感度の実現が期待できる。スイッチング特性が急峻であるほど高感度化が可能になることから、通常MOS-FETのスイッチング特性の下限である60mV/decを下回ることが可能と言われている強誘電体ゲート電界効果トランジスタ(FeFET)に着目した。強誘電体の負性静電容量に起因して発現する急峻スイッチング特性のメカニズムの解明に取り組んだ。さらにpMUTの高性能化については、エピタキシャル成長技術による強誘電体薄膜の高品質化に取り組んだ。組成の異なる薄膜を一回の製膜実験で作製することが可能なコンビナトリアルスパッタ装置を構築し、組成の効率的な最適化、さらにこのような薄膜の特性を短時間で解析できる手法の開発も目指した。さらに研究を進める過程で、超音波の検出には有機強誘電体であるポリフッ化ビニリデン三フッ化エチレン(P(VDF-TrFE))の薄膜が高い性能指数を有していることが明らかになってきた。超音波検出の用途ではP(VDF-TrFE)薄膜の膜厚が増加するほど検出感度が向上するので、数 μm の比較的厚い試料の作製と正圧電特性の評価にも取り組んだ。

3. 研究の方法

強誘電体の負性静電容量に起因した急峻スイッチング特性の発現メカニズムについては、強誘電体/半導体ヘテロ構造の分極反転挙動を、強誘電体の分極反転モデルと半導体表面の電位と電界の関係式を連立させて数値計算することで解析した。コンビナトリアルスパッタ法の構築においてはBi系の強誘電体を中心に検討した。二つのスパッタリングターゲットに同時に電力を投入し製膜を行うことで、面内に組成傾斜した薄膜を作製した。P(VDF-TrFE)薄膜については、原料粉末を有機溶剤に溶解させた液をスピコーティングすることで作製した。

4. 研究成果

(1) FeFETにおける急峻スイッチング特性

本研究で開発した手法により誘電体/半導体ヘテロ構造の分極反転挙動を調べた。図1には上から順に、ヘテロ構造全体および強誘電体層への印加電圧、半導体表面の電位、強誘電体の電気変位(分極)および静電容量の時間依存性を示している。この結果から、強誘電体の分極反転と半導体のキャリアの蓄積反転の時定数の違いにより、非定常状態が生み出され、それが定常状態に遷

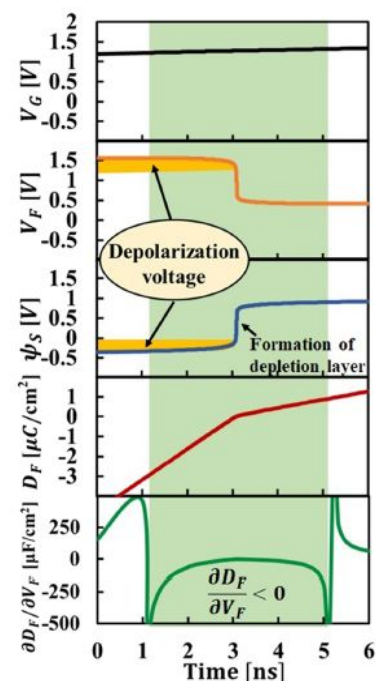


図1 スwitching特性の計算結果

移る過程で急峻スイッチングが発現する機構が見出された。図2には誘電体/半導体ヘテロ構造で出現する4つの代表的な分極状態を示している。電界と分極の揃った(a)は安定状態であるが、ここから電圧を減少させていくと上述の時定数の違いにより電界と分極の方向が反対になった(b)の状態となる。これは不安定状態であり、ある時点で(c)の状態へとナノ秒以下の短い時間で遷移している。この時に印加電圧が増加するのに反して分極が減少するので、負の静電容量が発現する。スイッチング特性を計算したところ 10mV/dec を下回る結果が得られた。実験的に確かめるには最先端の CMOS プロセスによる素子の試作が必要であるが、原理的に急峻なスイッチング特性が発現することを示すことができた。

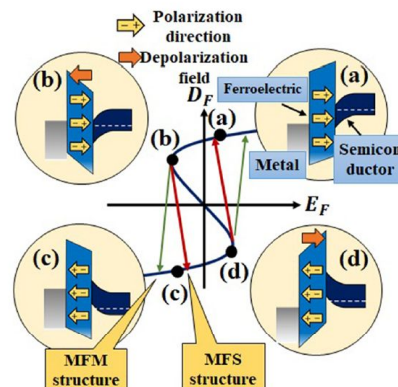


図2 急峻スイッチング特性の発現メカニズム

(2) コンビナトリアルスパッタ法による強誘電体薄膜の作製

強誘電体薄膜は2種類以上の金属元素で構成されており、最適組成の探索は容易ではない。さらに強誘電体は Pb や Bi 等の低融点金属を含むものが多く、製膜条件によってこれらの金属元素の再蒸発速度が変化するという課題もある。そこで本研究では神野らによって報告されているコンビナトリアルスパッタ法を用いて BiFeO₃ 薄膜の作製に取り組んだ。BiFeO₃ 薄膜は 100 程度の低い誘電率を有しており、高い超音波受信特性が期待できる。製膜の概略図を図3に示す。BiFeO₃ と Bi₂O₃ の二つのターゲットを用いることで、製膜条件によらず化学量論組成の試料が(a)~(e)のいずれかで得られる。従って組成変動の影響を排除した最適製膜条件の探索が可能になった。実験を行った結果、600 で製膜を行った試料において、最も高い-4.3C/m² の e_{31,f} 圧電定数が得られた。この温度より低温では、結晶粒の成長が不十分であるため内因的な圧電応答が低下し、また高温では粒成長が進みすぎて外因的な圧電応答が低下するため、最適な成長温度が出現することが明らかになった。

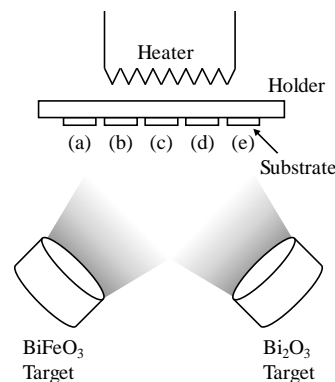


図3 コンビナトリアルスパッタ製膜の概略図

(3) 有機強誘電体薄膜の圧電特性評価

有機強誘電体である P(VDF-TrFE) は 10 程度の低い誘電率を有しており、超音波受信感度において重要である圧電 g 定数は無機強誘電体と同等である。一方で寄生静電容量の影響を受けやすく、その物性を利用することが難しいという課題を有している。本研究では FeFET に圧電体膜からの受信信号を直接入力する方法を検討しているため、寄生静電容量の影響が小さく P(VDF-TrFE) 薄膜を採用することも可能である。そこで塗布法を用いて 2 μm 程度の膜厚の試料を作製した。図4に飽和分極量および残留分極量の結晶化温度依存性を示す。P(VDF-TrFE) の融点付近である 140 で結晶化熱処理を行うことにより、特に大きな分極が得られることが明らかになった。試料に面内歪を加えて正圧電応答を測定する方法により、e_{31,f} 圧電定数を評価したところ、分極量の結晶化熱処理温度依存性に相関する結果が得られ、融点付近で結晶化熱処理を行うことが圧電特性の向上にも有効であることが示された。

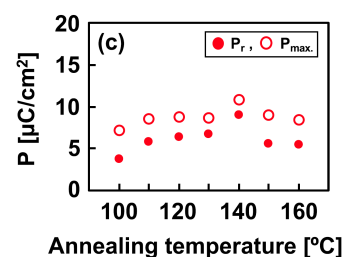


図4 分極量の結晶化温度依存性

5. 主な発表論文等

[雑誌論文](計5件)

K. Takada, T. Yoshimura, N. Fujimura,
Time-resolved Simulation of the Negative Capacitance Stage Emerging at the
Ferroelectric/Semiconductor Hetero-Junction,
AIP Advances 9, 025037, (2019).
<https://doi.org/10.1063/1.5075516>

鎌田 大輝, 高田 賢志, 吉村 武, 藤村 紀文,
(001) Si 基板直上への Y doped HfO₂ 薄膜のエピタキシャル成長,

材料,67, pp. 844-848 (2018).

https://www.jstage.jst.go.jp/article/jsms/67/9/67_844/_pdf

Y. Matsushita, I. Kanagawa, T. Yoshimura, N. Fujimura,
Direct piezoelectric response in vinylidene fluoride – trifluoroethylene copolymer films,
Japanese Journal of Applied Physics, Volume 57, Number 11S ,11UG01,1-4(2018),

T. Yoshimura, K. Kariya, N. Okamoto, M. Aramaki, N. Fujimura
Direct piezoelectric properties of BiFeO₃ epitaxial films grown by combinatorial sputtering
Journal of Physics: Conference Series 1052, 012020 (2018)
<https://doi.org/10.1088/1742-6596/1052/1/012020>

Jin Hong Choi, T. Yoshimura, and N. Fujimura,
Effects of (Bi_{1/2},Na_{1/2})TiO₃ on the electrical properties of BiFeO₃-based thin films,
Jpn. J. Appl. Phys. 55, 10TA17 (2016).
<http://doi.org/10.7567/JJAP.55.10TA17>

〔学会発表〕(計 15 件)

金川 いづる,松下 裕司,吉村 武,藤村 紀文
正圧電応答顕微鏡による P(VDF-TrFE)膜の圧電評価
第 66 回応用物理学会春季学術講演会(2019 年)
村瀬 幹生, 和泉 享兵, 吉村 武, 藤村 紀文
スパッタ法を用いた Si 基板上への PZT エピタキシャル薄膜の作製
第 66 回応用物理学会春季学術講演会(2019 年)
吉村 武

MEMS における圧電薄膜～基盤技術(物質開発・製膜・評価)から応用まで～,
第 31 回 MEMS 講習会・ORIST 技術セミナー (2019 年)

K. Takada, T. Yoshimura, N. Fujimura
Physical Nature of Negative Capacitance Emerged in Ferroelectric-gate FETs.
2018 MRS Fall Meeting, Materials Research Soc. Symposium (2018)

金川 いづる, 松下 裕司, 吉村 武, 藤村 紀文
P(VDF-TrFE)膜における $\epsilon_{31,f}$ 圧電定数の評価
第 79 回応用物理学会秋季学術講演会(2018 年)

高田 賢志, 吉村 武, 藤村 紀文
強誘電体/半導体ヘテロ接合における過渡的負性容量
第 79 回応用物理学会秋季学術講演会(2018 年)

K. Takada, D. Kiriya, T. Yoshimura, A. Atsushi, N. Fujimura
Emergence of the Negative Capacitance in Ferroelectric-gate FETs.
IFAAP2018 (2018)

Y. Matsushita, T. Yoshimura, N. Fujimura
Fabrication of μm -thick P (VDF-TrFE) Films and the Electrical Properties.
IFAAP2018 (2018)

松下 裕司, 吉村 武, 藤村 紀文
P(VDF-TrFE)厚膜の作製とその電気特性
第 65 回応用物理学会 春季学術講演会 (2018 年)

高田 賢志, 桐谷 乃輔, 吉村 武, 芦田 淳, 藤村 紀文
強誘電体ゲート FET における負性容量発現機構
第 65 回応用物理学会 春季学術講演会 (2018 年)

T. Yoshimura, K. Kariya, and N. Fujimura
Observation of Ferroelectric Domain Structure by Direct Piezoelectric Effect
2017 Joint ISAF-IWATMD-PFM Conference (2017)

高田 賢志, 鎌田 大輝, 金屋 良輔, 桐谷 乃輔, 吉村 武, 藤村 紀文
二元同時スパッタ法による強誘電性 Hf_xZr_{1-x}O₂/Si ヘテロ構造の作製
第 78 回応用物理学会秋季学術講演会 (2017 年)

T. Yoshimura, K. Kariya, N. Okamoto, M. Aramaki and N. Fujimura
Direct Piezoelectric Properties of BiFeO₃ Epitaxial Films Grown by Combinatorial Sputtering
The 17th International Conference on Micro and Nanotechnology for Power Generation and Energy
Conversion Applications (Power MEMS 2017) (2017)

Takeshi Yoshimura
Investigation of Domain Wall Contributions on the Piezoelectric Properties of BiFeO₃ films
18th US-Japan Conference (2017)

Jin Hong Choi, Takeshi Yoshimura, and Norifumi Fujimura

Synthesis and piezoelectric properties of $\text{BiFeO}_3\text{-(Bi}_{1/2}\text{Na}_{1/2})\text{TiO}_3$ thin films.
11th Korea-Japan Conference on Ferroelectrics (2016)

〔図書〕(計 0件)

〔産業財産権〕

出願状況(計 0件)

名称：
発明者：
権利者：
種類：
番号：
出願年：
国内外の別：

取得状況(計 0件)

名称：
発明者：
権利者：
種類：
番号：
取得年：
国内外の別：

〔その他〕

ホームページ等

6. 研究組織

(1) 研究分担者

研究分担者氏名：

ローマ字氏名：

所属研究機関名：

部局名：

職名：

研究者番号(8桁)：

(2) 研究協力者

研究協力者氏名：

ローマ字氏名：

科研費による研究は、研究者の自覚と責任において実施するものです。そのため、研究の実施や研究成果の公表等については、国の要請等に基づくものではなく、その研究成果に関する見解や責任は、研究者個人に帰属されます。