

論文の内容の要旨

論文題目「ペロブスカイト型圧電薄膜の圧電性向上を目的とした材料設計手法の開発」

学位申請者 八十田 穰

キーワード：MEMS 圧電薄膜 添加元素 ペロブスカイト 配向制御

微小領域における立体的な電気機械システムを構築する技術は MEMS (Micro Electro Mechanical Systems) 技術と呼ばれる。MEMS 技術の萌芽は半導体製造技術が普及した 1960 年代に端を発し、超小型の圧力センサをはじめとし種々の物理センサデバイスが自動車業界を中心に開発・実用化されていった。そして 1980 年代になると 3 次元的な加工を実現する MEMS 独自の微細加工技術が開発され、歯車やマイクロモータといった立体的な機械構造を持つ MEMS デバイスが大きな注目を集めた。さらに 1990 年代におけるカーナビゲーションや携帯電話などの小型、高機能な電子機器の普及により、その要素部品として MEMS デバイスは爆発的な普及を遂げた。また、近年においては医療分野への応用が注目されており、その寸法効果による施術の低侵襲化や微量・微小検体の測定が期待されている。医療用 MEMS デバイスの顕著な特徴としては、自身の駆動のみならず人体や検体に物理的に作用する事が挙げられる。したがって MEMS の医療応用においては従来の MEMS デバイスと比較してよりアクチュエータが重要な要素となる事を意味しており、その実現には既存の MEMS アクチュエータのさらなる性能向上が必要とされている。

代表的な MEMS アクチュエータとして圧電アクチュエータ、SMA (Shape Memory Alloy) アクチュエータ、静電アクチュエータが存在している。この中で圧電材料による圧電アクチュエータは実装が容易なことに加え、高い発生力と応答性を併せ持つことから医療用 MEMS デバイスのアクチュエータとして適している。圧電材料としてはその高い性能からチタン酸バリウム (BTO) やチタン酸ジルコン酸鉛 (PZT) といったペロブスカイト型の圧電材料が広く用いられているが、これらの材料には MEMS 微細加工過程における薄膜化により圧電性が低下し、駆動変位の性能指標である圧電 d 定数が大きく低下するといった問題が存在する。そのような背景から、ペロブスカイト型圧電薄膜の性能向上は広く試みられており、代表的な手法としては結晶の成長方向を制御し圧電材料の結晶配列を 1 方向に揃えることで性能を向上させる配向制御によるものと、添加元素により圧電材料自体の性能向上を図るものが存在している。しかし、結晶配向制御においては基材が薄膜の結晶構造に近似し、高配向、理想的には単結晶である必要があるなど、適用できる範囲が限定されるといった問題が存在する。また、添加元素においては、その探索において候補となる元素を場当たり的に試行錯誤する経験的手法が主流であり、多様に存在するペロブスカイト型圧電材料間においてその知見を共有できないといった問題が存在する。

そこで本研究では、これらの問題を解決するペロブスカイト圧電薄膜の新たな性能向上手法として、基材材料を限定しない結晶成長予測手法、ならびに定量的な添加元素の探索手法を開発することを目的とする。

本論文は全 5 章より構成され、以下にその要旨を示す。

第 1 章は序論であり本研究の置かれた背景、ならびに MEMS アクチュエータを構成する材料としての圧電薄膜における課題について述べた。また、それらに対する従来研究を紹介し、本研究との相違点を明らかにすると共にその必要性を示した。

第 2 章は配向制御による圧電薄膜性能向上において、従来結晶成長予測に用いられている結晶構造と格子定数による基材-薄膜間の格子不整合率に代わるものとして、接合面内すべての原子を対象とした格子接点シミュレーションの開発を行った。このシミュレーションは基材と薄膜の結晶構造に依存しないため多結晶や異種結晶を対象に結晶成長の予測が可能となる。シミュレーションでは重ねあわされた基材原子と薄膜原子の 2 次元配列において、任意の基材原子を中心とし薄膜原子配列を回転させ、基材原子と薄膜原子が一定の誤差内で一致する点を計数した。この時、一致する点は基材-薄膜間の原子接点とし、最も接点数の大きくなった回転角度において薄膜が優先成長すると定義した。そして、薄膜の主要面方位に対して同様の計算を行い、最も接点数の多かった方位を相対的な薄膜の優先成長方位として決定した。そして、実際にスパッタリング法により基材上で成長させた薄膜において、シミュレーションと同様の優先成長方位、および面内回転角度を確認したことからその有効性を確認した。さらに、実際の圧電薄膜への応用として、BTO 薄膜の成膜を行い、その一般的な基材薄膜である Pt に代わる材料として Ir をシミュレーションから決定し、実際にスパッタリング法で成膜された BTO 薄膜においてその駆動変位の向上を確認した。

第 3 章は圧電薄膜性能向上のためのもう一つのアプローチである添加元素による圧電材料自体の高機能化において、その選定における定量的評価手法を開発した。その際、定量性を担保するため、材料の原子構造から電子計算により物性を決定可能な第一原理計算を用い、BTO の B サイトを対象に添加元素の候補を添加し圧電性への影響を評価した。圧電性向上の評価値は、圧電性の源である自発分極に直結する因子として結晶異方性に着目し、その多寡により圧電性を向上可能な元素を決定した。また、添加元素候補の選定にあたっては、圧電性の向上のみならず実際の創製を考慮するため、添加元素による B サイト置換の可否をその系の安定性の指標である凝集エネルギーより評価した。そして、選定された BTO の圧電性を向上可能な元素のうち、最も効果の大きかった Nb を添加した BTO 薄膜をスパッタリング法で創製し、実際の薄膜において Nb の B サイト置換、ならびに結晶異方性の向上を確認したことから、第一原理計算による添加元素探索手法の有効性を確認した。

第 4 章では、2 章、3 章で開発された 2 つのペロブスカイト型圧電薄膜性能向上手法を組み合わせ、高い圧電性を実現可能するペロブスカイト型圧電薄膜を創製した。対象の材料は BTO、および Nb を添加した BTO として、Ir 薄膜基材上にスパッタリング法で成膜を行った。そして成膜された圧電薄膜の電界-ひずみ応答から圧電定数を測定した結果、BTO 薄膜では圧電 d_{33} 定数が 7 pm/V であったのに対し、全く同じ条件で成膜された Nb 添加薄膜では 340 pm/V と大幅な圧電性向上を確認し、本研究で開発されたペロブスカイト型圧電薄膜の圧電性向上を目的とした材料設計手法の有効性を確認した。

第 5 章は結論であり、本研究の内容を総括した。

以上より本研究の目的であるペロブスカイト型圧電薄膜の圧電性向上を目的とした材料設計手法の開発は実際に達成され、当該手法を用いることで圧電薄膜の圧電性を大幅に向上させることが可能となる。これは、医療用 MEMS の実現のみならず、外的な作用を行う MEMS デバイス全般の実現において非常に有望な技術である。よって、本研究における成果は、今後 MEMS 技術のさらなる発展に際し大きく寄与するものと考えられる。