

## 応力フリーPZT 圧電薄膜の In-Situ 結晶構造変化の観察 In-Situ Observation of Crystallographic Deformation of Stress-free PZT Piezoelectric Thin Films

譚(タン)ゴオン<sup>a</sup>, 丸山 和樹<sup>a</sup>, 西岡 慎太郎<sup>a</sup>, 金光 勇弥<sup>a</sup>, 神野 伊策<sup>a</sup>, 野村 幸治<sup>b</sup>  
Goon Tan<sup>a</sup>, Kazuki Maruyama<sup>a</sup>, Shintaro Nishioka<sup>a</sup>, Yuya Kanamitsu<sup>a</sup>, Isaku Kanno<sup>a</sup>, Koji Nomura<sup>b</sup>

<sup>a</sup>神戸大学, <sup>b</sup>(株)ローム  
<sup>a</sup>Kobe Univ., <sup>b</sup>ROHM Co., Ltd.

圧電薄膜の性能を最大限に引き出すために、圧電効果の起源を結晶学的に理解し、圧電特性を決定する結晶構造の主要因子の解明を目的とし、電圧印加下での圧電薄膜の結晶構造変化の調査を行った。基板上の薄膜は基板拘束の影響により結晶構造の変形が大きく阻害され、圧電効果を正確に捉えることが困難である。そこで、基板をエッチングで除去した PZT 薄膜に対して、DC 電圧を印加し、放射光に面内および面外の回折を測定した。その結果、特に面内方向において基板ありの時と比べて、約 2 倍大きな圧電定数をもつことが明らかになった。

**キーワード：** 圧電薄膜、電圧印加下でのその場観察、基板除去による応力フリー薄膜

### 背景と研究目的：

IoT の進展において圧電 MEMS デバイスの産業応用の拡大が求められている。代表的な圧電材料である PZT 圧電薄膜は、これまでにインクジェットプリンターヘッド、MEMS ジャイロセンサ、また HDD の精密アクチュエータとして搭載されるなど、その実用化分野は広範囲に渡る[1, 2]。本研究において、圧電薄膜の性能を最大限に引き出すために、圧電効果の起源を結晶学的に理解すると同時に、圧電特性を決定する結晶構造の主要因子を解明することを目的としている。前回の測定では、基板上に成膜した PZT 薄膜に DC 電圧を印加し、面内・面外の結晶構造を放射光により精密に計測できることを実証した。一方、基板上の薄膜は基板拘束の影響により結晶構造の変形が大きく阻害され、圧電効果を正確に捉えることが困難であることが明らかになった。そこで今回は、PZT 薄膜にエポキシ樹脂を用いてガラス基板上に転写し、MgO 基板をウェットエッチングで除去することによって、ほぼ完全に基板束縛から開放された状態の薄膜の結晶構造解析を行った。

### 実験：

**試料：** スパッタ法により作製した Pt 電極付き c 軸配向エピタキシャル PZT 薄膜 (Zr/Ti 比=53/47) に対し、エポキシ樹脂を用いて電極付きガラス基板上に転写し、その後 MgO 基板をウェットエッチングにより下部電極が露出するまで除去した。PZT 薄膜部分は 1 cm 角の大きさとなっている。  
**実験条件：** ビームライン BL19B2 の多軸回折計を用いた。試料の電極部分に銀ペーストより固定した金ワイヤを外部から指定した DC 電圧を印加しながら、面外および面内での X 線回折測定を行った。X 線エネルギーは 12.4 keV (波長：0.1 nm) とし、測定する PZT 反射の指数は、400 または 004、300 または 003 とした。基板や薄膜のピークで軸調整を行った後、測定対象ピーク付近の角度で、DC 電圧を 0 V から約 20 V までの範囲で正負両バイアスの電圧印加を行いながら、スキャンを行った。

### 結果および考察：

図 1 に、様々な電圧印加下における MgO 基板除去した P(Zr<sub>0.53</sub>Ti<sub>0.47</sub>)O<sub>3</sub> 転写膜の XRD 面外測定を示す。PZT 004 ピークにおいて、負バイアスでの低角側シフトおよび正バイアスでの高角側シフトが明瞭に確認できた。このとき同時にスキャンした Pt 400 ピークはシフトが見られなかったことから、測定した PZT のピークシフトは圧電薄膜の圧電効果によるものであることが確かめられた。図 2 より、面内測定でも PZT 300 の明確なピークシフトを確認した。それぞれのピーク位

置から格子長を算出し、電圧印加する前の格子長からの変化を格子ひずみとして、その電界依存性を調べた。図 3 に順方向(負バイアス)電界を印加したときの格子ひずみの電界依存性を示す。MgO(100)基板上的 PZT 薄膜に比べると、MgO 基板を除去した場合、面外方向での格子ひずみは電界印加に伴い少し増加しており、面内方向では格子ひずみがより大きく増加することが判明した。グラフの傾きから、圧電定数を見積もったところ、面外方向の圧電縦効果  $d_{33f}$  は 101 pm/V で、基板有りの場合の 78 pm/V と大きくなっていた。特に、面内方向の圧電横効果  $|d_{31f}|$  は 44 pm/V で、基板有りの場合の 28 pm/V に比べて約 2 倍ほど大きく増加することが明らかになった。この圧電定数の向上は、基板束縛から開放されたためだと考えられる。今後、詳細な応力状態については FEM で評価を行い、今回得られた結果と合わせて議論することで圧電特性向上の指針を明らかにしていく予定である。

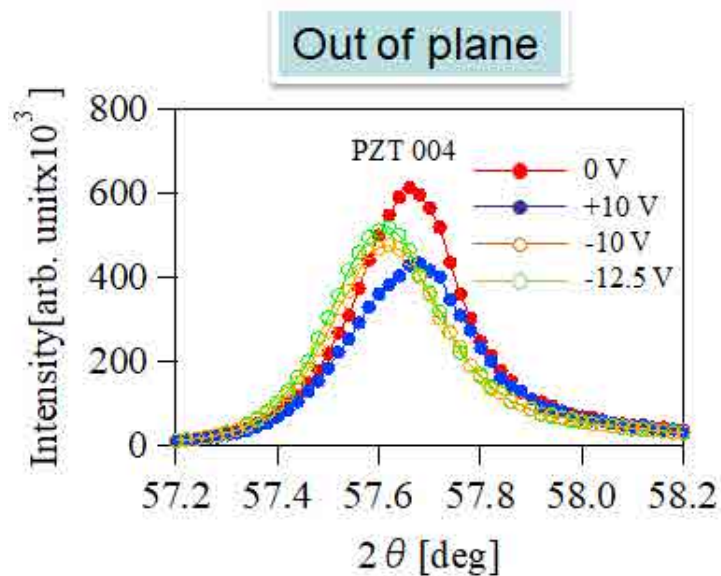


図 1. 各電圧印加下における MgO 基板除去した  $P(\text{Zr}_{0.53}\text{Ti}_{0.47})\text{O}_3$  転写膜の XRD 面外測定。

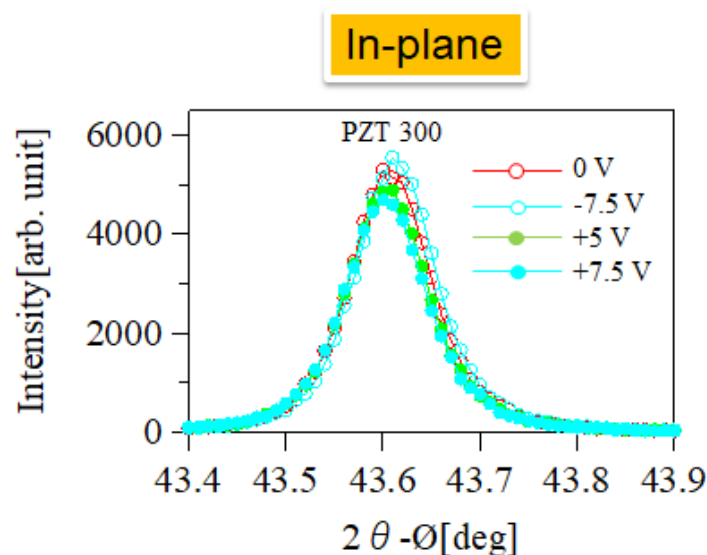


図 2. 各電圧印加下における MgO 基板除去した  $P(\text{Zr}_{0.53}\text{Ti}_{0.47})\text{O}_3$  転写膜の XRD 面内測定。

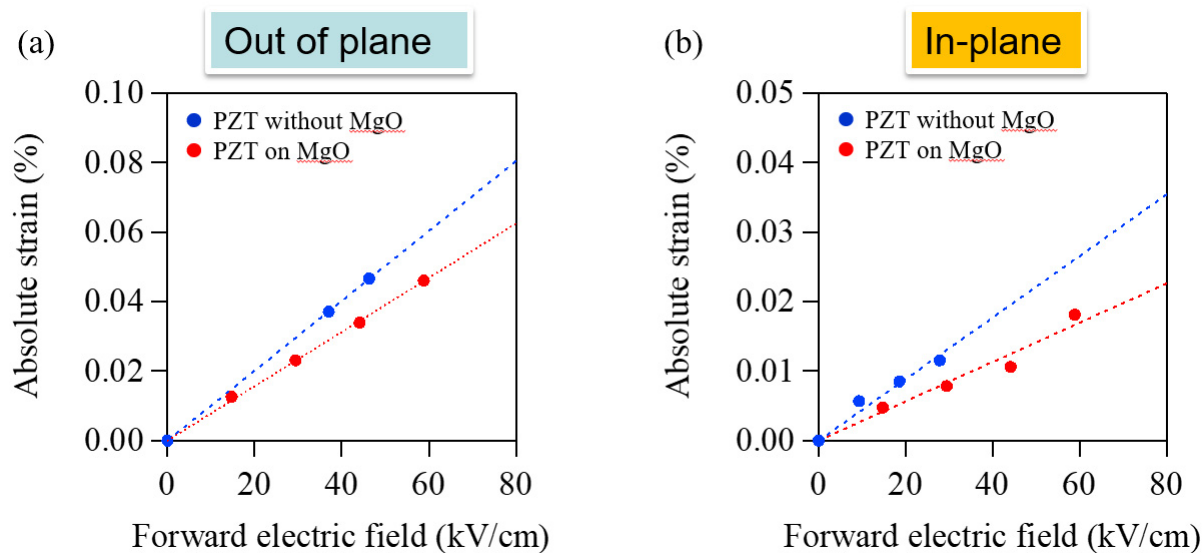


図 3. P(Zr<sub>0.53</sub>Ti<sub>0.47</sub>)O<sub>3</sub> 薄膜の基板有無における格子ひずみの電界依存性.  
(a)面外、および(b)面内の結果.

参考文献：

- [1] H. Funakubo *et al.*, *MRS Bull.* **37**, 1030 (2012).
- [2] S. G. Kim *et al.*, *MRS Bull.* **37**, 1039 (2012).