

**科学研究費助成事業 研究成果報告書**

平成 27 年 6 月 25 日現在

機関番号：82626

研究種目：若手研究(B)

研究期間：2013～2014

課題番号：25820339

研究課題名(和文) Wakeupによる圧電MEMS用PZT薄膜の圧電特性向上

研究課題名(英文) Improvement of piezoelectric property of PZT thin films for MEMS by wakeup

## 研究代表者

小林 健 (Kobayashi, Takeshi)

独立行政法人産業技術総合研究所・集積マイクロシステム研究センター・主任研究員

研究者番号：20415681

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 3,300,000円

研究成果の概要(和文)：本研究ではこのwakeupについて、現象の解明から、条件の最適化を経て、圧電MEMS作製プロセスへの導入までを検討し、圧電薄膜の特性向上のための新たに普遍的な手法を確立することを目的とした。テトラ組成、MPB組成いずれの場合も、パルスポーリングによって、DCポーリングよりも高い圧電定数が得られることが明らかになった。また、MPB組成については、テトラ組成の場合と異なりユニポーラパルスポーリングがwakeupさせるには必須であることが新たに見出された。パルスポーリングによるwakeupはプロセス完了後に行う方が、高い圧電定数を得るのに有効であることが明らかになった。

研究成果の概要(英文)：We have investigated the influence of pulse poling on the piezoelectric property of  $\text{Pb}(\text{Zr}_{0.52}\text{Ti}_{0.48})\text{O}_3$  (PZT) thin films. 1.9- $\mu\text{m}$ -thick PZT thin films were deposited by sol-gel method and fabricated into microelectromechanical systems (MEMS) based piezoelectric microcantilevers. 1 kHz of unipolar or bipolar triangle pulse wave between 30-100 V was applied to the PZT thin films. The effective piezoelectric constant  $d_{31}$ , under small signal actuation at 1-3 Vpp, was estimated from the tip displacement of the piezoelectric microcantilevers. The highest piezoelectric constant  $|d_{31}|$  as high as 105 pm/V has been obtained by downward unipolar pulse poling at 100 V.

研究分野：無機材料・物性

キーワード：圧電 薄膜 ポーリング P Z T M E M S

(1)研究開始当初の背景

研究開始当初、PZT 薄膜を用いたマイクロ静電気センサ、無線センサ起動スイッチの量産試作に取り組んでいた。その際、量産試作において強誘電、圧電特性の面内均一性向上のために、テトラ組成( $Zr/Ti = 30/70$ )の PZT 薄膜 1 $\mu\text{m}$  あたりに 30V 以上の交流電圧印加を行っていたが、これにより PZT 薄膜があたかも目覚めるかのように強誘電、圧電特性自体が向上することを偶然見出した。このような現象については、舟窪らの MOCVD-テトラ組成 PZT 薄膜 (Nakajima et al. APL 2010) や岡村らのゾルゲル SBT 薄膜 (Okamura et al. JJAP 2000) についての報告されているが、現象の微視的解明にとどまっていた。

(2)研究の目的

そこで本研究ではこの wakeup について、現象の解明から、条件の最適化を経て、圧電 MEMS 作製プロセスへの導入までを検討し、圧電薄膜の特性向上のための新たに普遍的な手法を確立することを目的とした。

(3)研究の方法

wakeup した様々な組成の PZT 薄膜の微細構造解析による現象の解明

はじめにシリコン基板上の PZT 薄膜について調べ基礎データを取得する。シリコン基板上にテトラ、MPB、ロンボと代表的な組成の PZT 薄膜 (膜厚 1 $\mu\text{m}$  程度) をゾルゲル法により形成する。ゾルゲル法において、熱分解温度、結晶化 RTA の昇温条件を変えることで (100)/(001)、(111)、ランダム配向の PZT 薄膜をそれぞれ作製する。この配向制御については申請者は既に確立している (Kobayashi et al. Thin Solid Films 2005)。

これらの PZT 薄膜について、標準的な条件で (1kHz の三角波及び正弦波、1 $\mu\text{m}$  あたり 30V) wakeup し、様々な組成、配向性のシリコン基板上 PZT 薄膜の強誘電特性、圧電特性に与える影響を比較する。圧電特性については既存のダブルビームレーザー干渉計を備えた特性評価装置により、基板上の PZT 薄膜の圧電定数  $d_{33}$  を直接評価する。Wakeup 前後の PZT 薄膜の微細構造を XRD、ラマン分光、TEM などを用いて調べ、PZT 薄膜の組成や配向性と強誘電、圧電特性との関係を明らかにする。

電圧、周波数、波形など wakeup 条件の最適化

続いて wakeup 条件の最適化を行う。電圧、周波数、印加サイクル数を様々に変えて調べるほか、三角波、正弦波以外にパルス、矩形、鋸波など様々な波形を検討し、圧電特性が最も向上するような wakeup 条件を見出す。この段階では(1)同様にシリコン基板上の PZT 薄膜を用いて評価する。組成、配向性については実用上重要なテトラ、MPB 組成で (100)/(001) 配向の PZT 薄膜を中心に調べる。

wakeup の作製プロセスへの導入と、特性の面内均一性、信頼性への影響評価

ここまでの結果を基礎に、マイクロ静電気センサ、無線センサ端末起動スイッチなど申請者が量産試作を行っている圧電 MEMS デバイスの作製プロセスに wakeup を導入する。プロセスの途中、あるいはチップ完成後、どの段階で wakeup したら良いかを決定する。

(4)研究成果

wakeup した様々な組成の PZT 薄膜の微細構造解析による現象の解明

電圧、周波数、波形など wakeup 条件の最適化

現象の解明と条件の最適化を並行して行った。Wakeup の条件を最適化するため、また DC ポーリングと比較するために図 1 に示すような、DC ポーリング、バイポーラパルスポーリング、ユニポーラパルスポーリングを検討した。

これらの条件で、MEMS マイクロカンチレバー状に集積化された、テトラ、MPB 組成の (100)/(001) 配向 PZT 薄膜を wakeup した。図 2 に MEMS マイクロカンチレバーの変位から見積もった圧電定数  $d_{31}$  のポーリング電圧依存性を示す。

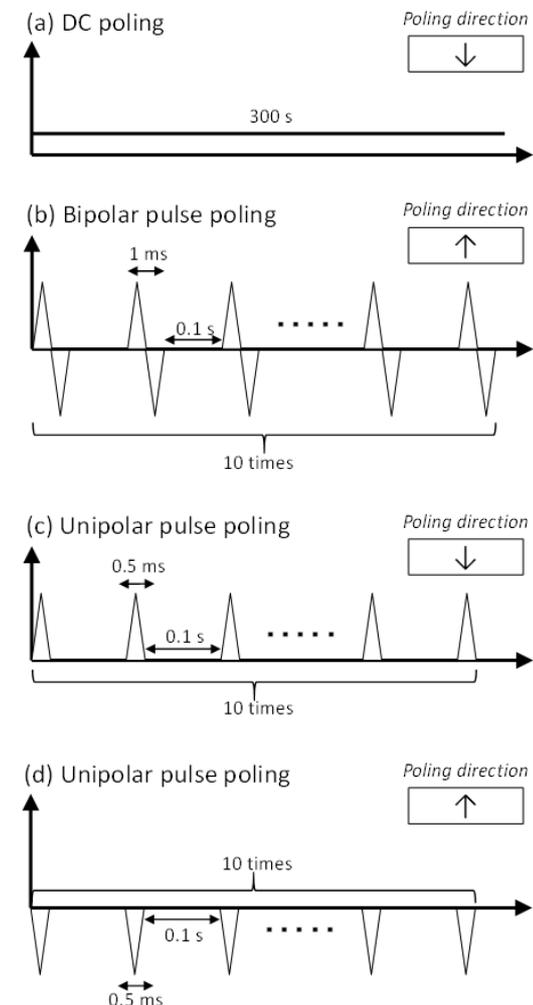


図 1. wakeup 条件最適化のための、印可電圧波形。

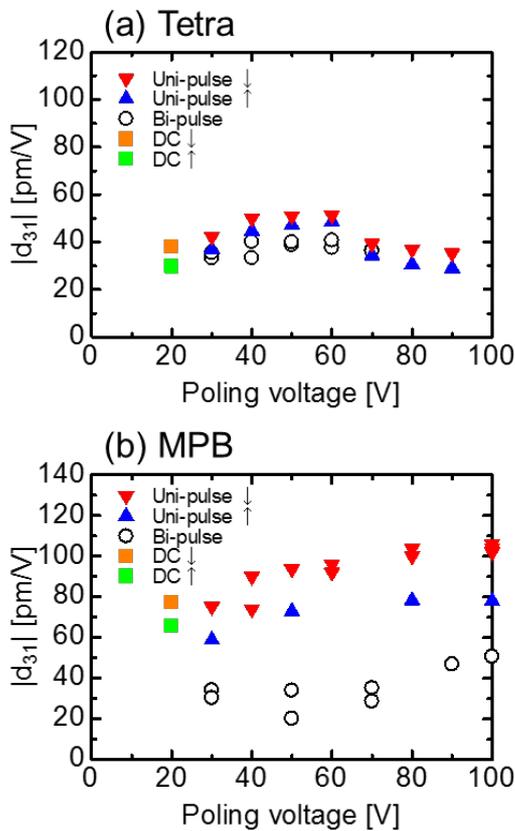


図 2. MEMS マイクロカンチレバー上に集積化されたテトラ組成、MPB 組成。

テトラ組成、MPB 組成いずれの場合も、パルスポーリングによって、DC ポーリングよりも高い圧電定数が得られることが明らかになった。すなわち、パルスポーリングによって、処理時間を 1 秒以下と大幅に短縮しながら、高い圧電定数が得られることが明らかとなった。また、MPB 組成については、テトラ組成の場合と異なりユニポーラパルスポーリングが wakeup させるには必須であることが新たに見出された。

パルスポーリングによる wakeup の現象を解明するために、XRD による微細構造解析を行った。その結果、一定電圧以上のパルスポーリングによって、c 軸配向性が向上していることが分かった (図 3)。また、その c 軸配向性の向上は、下部電極側の PZT 薄膜のドメイン微細化によるものであることが断面 TEM 解析により分かった (図 4)。

#### wakeup の作製プロセスへの導入と、特性の面内均一性、信頼性への影響評価

圧電 MEMS プロセスの途中、あるいはチップ完成後、どの段階で wakeup したら良いかを決定するために、貫通エッチング前、プロセス完了後にそれぞれパルスポーリングした MPB 組成の PZT 薄膜の圧電定数  $d_{31}$  を評価した。

貫通エッチング前にポーリングした場合の  $d_{31}$  は 66-112pm/V であるのに対して、

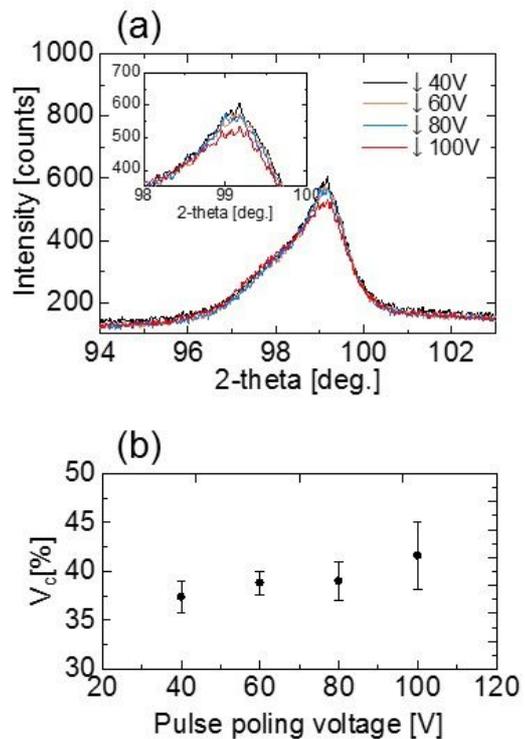


図 3. パルスポーリングした MEMS マイクロカンチレバー上 PZT 薄膜の XRD 図形と c 軸配向性のパルスポーリング電圧依存性。

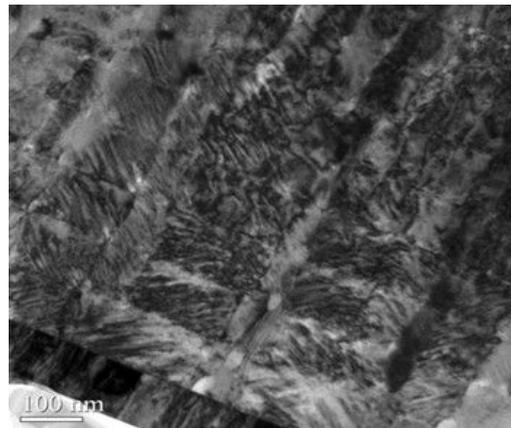


図 4. 下部電極側の PZT 薄膜において見られたドメイン微細化。

プロセス完了後の場合は 125-150pm/V であった。貫通エッチング前のパルスポーリングは、基板が存在する状態のためにポーリング後は c 軸配向性が大幅に向上した。しかしながら、貫通エッチングにより構造体ガリリリースされた際の応力開放により、c 軸配向性がそこから低下した。これにより生じたドメイン構造の乱れが、圧電定数に影響を与えたと考えられる。以上の結果から、パルスポーリングによる wakeup はプロセス完了後に行う方が、高い圧電定数を得るのに有効であることが明らかになった。

## 得られた成果の国内外における位置づけとインパクトと今後の展望

得られた成果発表について、国際学術論文誌2報に成果発表するだけでなく、精密工学会、日本セラミックス協会、応用物理学会、CIMTEC 国際学会において招待講演を依頼される、MEMS 分野の著名な学会である Transducers の 2013 年開催（採択率 40%）、MEMS の 2015 年開催（採択率 35%）に採択されると、材料分野、MEMS 分野いずれからも高い評価が得られている。

今回確立したパルスポーリングによる wakeup は、共同研究企業のデバイス開発にすでに適用されており、それだけにとどまらず他の研究機関、民間企業が作製した PZT 薄膜においてもその効果が確認されている。すなわち、申請時に宣言した「圧電薄膜の特性を向上させるための新たに普遍的な手法を確立する。」という目的はほぼ達成することができている。今後は PZT 薄膜だけでなく、他の強誘電体薄膜にも本方法を適用し、圧電特性を向上させるプロセスとして広く普及していきたいと考えている。

### (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 8 件)

(1) Impact of pulse poling on static and dynamic ferroelastic-domain contributions in tetragonal  $\text{Pb}(\text{Ti}, \text{Zr})\text{O}_3$  films determined by in-situ x-ray diffraction analysis, 中島 光雅、和田 亜由美、山田 智明、江原 祥隆、小林 健、舟窪 浩, JOURNAL OF APPLIED PHYSICS, 116, pp.194102-, 2014/11  
DOI: 10.1063/1.4898321

(2) Influence of pulse poling on the piezoelectric property of  $\text{Pb}(\text{Zr}_{0.52}\text{Ti}_{0.48})\text{O}_3$  thin films, 小林 健、鈴木 靖弘、牧本 なつみ、舟窪 浩、前田 龍太郎, AIP ADVANCES, 4, pp.117116, 2014/11  
DOI: 10.1063/1.4901912

(3) A piezoelectric cantilever with a Helmholtz resonator as a sound pressure sensor, 富松 大、高橋 英俊、小林 健、松本 潔、下山 勲、伊藤 寿浩、前田 龍太郎, JOURNAL OF MICROMECHANICS AND MICROENGINEERING, 23, pp.114003-, 2013/10  
DOI: 10.1088/0960-1317/23/11/114003

(4) Effects of Bipolar Pulse Poling on the Ferroelectric and Piezoelectric Properties of Tetragonal Composition  $\text{Pb}(\text{Zr}_{0.3}\text{Ti}_{0.7})\text{O}_3$  Thin Films on Microelectromechanical Systems Microcantilevers, 小林 健、牧本 なつみ、

鈴木 靖弘、舟窪 浩、及川 貴弘、和田 亜由美、前田 龍太郎, JAPANESE JOURNAL OF APPLIED PHYSICS, 52, pp.09KA01-1-09KA01-6, 2013/09  
DOI: 10.7567/JJAP.52.09KA01

〔学会発表〕(計 13 件)

(1) (招待講演) 小林 健、牧本 なつみ、岡田 浩尚、高松 誠一、鈴木 靖弘、伊藤 寿浩、前田 龍太郎, 強誘電体薄膜の圧電 MEMS への応用, 第 62 回応用物理学会学術講演会, 2015/03/12, 東海大学 (神奈川県・平塚市)

(2) 小林 健、鈴木 靖弘、牧本 なつみ、舟窪 浩、前田 龍太郎, PULSE POLING WITHIN 1 SECOND ENHANCE THE PIEZOELECTRIC PROPERTY OF PZT THIN FILMS, The 28th IEEE International Conference on Micro Electro Mechanical Systems (MEMS2015), 2015/01/25, エストリス (ポルトガル)

(3) (招待講演) 小林 健、牧本 なつみ、鈴木 靖弘、舟窪 浩、伊藤 寿浩、前田 龍太郎, 圧電 MEMS デバイス上に集積化した PZT 薄膜の圧電特性, 日本セラミックス協会第 27 回秋季シンポジウム, 2014/09/09, 鹿児島大学 (鹿児島県・鹿児島市)

(4) (招待講演) 小林 健、鈴木 靖弘、牧本 なつみ、伊藤 寿浩、前田 龍太郎、舟窪 浩, Comparison of output voltage and power generated from tetragonal and MPB composition PZT thin films integrated on piezoelectric microcantilevers with proof mass, 13th International Conference on Modern Materials and Technologies, 2014/06/12, モンテカティーニテルメ (イタリア)

(5) (招待講演) 小林 健, 商業化に向けた圧電 MEMS デバイスの研究開発, 精密工学会 2014 年度春季大会, 2014/03/18, 東京大学 (東京都・文京区)

(6) 小林 健、牧本 なつみ、舟窪 浩、及川 貴弘、和田 亜由美、伊藤 寿浩、前田 龍太郎、  
ENHANCED PERFORMANCE OF SENSOR/ACTUATOR  
INTEGRATED PIEZOELECTRIC MICROCANTILEVER  
BY USING TETRAGONAL COMPOSITON PZT THIN  
FILMS , The 17th International Conference  
on Solid-State Sensors, Actuators and  
Microsystems , 2013/06/18 , バルセロナ (ス  
페인)

〔図書〕(計 0 件)

〔産業財産権〕

出願状況(計 3 件)

名称：センサ装置及びその製造方法

発明者：小林健(40)、高松誠一(50)、伊藤寿浩(10)

権利者：産業技術総合研究所

種類：特許

番号：特願 2014-177023

出願年月日：2014/09/01

国内外の別：国内

名称：電子デバイス及びその製造方法

発明者：小林健(80)、伊藤寿浩(20)

権利者：産業技術総合研究所

種類：特許

番号：特願 2014-162591

出願年月日：2014/08/11

国内外の別：国内

名称：圧電 MEMS デバイス及びその製造方法

発明者：小林健(50)、鈴木靖弘(10)、牧本なつみ(10)、前田龍太郎(5)、伊藤寿浩(3)、亀井利浩(2)、舟窪 浩(20)

権利者：産業技術総合研究所

種類：特許

番号：特願 2014-033068

出願年月日：2014/02/24

国内外の別：国内

取得状況(計 0 件)

〔その他〕

ホームページ等

(6)研究組織

研究代表者

小林 健 (KOBAYASHI, Takeshi)

産業技術総合研究所・集積マイクロシステム

研究センター・主任研究員

研究者番号：20415681

研究分担者

( )

研究者番号：

連携研究者

( )

研究者番号：

研究協力者

舟窪 浩 (FUNAKUBO, Hiroshi)

東京工業大学・総合理工学研究科・教授