
ナノ高次構造制御による高機能マイクロマテリアルと μ TASシステムの創生

(12450102)

平成12年度～平成14年度 科学研究費補助金基盤研究(B)(2)

平成15年3月4日
研究代表者 小寺秀俊
(京都大学 大学院工学研究科 教授)

京都大学図書



9810056590

附属図書館

はしがき

研究代表者 小寺秀俊 (京都大学 大学院工学研究科 教授)

ナノ高次構造制御による高機能マイクロマテリアルと μ TASシステムの創生

(1 2 4 5 0 1 0 2)

年度	研究費	研究費	研究費
平成 12 年度	9,200	0	1,500
平成 13 年度	4,500	0	1,500
平成 14 年度	1,400	0	1,500
合計	15,100	0	4,500

研究発表

(1) 学会発表

1) 機械的ひずみによる PZT 薄膜の誘電率変化の制御に関する研究, 電気学会論文誌 E, 112, pp. 359-364 (2001)

平成 12 年度～平成 14 年度 科学研究費補助金基盤研究(B)(2)

2) A Study of TRIBOLOGY TRANZATIONS, Vol. 43,4, pp. 842-846

3) PIEZOELECTRIC PROPERTIES OF PZT THIN FILM, MICRO SYSTEM TECHNOLOGIES, pp. 229-235 (2001)

4) PIEZOELECTRIC PROPERTIES OF PZT THIN FILM, Materials Science for The 21st century, The Society of Materials Science, B, pp. 193-196 (2001)

5) S. Kawano, H. Shirataki, I. Katano, H. Kotera, Development of microarray based on instability of interface between two immiscible liquids, Micro total analysis systems 2002

平成 15 年 3 月 4 日

6) S. Yakushiji, I. Katano, S. Kawano, H. Kotera, BI-DIRECTIONAL VA, PIEZOELECTRIC MICRO-ARRAY ACTUATORS

研究代表者 小寺秀俊

(京都大学 大学院工学研究科 教授)

(2) 印刷発表等

1) 新宅博文, 川野藤枝, 神野伊登, 小寺秀俊, 界面不安定性を用いたマイクロミネーの発, 2003

2) 藤野寺俊輔, 神野伊登, 川野藤枝, 小寺秀俊, 進行波を用いた圧電マイクロメカニカルポンプの研究

(3) 出版書

は し が き

研究組織

研究代表者：小寺秀俊（京都大学 大学院工学研究科 教授）
研究分担者：島 進（京都大学 大学院工学研究科 教授）
鷲津正夫（東京大学 大学院工学系研究科教授）

交付決定金額（配分額）

（金額単位：千円）

	直接経費	間接経費	合計
平成 12 年度	9,200,	0	9,200,
平成 13 年度	4,500,	0	4,500,
平成 14 年度	1,400,	0	1,400,
総計	15,100,	0	15,100,

研究発表

（1）学会誌等

- 1) 機械的ひずみによる PZT 薄膜の誘電特性の制御に関する研究,電気学会論文誌 E,120-E, 12, pp.559-564,2000
- 2) A Study on the Effect of Air on the Dynamic Motion of a MEMS Device and Its Shape Optimization, TRIBOLOGY TRANZATIONS, Vol.43,4,pp.842-846
- 3) PIEZOELECTRIC PROPERTIES OF PZT THIN FILM, MICRO SYSTEM TECHNOLOGIES, pp.229-235,2001
- 4) PIEZOELECTRIC PROPERTIES OF PZT THIN FILM, Materials Science for The 21st century, The Society of Materials Science, B, pp.193-196,2001
- 5) S.Kawano, H.Shintaku,I,Kanno,H.Kotera, Development of micromixer based on instability of interface between two immiscible liquids, Micro total analysis systems 2002,pp.88-90,2002
- 6) S.Yakushiji,I.Kannno,S.Kawano,H.Kotera,BI-DIRECTIONAL VALVE-LESS MICROPUMP USING PIEZOELECTRIC MICRO-ARRAY ACTUATORS, Micro total analysis systems 2002,pp.148-150,2002

（2）口頭発表等

- 1) 新宅博文,川野聡恭,神野伊策,小寺秀俊,界面不安定性を用いたマイクロミキサーの発,2003
- 2) 薬師寺俊輔,神野伊策,川野聡恭,小寺秀俊,進行波を用いた圧電バルブレスマイクロポンプの研究

（3）出版物

本研究は「高次構造制御による高機能マイクロマテリアルと μ TASシステムの創生」と題して研究を実施した。通常のマイクロマシンプロセスでは、薄膜をPVDやCVDを用いて成膜しウェット・ドライの両エッチングにより所望の形状に加工することで、マイクロ構造およびマイクロ機構を作製する方法について研究を行っている。

従来のマイクロマシンプロセスでは、異なる薄膜材料の電気的特性や機械的特性を得るためには、材料に不純物を混ぜたりして材料組成を変えることが通常行われる。これはマイクロマシンプロセスにおいては個々に作製した部品を組み立てて、所望の機能を発揮する機構を作製することが困難であるためである。

そこで、本研究の第一の目的として、部品を組み合わせることなく、材料の分散を制御することにより所望の機械的特性を発揮することができるデバイスの創製方法について考案する。また、近年盛んに研究されているマイクロTASデバイスの基幹部品である、マイクロポンプをアクチュエータの配置を分散制御することにより開発した。さらに同様の考え方によりマイクロミキサーについても考察した。

マイクロマシンプロセスで用いる薄膜の機械的特性は、薄膜を作製する場合の温度条件による残留応力(常温に戻したときの内部応力)の影響を強く受ける。本研究の第二番目の目的として、薄膜の機械的特性の計測方法を考案するとともに、内部応力による圧電薄膜の電気的特性および機械的特性の変化について考察した。

第一章では、本研究が最終目的とする高次の構造制御方法の1つとして、構造制御による高機能マイクロデバイスを求めるために、まずマイクロ構造の動作特性に影響を及ぼす空気の影響を明らかにし、その上でマイクロマシンの動作特性を支配する方程式を求めた。そして、所望の動作特性を発揮する構造および材料特性の分布を、GAを用いた最適化理論と求めた支配法的式群を有限要素法を用いて求める手法を研究した。その結果、本研究が提案する方法が所望の機能を発揮するマイクロマシンの構造(材料分布を含む)を求めるために有効であることを、実験結果を用いて示した。本章では、第二章以降の研究成果を考慮した圧電材料を分布させた場合についても示し、本研究における成果を示した。

第二章は、マイクロマシンのアクチュエータとして一般的に用いられる圧電薄膜の圧電特性に及ぼす残留応力や負荷ひずみの影響を明らかにした。これは、一般的には成膜時の基板温度や成膜に用いるガスやターゲット材料の組成により作製する薄膜の電気的特性及び機械的特性を制御し、所望の薄膜材料を作製するのであるが、本研究では、明らかにした薄膜の特性を利用して成膜後に電気的特性および機械的特性を改変する方法について検討し、有効な方法を提案した。その結果を第一章の後半で述べた最適構造構築によるマイクロマテリアルの高機能化を材料レベルから実現する可能性を示した。

第三章および第四章においては、材料および構造を分散させることにより、近年マイクロマシンの応用分野として注目を集めているマイクロTASの基本デバイスであるマイクロポンプとマイクロミキサーの高機能化を上記の方法を基にした考え方により実現した。

1. 機関番号 1 4 3 0 1 2. 研究機関名 京 都 大 学

3. 研究種目名 基盤研究(B)(2) 4. 研究期間 平成 12 年度 ~ 平成 14 年度

5. 課題番号 1 2 4 5 0 1 0 2

6. 研究課題名 ナノ高次構造制御による高機能マイクロマテリアルとμTASシステムの創生

7. 研究代表者

研究者番号	研究代表者名	所属機関部局名	職名
2 0 2 5 2 4 7 1	こてら ひでとし 小寺 秀俊	工 学 研 究 科	教 授

8. 研究分担者 (所属機関名は、研究代表者の所属機関と異なる場合に記入すること)

研究者番号	研究分担者名	所属機関名・所属部局名	職名
7 0 0 2 6 1 6 0	しま すすむ 島 進	工 学 研 究 科	教 授
1 0 2 0 1 1 6 2	わしず まさお 鷺津 正夫	工 学 研 究 科 (現東京大学・大学院工学系研究科)	教 授

9. 研究実績の概要 (学術情報センターでデータベース化するため、600字~800字で記入。図、グラフは記載しないこと)

本研究では、ナノ構造を平面・立体で分布制御した構造を用いてこれまでにない、高機能のマイクロスマートマテリアルを創生することを目的とした。この高次構造は複雑であるため、達成しようとする機械的機能・動作特性を実現する構造・原理を機能を定義することにより自動的に求めるシミュレーション手法が必要であり、本研究ではナノ高次構造を求めるため、機能・特性を定義することで、それを実現するナノ高次構造を求めることができる解析システムを開発を目的のひとつとした、さらに、それを用いて新たなフレキシブルμTAS(Micro-Total-Analysis-System)の創製を試みた。

まずマイクロ構造の動作特性に影響を及ぼす空気の影響を明らかにし、その上でマイクロマシンの動作特性を支配する方程式を求めた。そして、所望の動作特性を発揮する構造および材料特性の分布を、GAを用いた最適化理論と求めた支配法的式群を有限要素法を用いて求める手法を研究した。その結果、本研究が提案する方法が所望の機能を発揮するマイクロマシンの構造(材料分布を含む)を求めるために有効であることを、実験結果を用いて示した。

また、マイクロマシンのアクチュエータとして一般的に用いられる圧電薄膜の圧電特性に及ぼす残留応力や負荷ひずみの影響を明らかにした。これは、一般的には成膜時の基板温度や成膜に用いるガスやターゲット材料の組成により作製する薄膜の電気的特性及び機械的特性を制御し、所望の薄膜材料を作製するのであるが、本研究では、明らかにした薄膜の特性を利用して成膜後に電気的特性および機械的特性を改変する方法について検討し、有効な方法を提案した。さらに、材料および構造を分散させることにより、近年マイクロマシンの応用分野として注目を集めているマイクロTASの基本デバイスであるマイクロポンプとマイクロミキサーの高機能化を上記の方法を基にした考え方により実現した。

※ 成果の公表を見合わせる必要がある場合は、その理由及び差し控え期間等を記入した資料(A4判縦長横書き1枚)を添付すること。

10. キーワード

- (1) MEMS
- (2) 機械的特性
- (3) マイクロポンプ
- (4) 材料分散
- (5) 樹脂
- (6) マイクロTAS
- (7)
- (8)

(裏面に続く)

11. 研究発表（発表予定も含む。但し、投稿中、投稿準備中は除く。）

[雑誌論文]

著者名	論文表題			
Hidetoshi Kotera	機械的ひずみによる PZT 薄膜の誘電特性の制御に関する研究			
雑誌名	巻	発行年		ページ
電気学会論文誌 E	120-E, 12	2	0 0 0	559-564

著者名	論文表題			
Hidetoshi Kotera	A Study on the Effect of Air on the Dynamic Motion of a MEMS Device and Its Shape Optimization			
雑誌名	巻	発行年		ページ
TRIBOLOGY TRANZCTIONS	Vol.43,4	2	0 0 0	842-846

著者名	論文表題			
Hidetoshi Kotera	PIEZOELECTRIC PROPERTIES OF PZT THIN FILM			
雑誌名	巻	発行年		ページ
MICRO SYSTEM TECHNOLOGIES	2001	2	0 0 1	229-235

著者名	論文表題			
Hidetoshi Kotera	PIEZOELECTRIC PROPERTIES OF PZT THIN FILM			
雑誌名	巻	発行年		ページ
Materials Science for The 21 st century, The Society of Materials Science	B	2	0 0 1	193-196

著者名	論文表題			
Hidetoshi Kotera	DEVELOPMENT OF MICROMIXER BASED ON INSTABILITY OF INTERFACE BETWEEN TWO IMMISCIBLE LIQUIDS			
雑誌名	巻	発行年		ページ
Micro total analysis systems 2002	2002	2	0 0 2	88-90

著者名	論文表題			
Hidetoshi Kotera	BI-DIRECTIONAL VALVE-LESS MICROPUMP USING PIEZOELECTRIC MICRO-ARRAY ACTUATORS			
雑誌名	巻	発行年		ページ
Micro total analysis systems 2002	2002	2	0 0 2	148-150

[図書]

著者名	出版者		
書名	発行年	総ページ	

12. 研究成果による工業所有権の出願・取得状況

工業所有権の名称	発明者	権利者	工業所有権の種類・番号	出願年月日	取得年月日

ABSTRACTS OF RESEARCH PROJECT, GRANT-IN-AID
FOR SCIENTIFIC RESEARCH (2002)

1. RESEARCH INSTITUTE NUMBER: 14301
2. RESEARCH INSTITUTION: KYOTO UNIVERSITY
3. CATEGORY Grant-In-Aid for Scientific Research B(2)
4. TERM OF PROJECT (2000-2002)
5. PROJECT NUMBER : 12450102
6. TITLE OF PROJECT: High performance Micro-Materials and micro-TAS by controlling high ordered Nano-Structures.
7. HEAD INVESTIGATOR REGISTERED NUMBER, NAME INSTITUTION, DEPARTMENT, TITLE OF POSITION
HIDETOSHI KOTERA 20252407 KYOTO UNIV., DEPT.OF MECHANICAL ENG., PROFESSOR
8. INVESTIGATORS REGISTERED NUMBER, NAME INSTITUTION, DEPARTMENT, TITLE OF POSITION
 - (1) SUSUMU SHIMA 70026160 KYOTO UNIV., DEPT.OF MECHANICAL ENG., PROFESSOR
 - (2) MASAO WASHIZU 10201162 KYOTO UNIV., DEPT.OF MECHANICAL ENG., PROFESSOR

9. SUMMARY OF RESEARCH RESULTS

In conventional method MEMS is produced by the photolithography process, such as PVD, CVD, dry etching and/or wet etching. Since it is hard to fabricate many parts to perform designed function in micro-meter order field, a novel method is necessary for MEMS. We focused on a photolithography process, we proposed a distribution of materials to realize a designed function for micro-pump and micro actuators.

A series of equation to simulate micro-membrane deflection is defined and a new simulation algorithm to simulate the material distribution that performs a designed function is proposed. Comparing the calculated results with experimental ones, the efficacy of the proposed method is discussed.

As example of proposed idea, bi-directional valve-less micro-pump using piezoelectric micro-array actuator and micro-mixer is fabricated.

As another method to perform a designed function, a modification of thin film after deposition is investigated. Since the electro-mechanical properties of PZT thin film is strongly depends on its internal stress, we have shown a possibility to modify PZT thin film properties by tensile stress and/or compression stress after deposition.

10. KEY WORDS

- | | | |
|---------------------------|-----------------------------------|-----------------------|
| (1) MEMS | (2) Mechanical properties | (3) tensile test |
| (4) Material distribution | (5) Thin film material properties | (6) Genetic algorithm |
| (7) micro-TAS | (8) Micro-pump | (9) Micro-mixer |

11. References

Authors , Title of Article	Journal, Volume-number, Pages concerned, Year
Taku Hirasawa, Toshihiro Yamamoto, Isaku Kanno, Hidetoshi Kotera, Susumu Shima, Hideo Torii, Ryoichi Takayama, A study of controlling of properties of PZT thin film	IEEJ, Vol. 120, No.12, pp.559-564,2001
Hidetoshi Kotera,Taku Hirasawa, Satoshi Senga, Susumu Shima,A Study on the Effect of Air on the Dynamic Motion of a MEMS Device and Its Shape Optimization	TRIBOLOGY TRANZATIONS, Vol.43,4,pp.842-846,2000
Taku Hirasawa, Toshihiro Yamamoto, Isaku Kanno, Hidetoshi Kotera, Susumu Shima, Hideo Torii, Ryoichi Takayama, PIEZOELECTRIC PROPERTIES OF PZT THIN FILM	MICRO SYSTEM TECHNOLOGIES, pp.229-235,2001
Taku Hirasawa, Toshihiro Yamamoto, Isaku Kanno, Hidetoshi Kotera, Susumu Shima, Hideo Torii, Ryoichi Takayama, PIEZOELECTRIC PROPERTIES OF PZT THIN FILM	Materials Science for The 21 st century, The Society of Materials Science, B, pp.193-196,2001
S.Kawano, H.Shintaku,I,Kanno,H.Kotera, Development of micromixer based on instability of interface between two immiscible liquids	Micro total analysis systems 2002,pp.88-90,2002
S.Yakushiji,I.Kannno,S.Kawano,H.Kotera,BI-DIRECTIONAL VALVE-LESS MICROPUMP USING PIEZOELECTRIC MICRO-ARRAY ACTUATORS	Micro total analysis systems 2002,pp.148-150,2002

目 次

第1章 MEMS における最適化設計	1
1.1 緒言	
1.2 ギャップ間の流体抵抗を考慮したメンブレンの動作解析	
1.3 特性の分布の最適化によるメンブレンの機械的特性制御	14
1.3.1 計算モデルと膜厚分布のコード化	
1.3.2 適応度の計算と個体の交配	
1.3.3 膜厚分布の最適化	
1.4 圧電性材料を用いたメンブレンの変形形状制御	26
1.5 結論	29
参考文献	
第2章 PZT 薄膜の圧電特性に及ぼす内部応力の影響(分布膜の基本特性)	34
2.1 緒言	
2.2 ステンレス基板上への PZT 薄膜の形成及びその特性	39
2.2.1 Pb(Zr _x Ti _{1-x})O ₃ (PZT) 薄膜の残留ひずみ	
2.2.2 ステンレス基板上に成長させた PZT 薄膜の結晶性	
2.3 PZT 薄膜における電気特性のひずみ依存性	50
2.3.1 はじめに	
2.3.2 誘電特性及び強誘電特性の残留ひずみ依存性	
2.3.3 誘電特性のひずみ依存性	
2.3.4 強誘電特性のひずみ依存性	
2.3.5 印加ひずみに対する結晶構造の変化	
2.4 結言	57
参考文献	
<PIEZOELECTRIC PROPERTIES OF PZT THIN FILM>	
第3章 圧電素子を分布させたメタマテリアルによる進行波ポンプの研究	65
3.1 緒言	
3.2 進行波型マイクロポンプの作製	
3.2.1 デバイスの基本構造と作製プロセス	68
3.2.2 進行波素子の動作原理	72
3.3 進行波及び液体搬送の測定	73
3.4 結言	
参考文献	
4章 分散構造によるマイクロミキサーに関する考察	92
4.1 緒言	
4.2 ケルビン・ヘルムホルツ不安定性理論による解析	
4.3 装置の製作と動作測定結果	98
装置の構造及び製作プロセス	
4.4 結言	100
参考文献	

第1章 MEMS における最適化設計

1.1 緒言

従来の機械部品は、有限要素法による構造解析をもとに部品形状の最適化が行われている。例えば、形状の最適化を行うことにより、部品の軽量化と強度の両立をはかるなど、特性を改善する為に、様々な最適化が行われている。一方、MEMS においては、薄膜の成膜条件や組成を変えらることによって材料特性を制御し、MEMS が必要とする特性の薄膜材料を開発する研究が中心であったが、J.Jonsmann らはトポロジーの最適化をして、外乱に影響を受けにくい変形を得る構造を得る方法を提案し、L.Yin らは面内変形をする構造を得ることができることを示している^{1),2)}。ことを示している。すなわち、MEMS においても最適化手法を取り入れることで、特性の向上や効率的な開発ができるようになる。

しかし、MEMS の場合には、部品のサイズが小さい為、ハンドリングが困難であり、さらに、部品をはめ合わせたり、接合したりすることが難しい。その為、従来の機械部品のように、最適化によって解析的に求めた複雑な部品形状を多数の部品を個別に作り、組合せて作製することができない。また、PVD や CVD による成膜やフォトリソグラフィ、エッチングなど MEMS 特有のプロセスが持つ量産性を生かす為には、部品の組合せるよりも簡単に機械的な動作特性を制御する方法を考案する必要がある。

多くの MEMS は薄膜を積層して作製したメンブレンが変形することによって機能している³⁾⁷⁾。為、複雑な形状の部品を作製しなくてもメンブレンの機械的特性を制御することができれば、多くの MEMS の設計に応用し、特性の改善を行うことができると考えられる。しかし、成膜条件や機械的な加工により薄膜の材料特性を改変することはできるが、薄膜全体が均一な特性のままでは、メンブレンの変形形状など動作時の特性は均一となる。一方、薄膜の特性を部分的に変化させると、均一な材料特性の場合では、実現できない機械的特性を持つメンブレンを作製することができる。

そこで、本研究では、メンブレンの特性を部分的に変えて機械的特性を制御することにより、MEMS の特性を改善する方法を開発する。薄膜の弾性定数や圧電定数などを部分的に改変したり、フォトリソグラフィによって部分的にパターンニングして、メンブレンの膜厚の異なる部分や駆動に用いる電極を配置したりすれば、メンブレンの特性を部分的に改変することができ、従来の MEMS の作製プロセスを応用して、容易に作製することができる。

1.2 ギャップ間の流体抵抗を考慮したメンブレンの動作解析

メンブレンの機械的特性の最適化を行う為には、メンブレンに加わる外力を計算し、メンブレンの変形挙動を解析的に解く必要がある。MEMS の部品も従来の機械部品同様に、空気や流体中で動作する場合は流体抵抗を受けるので、その動作を解析する為には、流体の影響を無視することはできない。例えば、初澤らは $100\mu\text{m}$ 角の静電駆動型ハーフミラーを用いた干渉型表示素子を 100Hz で動作させた場合に、空気の抵抗により位相の遅れが生じ、デバイスの高速化のための課題であると報告している⁸⁾。また、南らは、静電容量型加速度センサーの封止されたマイクロデ

デバイスにおいて、電極間のギャップを狭くするとスクイズ効果によるダンピングがデバイスの周波数特性に大きな影響を与えることを示した⁹⁾。このように、微小な部品を駆動する MEMS においては、流体抵抗が動作特性に影響を与える。流体抵抗には慣性力によるもの (Fig.1-1(a)参照) と粘性力によるもの (Fig.1-1(b)参照) の 2 種類があり、粘性の影響は物体表面のごく近傍に生じる境界層の中でのみ支配的であるので、通常、流体中を移動する物体は主に、Fig.1-1(a)のように物体が流体を押しよける慣性力によって抵抗を受ける。しかし、MEMS は薄膜を積層する作製方法や圧電効果や磁力、静電気力などの発生力を大きくする為、部品間の隙間が部品同士の向かい合う面の面積に比べて小さい構造をしており、隙間の大きさが変化するように動作するので、磁気テープや磁気ディスクなどと同様に、微小な隙間の粘性を持つ流体が押し出されるときに圧力が生じ、動作の抵抗となる (Fig.1-1(c)参照)。

マイクロミラー^{6),7)}やマイクロポンプ⁵⁾、加速度センサー⁴⁾、圧力センサー³⁾など様々な MEMS が開発されており、複雑形状の部品が静電気力や圧電効果、磁力など様々な方式で駆動しているが、本研究では、両持ち梁の薄膜を静電気力で駆動し、MEMS の部品同士の隙間における数十 μm から数 μm の厚さの空気が動作特性に与える影響を測定した。

1.2.1 マイクロアクチュエーターの作製と測定装置

Fig.1-2 は本研究で用いた長さ 3mm、幅 60 μm 、厚さ 0.72 μm の Al 薄膜で作製した両持ち梁が動作する静電駆動型マイクロアクチュエーターの形状である。Fig.1-3 にその作製方法を示す。ガラス基板に ITO (Indium Tin Oxide) を下部電極として成膜し、その上に絶縁膜として、厚さ 0.5 μm の SiO_2 をスパッタリングで成膜した。動作部分と上部電極を兼ねた Al 薄膜の両持ち梁を支持するためにポリイミドをスペーサーとして用いた。ポリイミド (東レ株式会社提供 UR-5100) をスピコートにより塗布し、真空高温炉を用いて、100 $^{\circ}\text{C}$ で 1 時間保持した後、350 $^{\circ}\text{C}$ で 4 時間加熱硬化した。硬化したポリイミドの厚さは 9 μm であった。ポリイミド上に厚さ 0.72 μm の Al 薄膜を Table 1-1 に示す条件で成膜した後、Al 薄膜を両持ち梁形状にエッチングした。両持ち梁下のポリイミドは Table 1-2 に示す条件でドライエッチングし、可動するようにした。Fig.5-4 は作製した静電駆動型マイクロアクチュエーターの SEM 像である。中央のメンブレン部分にねじれやたわみは観察されず、高さの分布は 0.1 μm 以下であった。

Fig.1-5 は動作中の Al 薄膜の変形形状を測定する装置である。大気中と減圧下における Al 薄膜の両持ち梁の動作特性を比較して空気の影響を調べる為に、アクチュエーターは減圧可能な容器内で駆動し、容器上部の石英ガラス部分からレーザードップラー振動計を用いて Al 薄膜の変形を測定した。

1.2.2 測定結果及び動作解析方法の提案

Fig.1-6 にマイクロアクチュエーターを大気中(100kPa)と減圧下(1Pa)で駆動した場合の印加電圧と Al 薄膜中央部の電極間距離の時間変化を示す。大気中で駆動した場合は、空気の抵抗のため、電極間距離が 2 μm になるところには減圧下 (1Pa) で駆動した場合に比べ、20 μsec 遅れが生じていた。特に電極間の距離が小さくなった場合に遅れが大きくなっている。

Al 薄膜と下部電極間に電圧 $V(t)$ を加えた場合、Al 薄膜の微小領域 $dx dy$ (Fig.1-7 参照) には、微小領域 $dx dy$ と下部電極との距離 h の 2 乗に反比例した式(1-1)の静電気力が作用する。

$$F = \frac{\varepsilon dx dy}{2} \left\{ \frac{V(t)}{h} \right\}^2 \quad (1-1)$$

ここで h は電極間距離、 dx は微小領域の長さ、 dy は微小領域の幅、 ε は誘電率、 $V(t)$ は印加電圧である。膜厚よりもたわみ量が多い場合、メンブレンの弾性変形に対する復元力 R は、曲げ変形よりも式(1-2)の面内変形によるものが支配的である。

$$R = Et_m dy \frac{\Delta x}{dx} \sin \theta \quad (1-2)$$

ここで、 E は縦弾性係数、 t_m は Al 薄膜の膜厚、 $\frac{\Delta x}{dx}$ は x 軸方向の Al 薄膜のひずみ、 θ は水平面と引張り応力の方向とがなす角である。また、空気の抵抗力 W は速度に比例すると仮定して、

$$W = C dx dy \frac{\partial h}{\partial t} \quad (1-3)$$

と近似した、ここで C は見かけの抗力係数として定義する。したがって微小領域 $dx dy$ に関する z 軸方向の運動方程式は

$$\rho t_m dx dy \frac{\partial^2 h}{\partial t^2} + C dx dy \frac{\partial h}{\partial t} + Et_m dy \frac{\Delta x}{dx} \sin \theta = - \frac{\varepsilon dx dy}{2} \left\{ \frac{V(t)}{h} \right\}^2 \quad (1-4)$$

となる。ここで ρ は微小領域 $dx dy$ の密度である。

一方、減圧下 (1Pa) において空気の影響がないとすると、式 (1-4) の第 2 項は 0 となり、次式となる。

$$\rho t_m dx dy \frac{\partial^2 h_0}{\partial t^2} + Et_m dy \frac{\Delta x_0}{dx} \sin \theta = - \frac{\varepsilon dx dy}{2} \left\{ \frac{V_0(t_0)}{h_0} \right\}^2 \quad (1-5)$$

メンブレンの張力による復元力は空気の影響を受けないので、(1-4) 式と (1-5) 式の差から、

$$\rho t_m dx dy \left(\frac{\partial^2 h}{\partial t^2} - \frac{\partial^2 h_0}{\partial t^2} \right) + C dx dy \frac{\partial h}{\partial t} + Et_m dy \left(\frac{\Delta x}{dx} - \frac{\Delta x_0}{dx} \right) \sin \theta = - \frac{\varepsilon dx dy}{2} \left[\left\{ \frac{V(t)}{h} \right\}^2 - \left\{ \frac{V_0(t_0)}{h'} \right\}^2 \right] \quad (1-6)$$

となる。

すなわち、作製した Al 薄膜と下部電極の間に電圧 $V(t)$ を加えた場合の大気中(100kPa)と減圧下(1Pa)における Al 薄膜の変形速度、加速度及び電極間距離をレーザードップラー振動計によって測定し、大気中で駆動した場合と減圧下で駆動した場合において、Al 薄膜が下部電極間から同じ高さを通る時の Al 薄膜の速度、加速度及びその時の印加電圧をそれぞれ式(1-7)に代入することで、空気の抗力係数 C を算出した。

$$C = - \frac{\rho t_m \left(\frac{\partial^2 h}{\partial t^2} - \frac{\partial^2 h_0}{\partial t^2} \right) + \frac{\varepsilon}{2} \left[\left\{ \frac{V(t)}{h} \right\}^2 - \left\{ \frac{V_0(t_0)}{h} \right\}^2 \right]}{\partial h / \partial t} \quad (1-7)$$

Fig. 1-8 に電極間距離と抗力係数 C の関係を示す。電極間距離が $4.4\mu\text{m}$ より小さい領域では、電極間距離が小さくなるにしたがって、抗力係数 C が大きくなっており、 $4.4\mu\text{m}$ より大きな領域では、電極間距離が変化しても抗力係数 C は一定の値となっている。面に垂直な方向に相対運動する 2 面間に挟まれた空気が、隙間から押し出される時に生じる力をレイノルズの式を用いて計算すると、式(1-8)の Al 薄膜の抗力係数 C_v を求めることができる (Fig.1-8 中の実線)。

$$C_v = \eta \frac{w^2}{h^3} \quad (1-8)$$

ここで、 h は電極間距離、 w は Al 薄膜の幅、 η は粘性係数である。電極間距離が $4.4\mu\text{m}$ より小さい領域では、実験により測定した抗力係数 C とレイノルズ式より求めた抗力係数 C_v はよく一致しており、大気中でアクチュエーターを駆動した時に生じる Al 薄膜の遅れは、スクイズ効果による空気の抵抗によって生じたと考えられる。一方、電極間距離が $4.4\mu\text{m}$ より大きな領域では、抗力係数 C はほぼ一定であるので、Al 薄膜が受ける空気抵抗は空気の慣性力によるものと考えられる。また、抗力係数 C は、駆動方法とは無関係であるので、本研究では、静電気力によって Al 薄膜を駆動し、測定を行ったが、圧電効果や磁力を用いたアクチュエーターの場合にも部品間の距離にしたがってスクイズ効果の影響が現れると考えられる。

Fig.1-9 は電圧の増加の速さを $0.5\text{V}/\mu\text{sec}$ 、 $1.0\text{V}/\mu\text{sec}$ 、 $1.5\text{V}/\mu\text{sec}$ 、 $2.0\text{V}/\mu\text{sec}$ とした場合のメンブレンの移動速度と電極間距離の関係である。電圧の増加の速さによって、Al 薄膜の移動速度は変化したが、抗力係数 C は Fig.1-10 に示すように Al 薄膜の移動速度、電極間距離による差はなかった。

また、Al 薄膜の幅を変えて同様に実験を行い、実験により測定した抗力係数 C とレイノルズの式より求めた抗力係数 C_v の比較を行った。スクイズ効果が支配的となる電極間距離に近い領域では、Al 薄膜の幅によらず、実験から求めた抗力係数 C とレイノルズの式から求めた抗力係数 C_v が一致した。しかし、Fig.1-11 に示すように、Al 薄膜の幅が広くなると、スクイズ効果が支配的となる電極間距離が遠くなった。

減圧下と大気中で駆動した時の Al 薄膜中央部断面 (Fig.1-12(a) 図中の A-A' 面) における変形形状を Fig.1-12 に示す。減圧下の場合、Al 薄膜はほぼ水平を保ったまま下部電極に接しているが、大気中で駆動した場合、Al 薄膜は電極間距離が $4\mu\text{m}$ 付近で、大きくねじれていた。これは、電極間距離が小さくなるに従い、空気の抵抗が急激に増加する為 Al 薄膜が傾き、空気を一方向に押し出す現象が生じた為と考えられる。さらに、下部電極に接した後も、Al 薄膜の中央がふくらんだ弓状の形状となっていた。これは、Al 薄膜と下部電極の間に空気が閉じ込められる為と考えられる。これらの結果から、薄膜が動作するような MEMS の数値解析を行う場合、磁気テープの走行解析や磁気ディスクの浮上変形解析を行う時と同様に、式(1-10)に示す内部の応力に関する平衡方程式と式(1-11)に示す曲げに関する平衡方程式に修正レイノルズ方程式を連成して解析する必要がある¹⁰⁾。修正レイノルズ方程式は、次式となる。

$$\left\{ \frac{\partial}{\partial x} \left(ph^2 \frac{\partial p}{\partial x} \right) + \frac{\partial}{\partial y} \left(ph^2 \frac{\partial p}{\partial y} \right) \right\} + 6\lambda_a p_a \left\{ \frac{\partial}{\partial x} \left(ph^2 \frac{\partial p}{\partial x} \right) + \frac{\partial}{\partial y} \left(ph^2 \frac{\partial p}{\partial y} \right) \right\} \quad (1-9)$$

$$= 6\mu_a \left\{ V_x \frac{\partial(ph)}{\partial x} + V_y \frac{\partial(ph)}{\partial y} \right\} + 12\mu_a \frac{\partial(ph)}{\partial t}$$

ここで、 h は MEMS の部品間の流体の厚さであり、 λ_a は流体分子の平均自由行程、 μ_a は流体の粘度、 t は時間、 V_x 、 V_y は薄膜の表面における流速である。また、薄膜の内部応力に関する平衡方程式は、

$$\frac{\partial \sigma_x}{\partial x} + \frac{\partial \tau_{xy}}{\partial y} + f_x = 0, \quad \frac{\partial \sigma_y}{\partial y} + \frac{\partial \tau_{yx}}{\partial x} + f_y = 0 \quad (1-10)$$

となり、ここで、 f_x 、 f_y は薄膜の表面に作用する物体力である。曲げに関する応力の平衡方程式は、部品間の流体の圧力 p を考慮して、次式のようになる、

$$D_{xx} \frac{\partial^4 w}{\partial x^4} + 2(D_{xy} + D_{ss}) \frac{\partial^4 w}{\partial x^2 \partial y^2} + D_{yy} \frac{\partial^4 w}{\partial y^4} - t_m \sigma_x \frac{\partial^2 w}{\partial x^2} - t_m \sigma_y \frac{\partial^2 w}{\partial y^2} = p - p_a + f_e + t_m \rho \frac{\partial^2 w}{\partial t^2} \quad (1-11)$$

ここで、 p_a は大気圧、 w は薄膜の垂直方向の変位、 ρ は薄膜の体積密度、 t_m は膜厚である。また、 D_{xx} 、 D_{xy} 、 D_{yy} 、 D_{ss} は直交異方性材料に関する曲げ剛性であり、次式で表される。

$$D_{yy} = \frac{E_y t_m^3}{12(1-\nu_x \nu_y)}, \quad D_{xx} = \frac{E_x t_m^3}{12(1-\nu_x \nu_y)}, \quad D_{xy} = \frac{(\nu_y E_x + \nu_x E_y) t_m^3}{24(1-\nu_x \nu_y)}$$

$$D_{ss} = \frac{G_{xy} t_m^3}{6}, \quad G_{xy} = \frac{E_x E_y}{(1+2\nu_y)E_x + (1+2\nu_x)E_y}$$

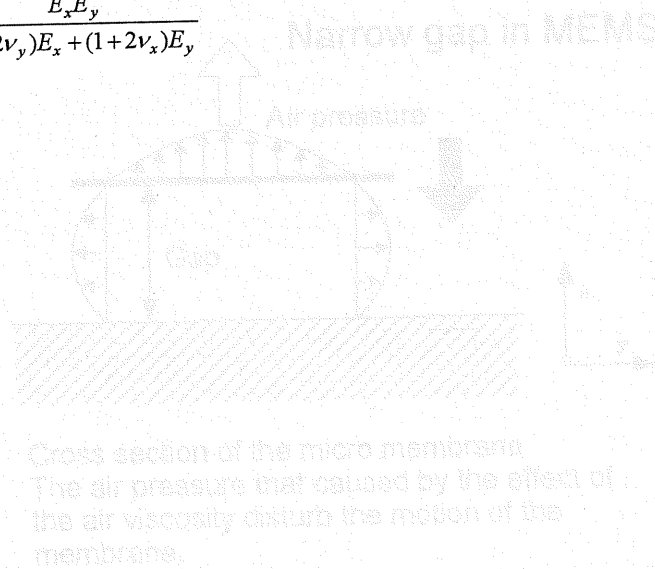
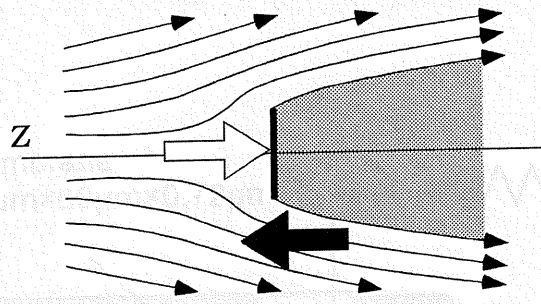
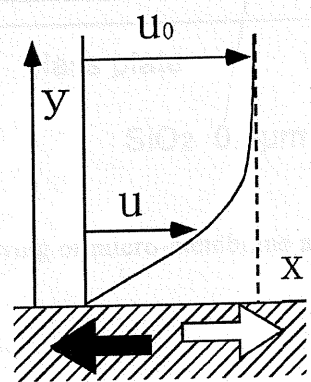


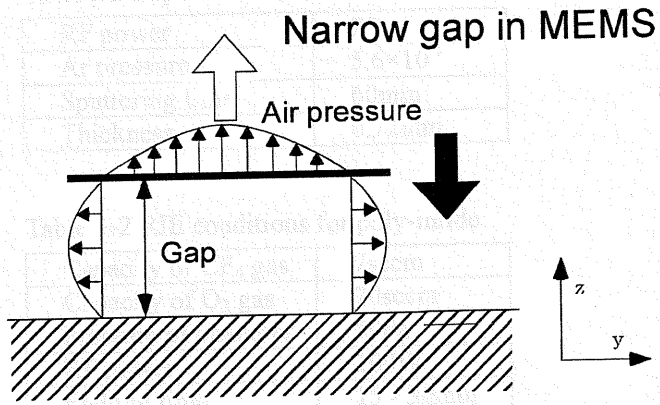
Fig.1-1 Two kinds of the air resistance force. White arrow stand for the force caused by the air, black arrow for the move direction of the object.



(a) The air resistance force caused by the air inertia



(b) The force caused by the air viscosity



Cross section of the micro membrane
 The air pressure that caused by the effect of the air viscosity disturb the motion of the membrane.

Fig.1-1 Two kinds of the air resistance force. White arrow stand for the force caused by the air, black arrow for the move direction of the object

Al membrane
 $3000\mu\text{m} \times 60\mu\text{m} \times 0.72\mu\text{m}$

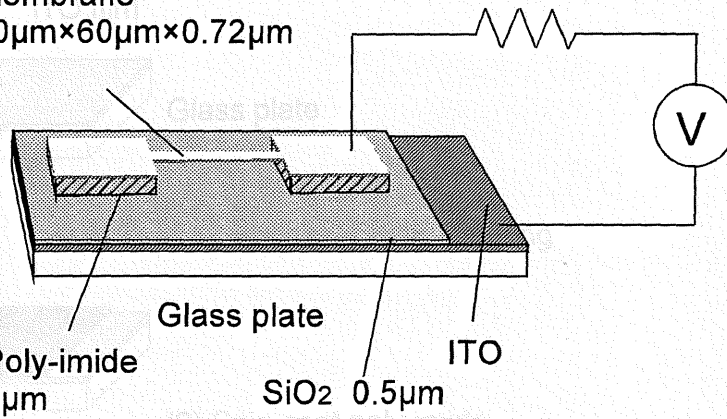


Fig.1-2 Schematic drawing of micro-membrane actuated by electrostatic force.

Table1-1 Deposit conditions for Al membrane

RF power	70w
Ar pressure	5.6×10^{-1}
Sputtering time	60min
Thickness	0.72mm

Table 1-2 RIE conditions for poly-imide

Capacity of CF ₄ gas	7sccm
Capacity of O ₂ gas	70sccm
Pressure of chamber	50Pa
RF power	100W
Etching time	15 - 30min

Fig.1-3 Fabrication process of micro-membrane

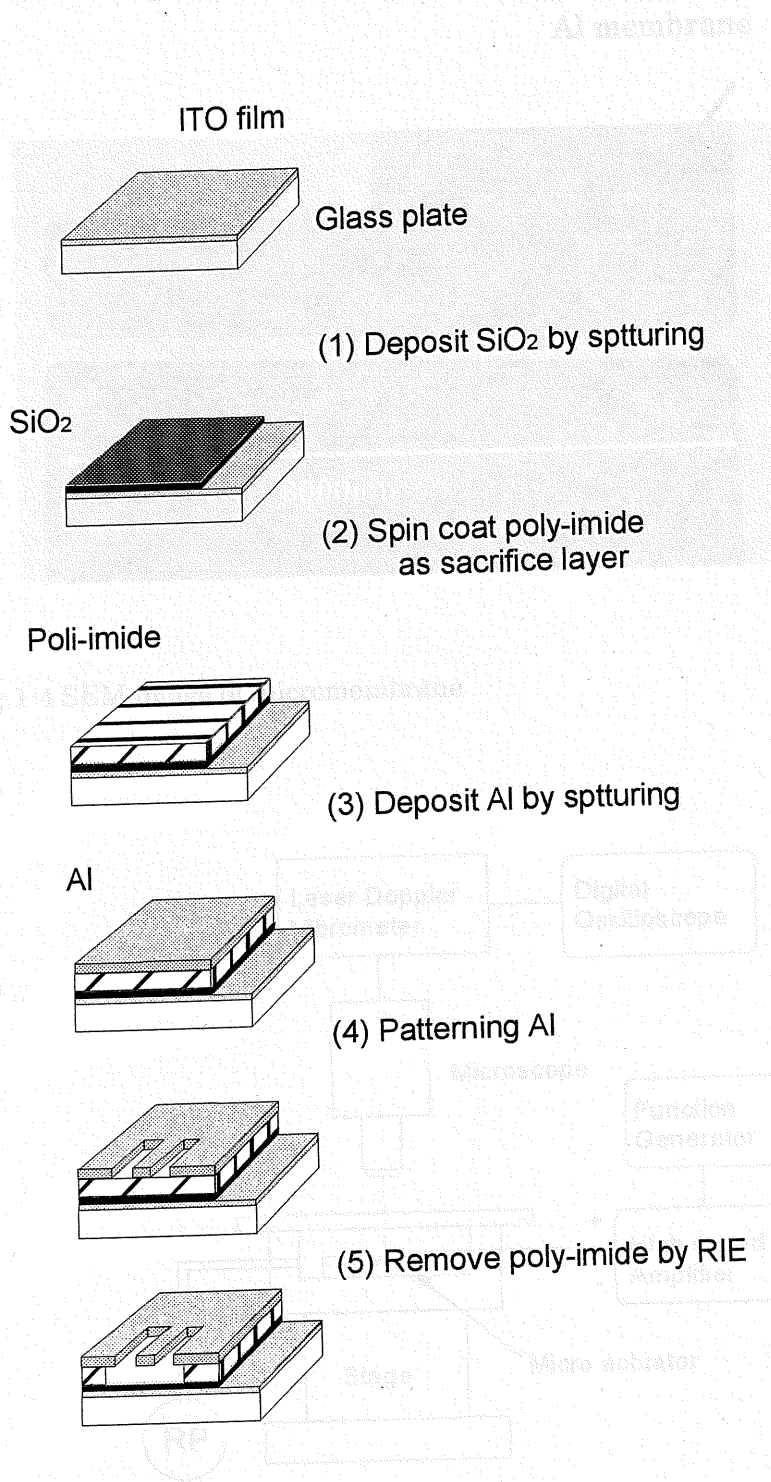


Fig 1-3 Fabrication process of micro-membrane

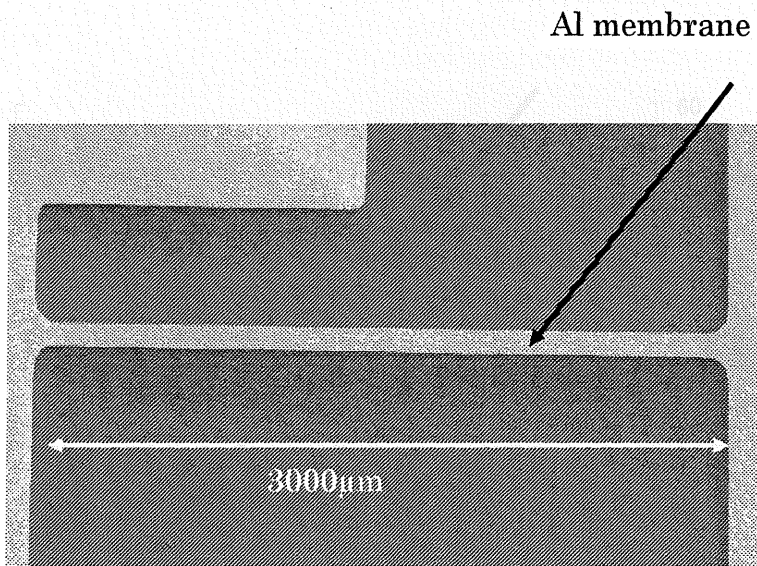


Fig.1-4 SEM image of micromembrane

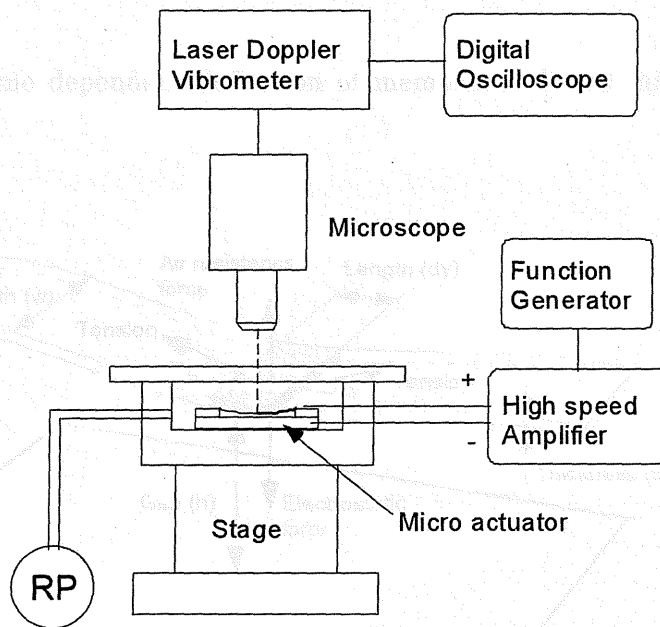


Fig.1-5 Setup for measuring micro-membrane motion in 10kPa and 1Pa

Fig. 1-7 Macromodel of the middle point of the membrane

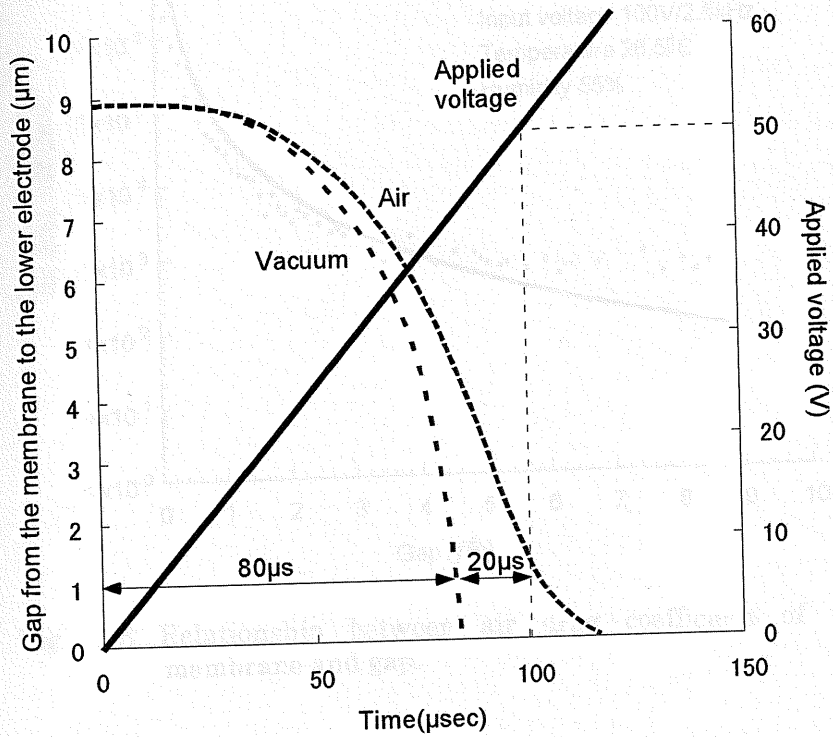


Fig. 1-6 Time dependent deflection of membrane; dotted; air break; vacuum

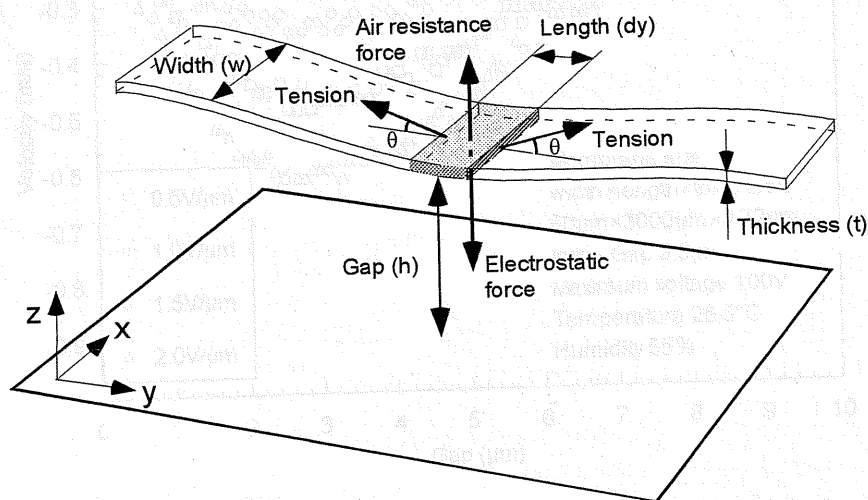


Fig. 1-7 Macromodel of the middle point of the membrane.

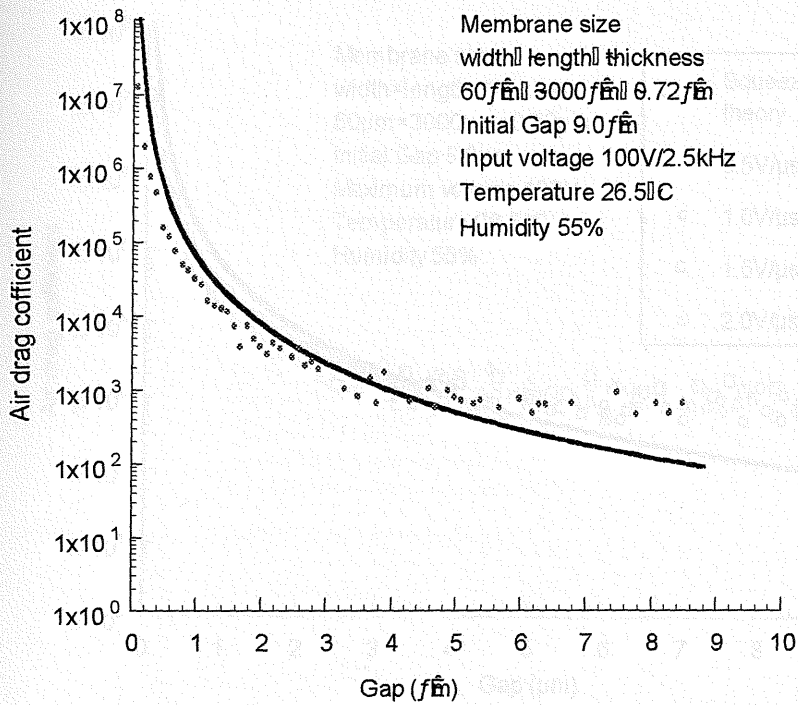


Fig. 1-8 Relationship between air drag coefficient of the membrane and gap.

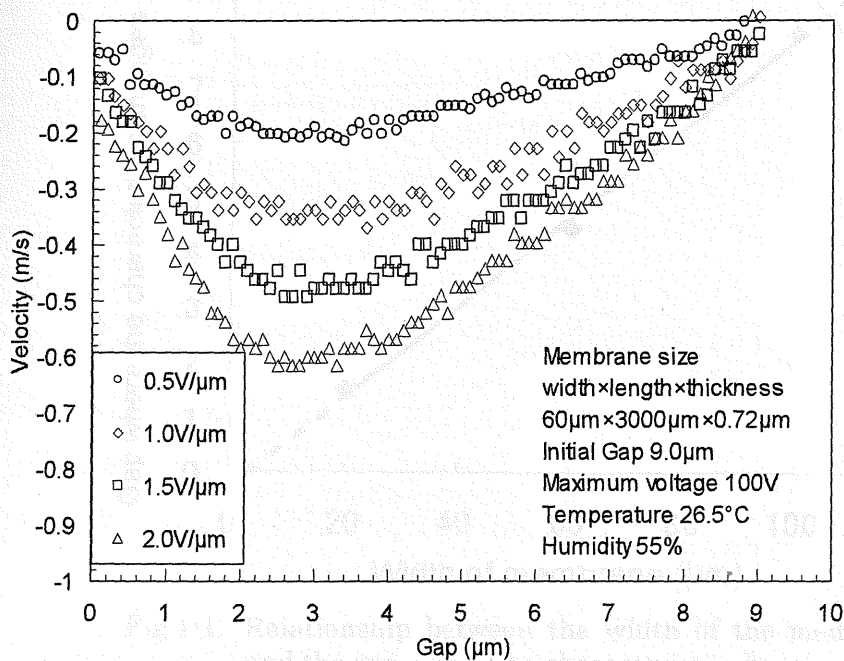


Fig. 1-9 relationship between the velocity of the membrane deflection and the gap in case the membrane is driven by various increase rate of applied voltage

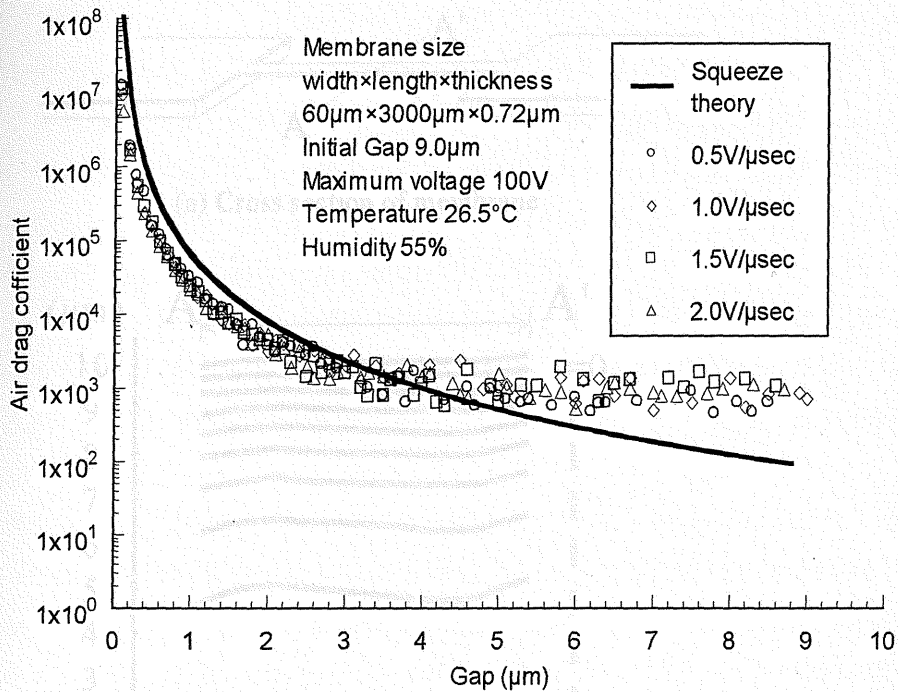


Fig. 1-10 Relationship between the air drag coefficient and the gap in case the membrane is driven by various increase rate of applied voltage.

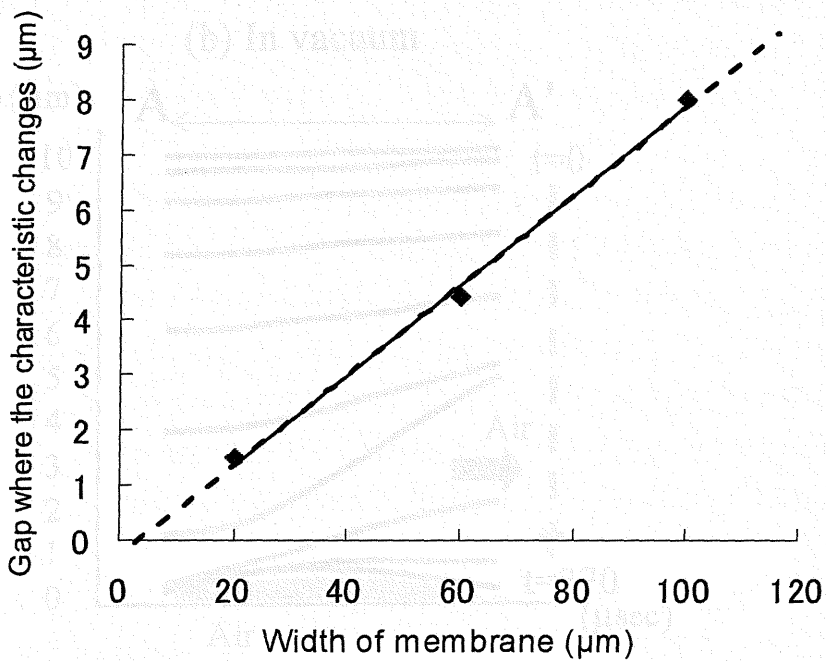
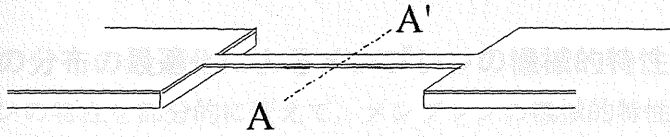
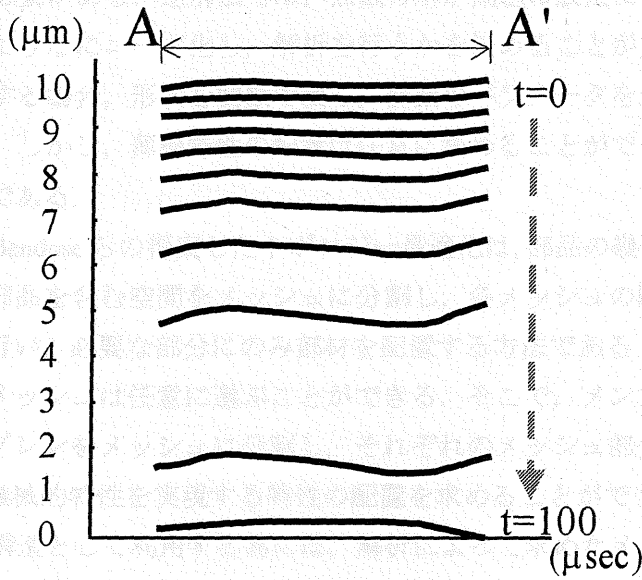


Fig.1-11 Relationship between the width of the membrane and the gap where the characteristic change

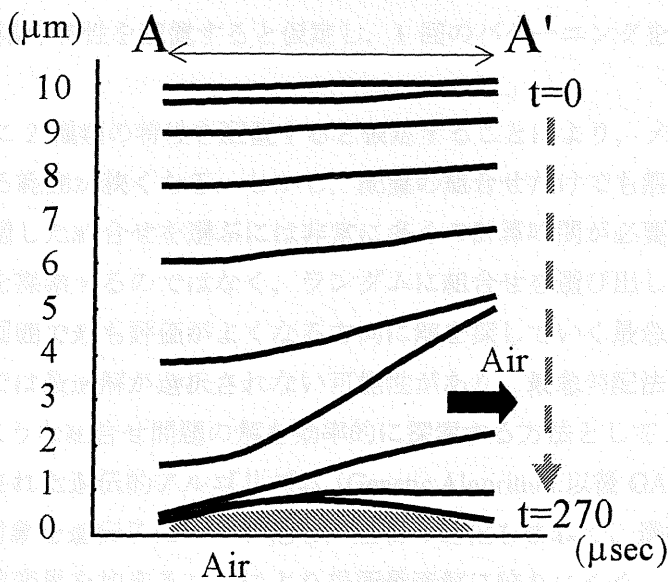
Fig. 1-12 Time dependent deflection of membrane at mid point of membrane



(a) Cross section of membrane



(b) In vacuum



(c) In air

Fig. 1-12 Time dependent deflection of membrane at mid point of membrane

1.3 特性の分布の最適化によるメンブレンの機械的特性制御

メンブレンの特性を部分的に変えて、メンブレンの機械的特性を制御する為には、メンブレンの特性の配置を適切に選ばなくてはならない。しかし、特性の配置は無限にあり、順解法で解析的に求めることは困難である。そこで、本章では目的の機械的特性を実現する特性の配置を逆解法で求める必要がある。逆解法では、無数の解が問題の設定によって解が制約される為、薄膜の配置をどのようにコード化し、解析を行うかを定めることが重要である。従来の機械部品の形状を最適化する場合、形状を関数で表し、関数のパラメータを最適化することにより、目的の形状を求めている。しかし、薄膜特性の配置は任意に定めることができる為、形状関数によって表すことは不可能である。

一方、MP Bendose らの提案したトポロジー最適化は、部品の幾何学的な形状を最適化する為に、対象となる部品を含む空間をメッシュに分割し、各メッシュの剛性の大きさをパラメータにして最適化を行い、必要な部分にのみ部材を配置する方法である^{11),12)}。剛性の大きさの異なる部分を配置するメッシュは任意に選ぶことができる。そこで、メンブレンに特性を配置する場合も、同様にメンブレンをメッシュに分割し、それぞれのメッシュ部分に特性を配置して、最適化を行えば目的の機械的特性を実現する特性の配置を求めることができると考えられる。

MEMS の構造として利用する為には、解析によって求めたメンブレンの特性の配置をフォトリソグラフィとエッチングによりパターンニングして作製しなくてはならない。多段階の特性の分布を作製する為には、パターンニングを繰り返す必要があり、作製方法が複雑になる。そこで、本研究では 2 段階の特性を配置すると仮定し、1 回のパターンニングを追加することで作製ができるようにした。

メッシュに 2 種類の特性を配置すると仮定することにより、メンブレンの特性の配置が制約されて探索する範囲が狭くなる。しかし、配置の組合せだけでも無数にあり、すべての組合せを調べて、最も適した組合せを選ぶには非常に多くの計算時間が必要であり、非効率的である。すべての組合せを探索するのではなく、ランダムに組合せを選び出して最適解を探す方法や選び出した組合せの周囲で最も評価がよくなる方向に解を探していく最急勾配法があるが、ランダムに選び出す方法では最適解が選択されない可能性があり、最急勾配法では局所最適解に陥る可能性がある。このような組合せ問題の解を効率的に探索する方法として John H. Holland や Goldberg らによって研究された遺伝的アルゴリズム (Genetic Algorithm: 以後 GA と称す)^{13),14)}を用いる方法がある。GA は対象を遺伝子にコード化し、生物の進化をまねて、選択と交配の世代交代を行う方法であり、突然変異を加えることにより局所最適解に陥りにくく、交配をすることにより解を探索して最適解に到達できるアルゴリズムである。

Fig. 1-13 に本研究におけるメンブレンの機械的特性の最適化方法を示す。まず、メッシュに分割したメンブレンに乱数によって特性の異なる部分を配置して親となる個体の集合を

生成する。次に、各個体のメンブレンの変形特性や動作特性などの機械的特性を有限要素法 (Finite element method : FEM) により計算し、その結果が目的の機械的特性にどれくらい近いかを評価する。次に、評価が高い個体の特性の配置を遺伝子にコード化し、遺伝子コードの交配と

突然変異を加えて、次世代の個体の遺伝子コードを生成する。メンブレンには2種類の特性の配置を行うと仮定するので、Fig.1-14に示すように、一方の特性を0と他方の特性を1としてメッシュの順に並べることにより、メンブレンの特性配置を2進数の遺伝子にコード化することができる。交配は2進数の配列を組み替えることによって行い、突然変異は乱数によって0と1を反転させることによって行った。生成した次世代の遺伝子コードをメンブレンの特性配置にデコードした後、再びFEMによる機械的特性の計算から、世代の繰り返し計算を行った。世代の繰り返しを行うことにより、目的の機械的特性に近いメンブレンの特定配置の個体が生き残るので、各世代における評価の平均値が高くなり、最適化が進むにしたがって、評価の値が収束する。

1.3.1 計算モデルと膜厚分布のコード化

逆解析の結果は、問題の設定によって変化する為、本研究で開発したメンブレンの機械的特性を制御する方法を検討するために、Fig.5-15に示すようなダイアフラム型マイクロポンプにおいて流体を押し出す為に用いられるメンブレンの変形形状を最適化すると仮定した。マイクロポンプ⁹⁾は、微小なインクを吐出し印刷を行うインクジェットプリンターや μ -TASにおける流体の搬送など用いられる機構であり、静電方式の場合、下部電極とメンブレンの間に電圧を印加すると静電気力によってメンブレンがたわみ、その変形にもなって生じる圧力波によって内部の流体を吐出する。メンブレンの変形量が大きい場所で高い圧力波が発生する為、吐出口上の変位が大きい方が、吐出速度が大きくなる。均一な機械的特性のメンブレンの場合、中央部分の変位が大きくなるが、流入口と吐出口の2つを配置する必要があるなど設計上の制約から、中央部分に吐出口を設置できる場合は少ない。そこで、メンブレンの特性を配置することにより、吐出口上の変位を大きくして、マイクロポンプの性能を改善する。

メンブレンの厚さが異なると剛性が変わるので、部分的にメンブレンの厚さを変えることによりメンブレンの変形形状を制御することができる。メンブレンは $400\mu\text{m}\times 200\mu\text{m}$ の大きさとし、長手方向を20等分し、幅方向を12等分したメッシュに厚さが $2\mu\text{m}$ の薄い部分と厚さが $3\mu\text{m}$ の厚い部分を配置するとした。また、計算量を軽減する為に、メンブレンは長手方向の中心線を軸に対称であると仮定し、2分の1モデルを用いた。メンブレンの反対側の面に流入口と吐出口があり、吐出口はメンブレンの中心から $150\mu\text{m}$ はなれた位置にあると仮定した。

1.3.2 適応度の計算と個体の交配

GAを用いると、自然界において最も環境に適した生物が生き残るように、各世代の中から、目的に適応する個体を選択し、その形質を受け継いだ次の世代はより適応した集団となることを利用して、組合せ問題の最適解を全ての場合を調べることなく効率的に探索することが可能である。本研究では、適応度の高い個体を残すトーナメント方式を用いた。また、偶然に適応度の高い個体が淘汰されて局所最適解に落ちるのを防止し、収束性を高めたる為に、最も適応度の高い個体をそのまま、次世代の個体として残すエリート戦略を用いた。この選択は、式(1-17)に示す最大変位点と吐出口の位置関係および吐出量を組合せた関数により、膜厚を設けたメンブレンの変形形状の適応度を評価することにより行った。

$$g = 1 - \left(s_1 \times \frac{|AB|}{|OA|} + s_2 \times \frac{V_{after}}{V_{init}} \right), \quad s_1 + s_2 = 1 \quad (1-17)$$

ここでOはメンブレンの中心点, Aは吐出口上の点であり, メンブレンの最大変位点の移動目標である. Bはメンブレンの変位の最大点の位置である. また, V_{init} は変形前のマイクロポンプの体積, V_{after} はメンブレンの変形による体積変化量で, s_1, s_2 は重みである. 本研究では, 変位が最大となる位置が吐出口の上に移動するのが優先されるように, $s_1=0.8, s_2=0.2$ とした. 適応度 g の値は, 最大変位点の位置と吐出口の距離が小さく, 吐出量が多くなるほど大きくなる.

選択した適応度の高い個体(親)の集団の中から1組の個体を選び, 交配を行うことによって, 適応度の高い特徴を受け継いだ次世代の個体(子)を生成する. 交配における遺伝子コードの組み替えは, 交叉率に応じて一組の個体の遺伝子を一箇所切断し, 交換する一点交叉法を用いた. 交配は子が親の個体数と同じになるまで, 繰り返し, 交配によって各世代の個体数減少しないようにした. さらに, 遺伝子の組換えのみを行う場合, 決まった特徴をもつ個体の集団になり, 局所最適解に陥る可能性があるため, 遺伝子をランダムに変化させる突然変異を加えた. 本章で用いたGAのパラメータをTable5-3に示す. 1世代の個体数は20, 交叉率は0.8, 突然変異率は0.02として, 膜厚分布形状の最適化を行った.

1.3.3 膜厚分布の最適化

メンブレンの電界は, 次式のラプラス方程式により計算できる.

$$E = -\nabla\phi = -\frac{\partial\phi}{\partial n} \quad (1-13)$$

ここで, n はメンブレンの垂直方向のベクトル, ϕ はポテンシャルであり, この時, 流体の誘電率を ϵ とすると, メンブレンに生じる静電気力は次式となる.

$$f_e = -\epsilon \frac{E^2}{2} \quad (1-14)$$

この静電気力と修正レイノルズ方程式(1-9)とメンブレンの(1-10), (1-11)を連成することによって, 厚さの異なる部分を配置したメンブレンの変形形状を求めた.

Fig. 1-16に厚さが $3\mu\text{m}$ の部分と $2\mu\text{m}$ の領域を乱数を用いて配置したときの膜厚分布と変形形状の一例を示す. 初期においては, メンブレン中央近傍での変形量が最大となっている. Fig. 1-17はGAによる配置の最適化を行った場合の各世代における適応度と吐出量の平均値である. 15世代くらいまでに適応度の平均値は急速に高くなり, その後, 40世代まで, ほぼ一定の値となっている. すなわち, 適応度の平均値がほぼ一定となることから, GAによる膜厚分布の最適化は収束していると考えられる. しかし, 吐出量は40世代まで徐々に増加し続けている. このことから, 15世代までに, 最大変位点が吐出口に近づく膜厚の分布が選択され, その後, 吐出量が増加する膜厚の分布に最適化されたと考えられる.

Fig. 1-18は最適化後の40世代目における適応度の最も高い個体の膜厚分布と変形状態である.

最大変位点は中心から吐出口の方へ移動しているが、吐出口から $60\mu\text{m}$ 中心に近い位置となっており、適応度が収束しているにもかかわらず、目的とした変形形状に一致していない。これは、GAを行う前提として設定した $2\mu\text{m}$ と $3\mu\text{m}$ の厚さのブロックによって膜厚の分布を作製すると設定した為、厚さ $2\mu\text{m}$ と $3\mu\text{m}$ の薄膜の組合せでは目的の変形形状を実現することができなかったと考えられる。そこで、前提条件である薄膜の厚さを変更し、 $2\mu\text{m}$ と $4\mu\text{m}$ の膜厚分布を配置する場合について再度解析を行った。GAによる膜厚分布の最適化を40世代繰り返した後の最も適応度の高い個体の膜厚分布と変形形状を Fig. 1-19 に示す。最大変位点は、吐出口から $20\mu\text{m}$ の位置まで移動しており、 $3\mu\text{m}$ と $2\mu\text{m}$ の厚さの分布によって得られた変形形状に比べて、最大変位点が $40\mu\text{m}$ 吐出口に近い変形形状となっている。膜厚分布の組合せは 2^{120} 通りの組合せがあり、全ての組合せを検討することは不可能であるが、GAを用いた場合、わずか800通りの組合せを検討することで、目的とする膜厚分布の組合せを得ることができた。

Fig. 1-20 は膜厚が $2\mu\text{m}$ と $4\mu\text{m}$ の組合せによって得られた最も適応度の高い個体におけるメンブレンの曲率を示したものである。メンブレンの厚さの薄い部分の曲げ剛性は膜厚の厚い部分に比べて小さくなる為、等しい外力を加えた場合でも、曲率が大きくなることを利用して、変形形状を制御する。その為、曲率の小さいところには膜厚の薄い部分が集中しており、目的とする変形形状を得る為に曲率が大きくならなければならない位置で、膜厚が薄くなる個体が世代を経るにしたがって、GAにより自動的に選択されている。このようにGAを用いる場合は、偶然最適な組合せが現れるのではなく、徐々に適したものが選択されている。また、メンブレンの変形形状は、メンブレン各位置の曲率に依存する為、膜厚の組合せによって、実現できる変形形状が異なるが、膜厚の組合せを変えて、再度解析を行うことは容易であり、遺伝子コードに膜厚の組合せの情報も組み込むことにより、GAによって膜厚の組合せも同時に最適化することができる。

GAによって求めた膜厚分布を Fig. 1-21 に示す方法により試作した。結晶方位が $\langle 110 \rangle$ の Si 基板を熱酸化し、表面に厚さ $0.9\mu\text{m}$ の SiO_2 層をマスクとして成長させた後、片面の SiO_2 を BHF で除去した。この Si 基板を厚さ $90\mu\text{m}$ となるまで KOH でエッチングを行い Si 基板の厚さを減少させた。次に、GAにより求めた膜厚の薄い部分のパターンになるように、メンブレンの長手方向を、(111)の結晶面にあわせて、 SiO_2 を BHF でパターニングした後、濃度 40wt% の KOH を用いて、 $80^\circ\text{C} \times 30\text{min}$ で Si を厚さが $20\mu\text{m}$ となるまで異方性エッチングし、薄い部分を作製した。そして、BHF により SiO_2 のパターンを除去した後、メンブレンを静電気力で駆動する為の電極として Al を成膜した。下部電極は、ガラスの上に ITO を成膜したのを用い、上部のメンブレンと接触した場合の絶縁をする為に、 SiO_2 を $0.4\mu\text{m}$ スパッタリングにより成膜し、その上に、上部電極と下部電極の間の隙間を確保する厚さ $10\mu\text{m}$ の感光性ポリイミドを塗布しスペーサーとした。メンブレンとポリイミドのスペーサーをシアノアクリレートで接着し、ポンプ形状を作製した。Fig. 1-22 に膜厚分布のパターンと作製した Si のメンブレンを示す。上側の半分が試作した Si のメンブレンであり、下側が試作したメンブレンに対応する GA によって求めた膜厚分布のパターンである。有限要素法による解析では、厚さの厚いブロックが角で接する点において、モーメントが伝達されるので、GA で求めたパターンの膜厚の厚い部分のブロックは、接続部分に R をつけてモーメントが伝達するようにしてエッチングを行った。

Fig. 1-23 にメンブレンの変形形状を測定する装置の構成を示す。メンブレンはメンブレンに成膜した Al 電極と ITO の下部電極の間に NF 回路製波形発生装置 1945 と高速アンプ 4010 を用いて駆動した。駆動に用いる電圧の波形は Fig. 1-24 に示す振幅の大きさのオフセットを加えた正弦波とし、メンブレン各位置における最大変位と最大印加電圧を測定し、変形形状を求めた。電極間に電圧の最大値が 160V となる波形で駆動した時のメンブレンの変形形状の測定結果 Fig. 1-25 の上側に、GA により求めた最適な膜厚分布の場合の変形形状を Fig. 1-25 の下側に示す。また、電圧の最大値が 160V となる波形で駆動した時と電圧の最大値が 240V となる波形で駆動した時の長辺方向の中心断面の変形形状を Fig. 1-26 示す。電圧の最大値が 160V で駆動した場合は、最大変位点の位置および変位の分布がよく一致しており、GA を用いることにより目的とする変形形状を実現する膜厚分布を求めることができたと考えられる。しかし、電圧の最大値が 240V で駆動した場合の実験結果と GA による解析結果の最大変位量と最大変位となる位置はよく一致するが、-2~0 の位置付近で変形量に違いがみられる。これは、実験では領域の角に R を与えたことにより、曲げモーメントの伝達だけではなく、剛性も大きくなったためと考えられる。

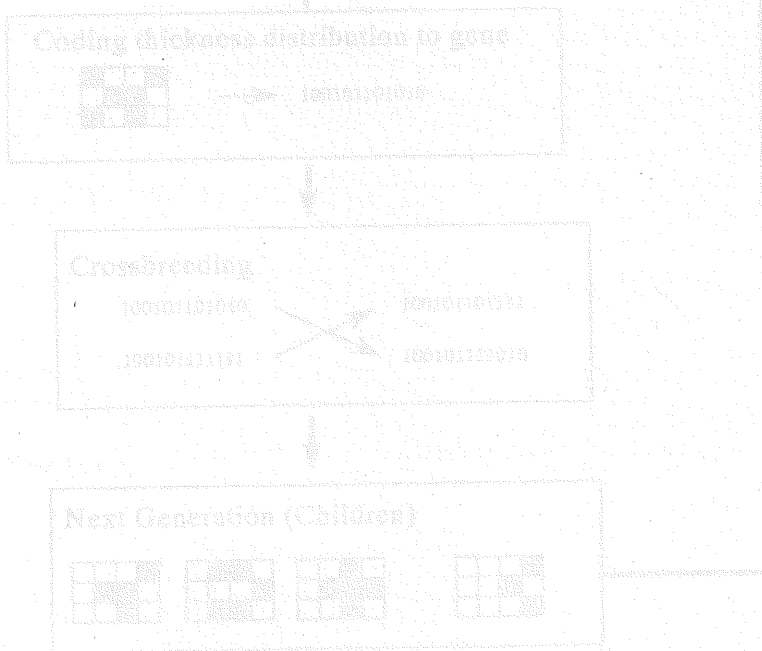


Fig. 1-13 Flowchart of optimization of thickness distribution by GA

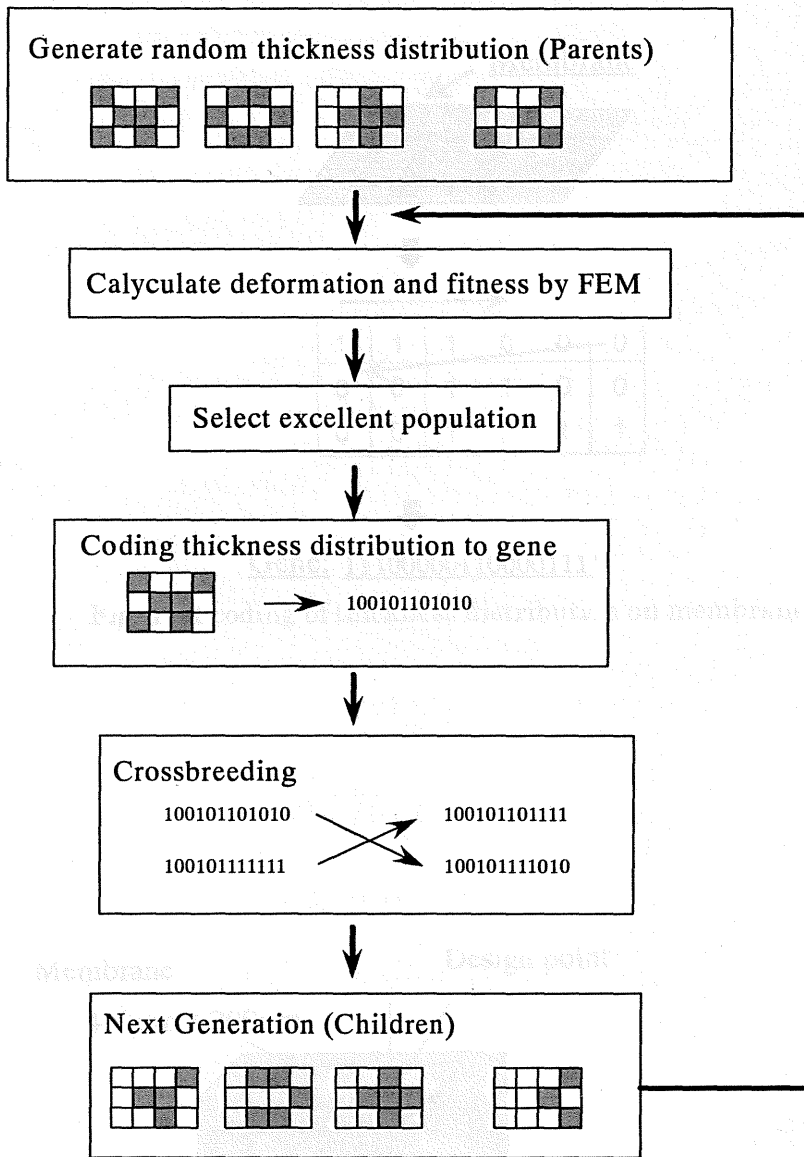
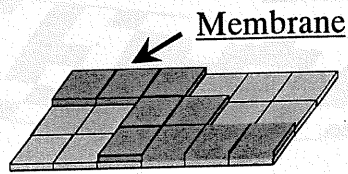


Fig. 1-13 Flowchart of optimization of thickness distribution by GA

Fig.1-15 Model of micropump



↓

→

1	1	1	0	0	0
0	0	1	1	0	0
0	0	1	1	1	1

↓

Gene: 111000001100001111

Fig. 1-14 coding of thickness distribution on membrane

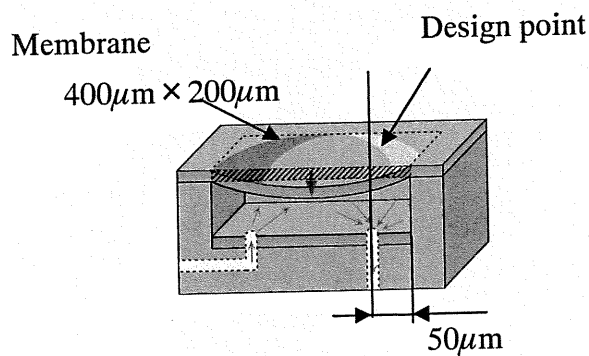


Fig.1-15 Model of micropump

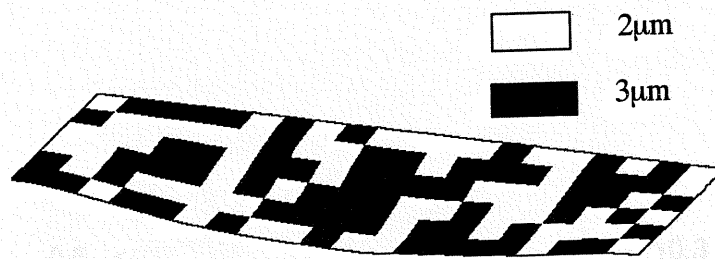


Fig. 1-16 Thickness distribution and deflection of membrane before optimization.

Table 1-3 Parameter for genetic algorithm

Generation	40
Population	20
Cross over rate	0.8
Mutation rate	0.02

Fig. 1-17 Fitness and flow volume in each generation

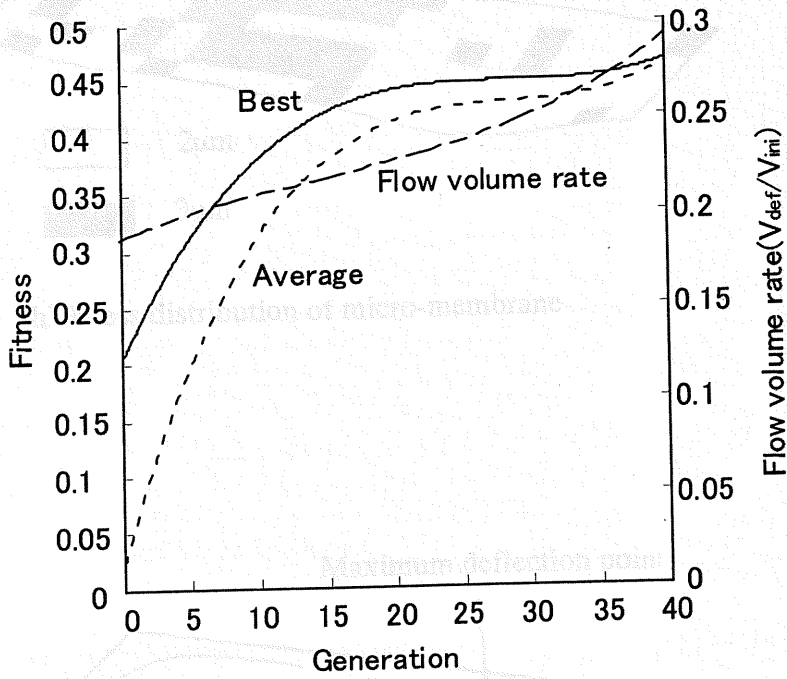
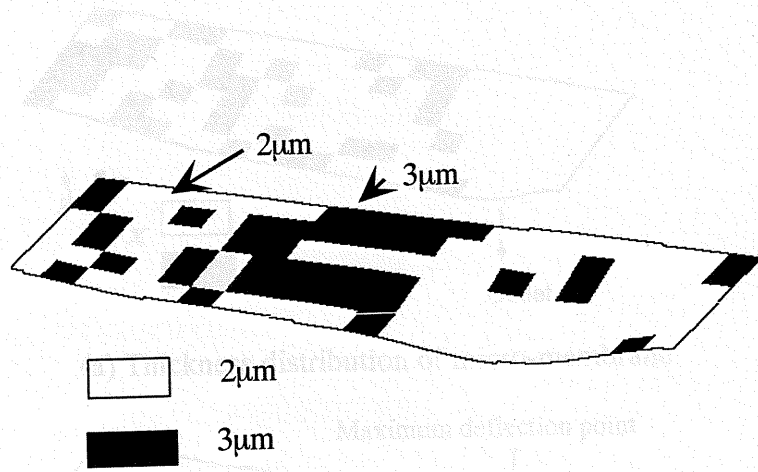


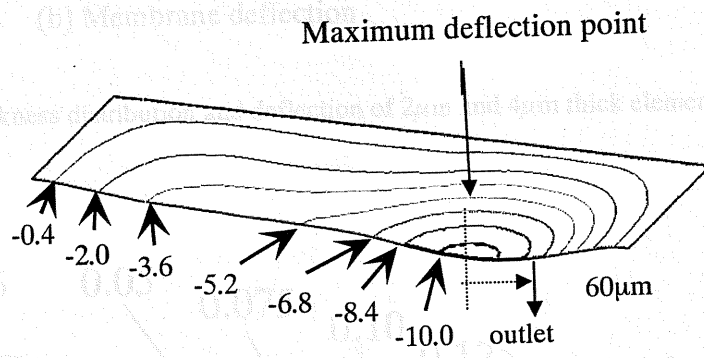
Fig. 1-17 Fitness and flow volume in each generation

(b) Membrane deflection

Fig. 1-15 Thickness distribution and deflection of 2 μ m and 3 μ m thick elements in 40th generation

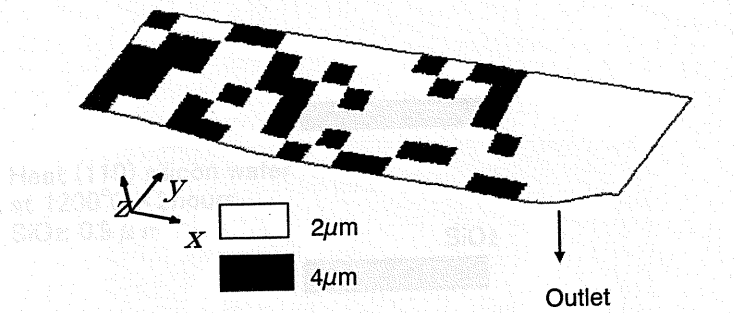


(a) Thickness distribution of micro-membrane

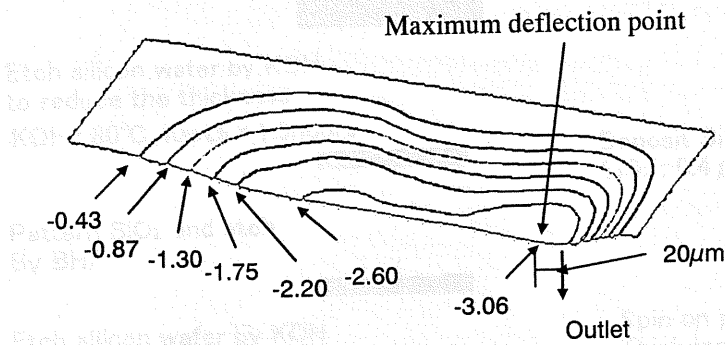


(b) Membrane deflection

Fig. 1-18 Thickness distribution and deflection of $2\mu\text{m}$ and $3\mu\text{m}$ thick element in 40th generation



(a) Thickness distribution of micro-membrane



(b) Membrane deflection

Fig. 1-19 Thickness distribution and deflection of $2\mu\text{m}$ and $4\mu\text{m}$ thick element in 40th generation

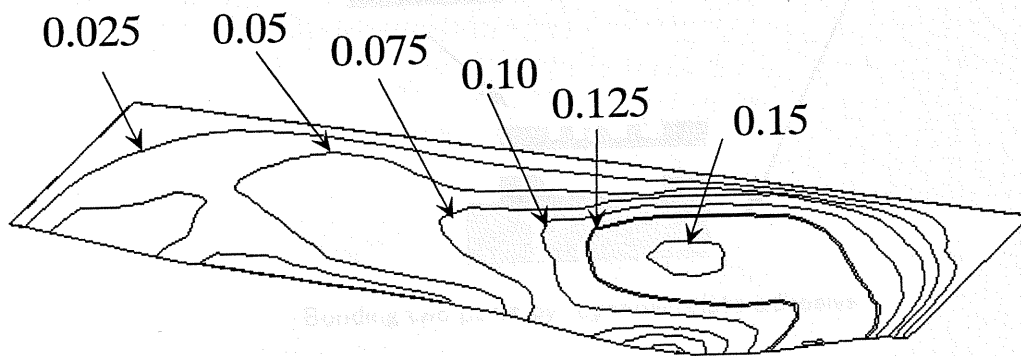


Fig. 1-20 Curvature of membrane after optimization by GA

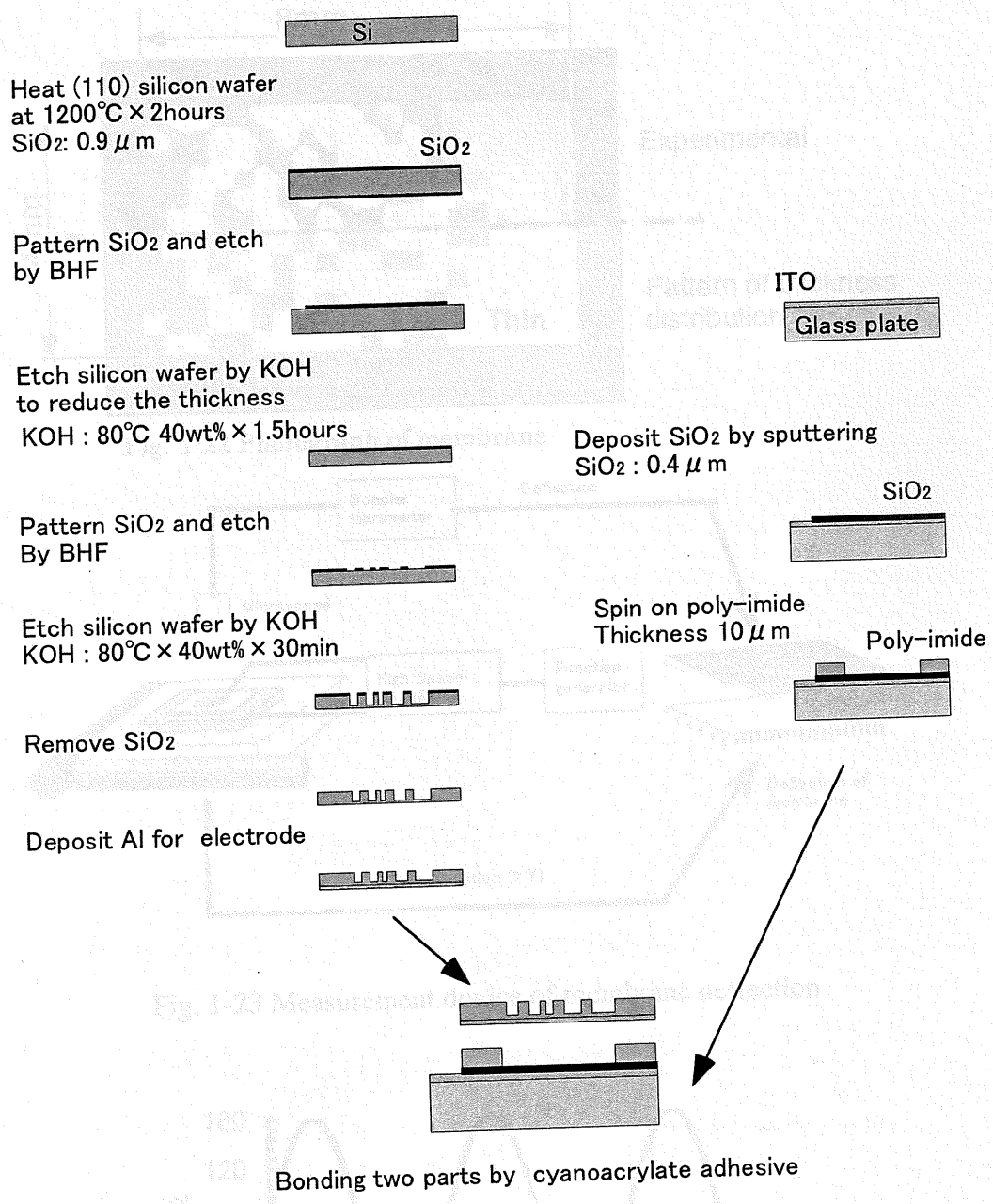


Fig. 1-21 Fabrication process of micro membrane actuator

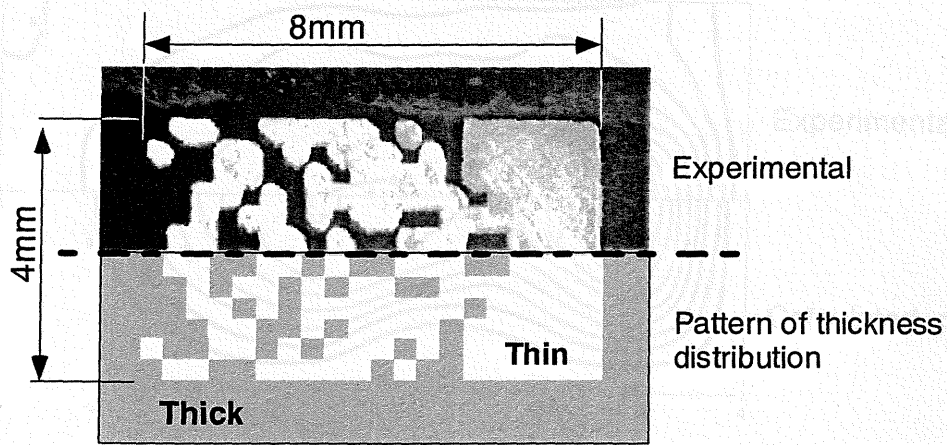


Fig. 1-22 Photograph of membrane

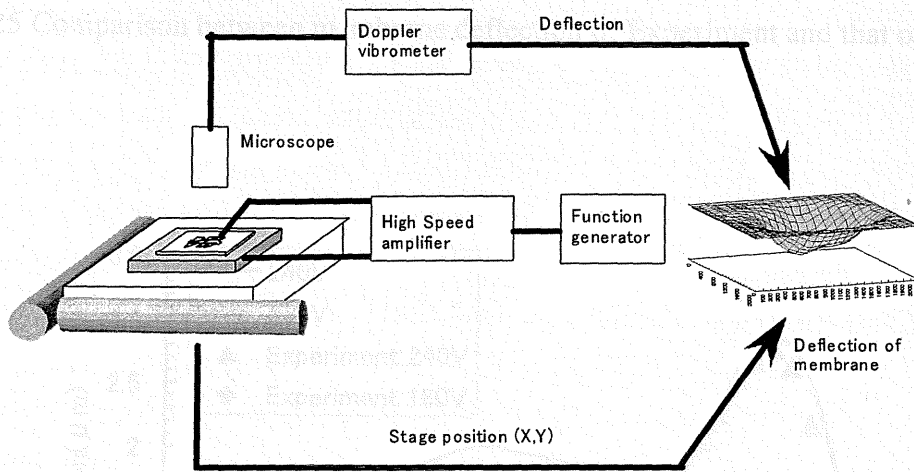


Fig. 1-23 Measurement device of membrane deflection

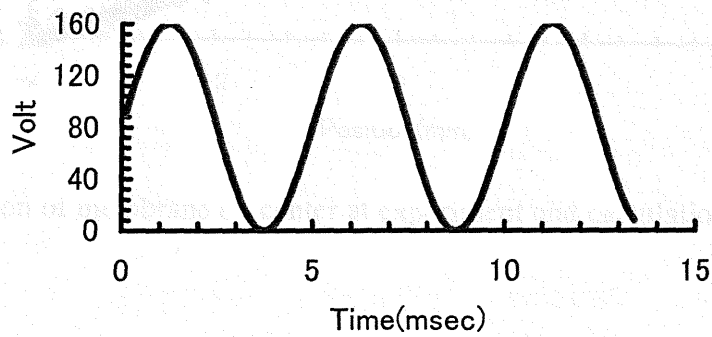


Fig. 1-24 Input voltages for actuation.

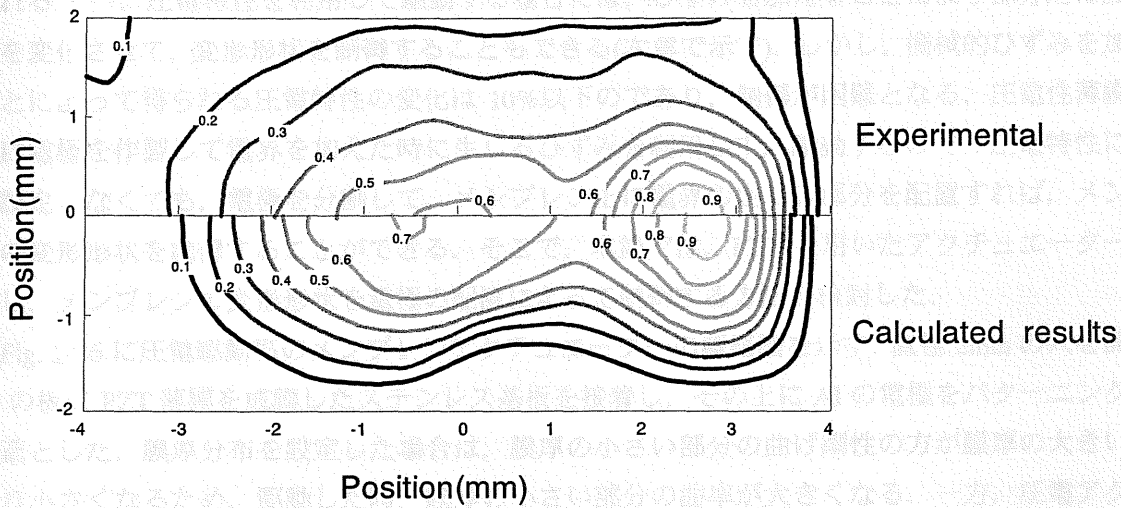


Fig. 1-25 Comparison between membrane deflection of Experiment and that of calculated.

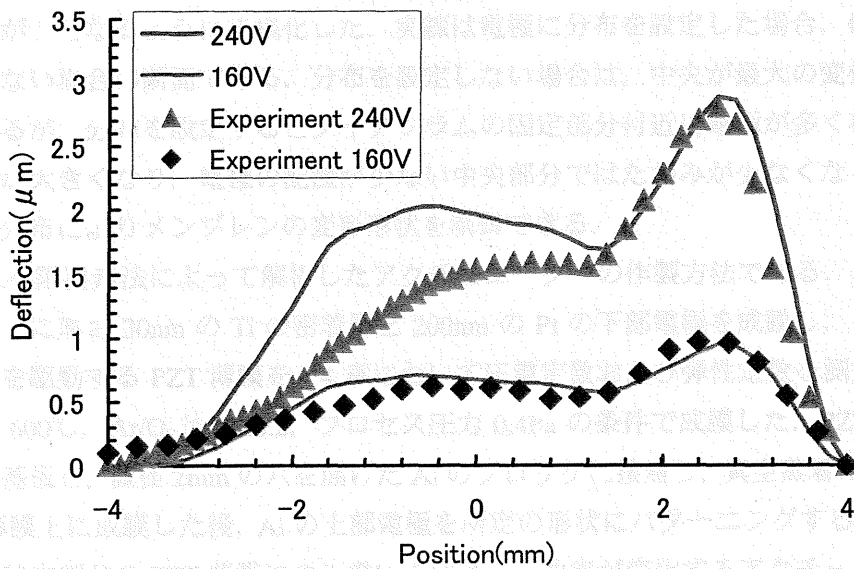


Fig. 1-26 Cross section of membrane on center at experiment and calculation.

1.4 圧電性材料を用いたメンブレンの変形形状制御

静電気力以外に圧電効果もマイクロポンプやマイクロミラーなどの MEMS の駆動に多く利用される³⁾⁴⁾⁶⁾。圧電特性を利用して駆動する場合には、ひずみを加えることにより部分的に圧電特性を変化させて、変形形状を制御することもできる(次章で示す)。しかし、機械的ひずみを加えることによって得られる圧電特性の変化は 10%以下のものであり、制御が困難となる。圧電性薄膜は上下に電極を作製して電界を加えた時に生じるひずみを利用して、駆動するので、圧電特性に分布を設定しなくても、電極を分割して、メンブレン上に電界の生じる部分を配置すれば、メンブレンの変形形状を制御することができる。そこで、本節では、PZT を用いたアクチュエーターを試作し、メンブレンの変形形状を電極の配置によって制御する方法を検討した。

Fig. 1-26 に圧電駆動型のメンブレンアクチュエーターの概略図を示す。直径 2mm の穴を開けた Al の板に PZT 薄膜を成膜したステンレス基板を接着し、その上に Al の電極をパターンニングした構造とした。膜厚分布を設定した場合は、膜厚の小さい部分の曲げ剛性の方が膜厚の大きい部分より小さくなるため、駆動した時、膜厚の小さい部分の曲率が大きくなる。一方、圧電アクチュエーターの場合、電圧を印加した部分の PZT 薄膜が収縮するので、電極が存在する部分の曲率が、存在しない部分に比べて大きくなる。そこで、圧電アクチュエーターにおける、電極の配置は Fig. 5-27 に示すように、GA によって求めた膜厚分布のアクチュエーター薄い部分の一部と同じ配置とした。このときの変形形状を Table 5-4 に示す材料のパラメータを用いて、有限要素法によって求めた。Fig. 1-28 はパターンの対称軸の断面における解析結果であり、縦軸はメンブレンのたわみの最大変位が 1 となるように正規化した。実線は電極に分布を設定した場合、破線は、電極に分布を設定しない場合の断面である。分布を設定しない場合は、中央が最大の変位となるように変形をしているが、分布を設定するとダイヤフラムの固定部分付近に電極が多く存在する左側の部分でたわみが大きくなり、電極の配置が少ない中央部分ではたわみが少なくなる形状になっており、電極の分布によりメンブレンの変形形状を制御できる。

Fig. 1-29 は有限要素法によって解析したアクチュエーターの作製方法である。厚さ 20 μ m のステンレス基板上に厚さ 30nm の Ti の密着層と 200nm の Pt の下部電極を成膜し、その上に、アクチュエーターを駆動する PZT 薄膜を、4 章において圧電定数および弾性定数を測定した場合と同じ、基板温度 600 $^{\circ}$ C、Ar/O₂比 10:0.2、プロセス圧力 0.4Pa の条件で成膜した。PZT 薄膜を成膜したステンレス基板を、直径 2mm の穴を開けた Al のブロックに接着し、真空蒸着により Al の上部電極を PZT 薄膜上に成膜した後、Al の上部電極を所定の形状にパターンニングすることにより、メンブレン上の特定部分の PZT 薄膜にのみ電圧を印加し、曲率が変化するアクチュエーターを作製した。Fig. 1-30 は作製した圧電駆動型アクチュエーターの電極部分の様子と電極配置である。Al の上部電極はパターン部分の近接部分を R で接続し、1 箇所共通の電圧を印加できるようにした。駆動電圧は、Fig. 1-31 に示す振幅 5V、オフセット 5V、周波数 3kHz の正弦波で分極方向に電界が生じるようにした。このときの、メンブレンの変形形状を Fig. 5-32 に示す。また、対称軸断面の変形形状を Fig. 5-33 に示す。実線は前述の電極に分布を設定した場合の圧電アクチュエーターの変形形状を有限要素法で計算したものであり、破線は試作したアクチュエーターの変形形状である。有限要素法により求めた変形形状の中央部分のふくらみは、試作したアクチュエーター

では観察されず、一致しないが、最大変位点の位置と Fig. 1-33 の右側部分で曲率が変化する位置はよく一致している。有限要素法によって、電極を分布させた場合の圧電アクチュエーターの変形形状を計算することができたと言えらるるので、電極の配置を遺伝子にコード化することにより GA を適用すれば、目的の変形形状を実現する電極配置を求めることができる。

1.5 まとめ

本章では、MEMS においては、微小な部品を組み合わせることで構造を作製することが困難であるため、フォトリソによってメンブレンの膜厚や圧電性薄膜の電極に分布を設定することによって、メンブレンの変形形状を制御する研究を行った。以下に本章で得られた結果を述べる。

- (a) 静電駆動型のアクチュエーターにおける電極間などの微小な隙間における流体の変形抵抗を測定する実験を行い、幅が $80\mu\text{m}$ 以上あるメンブレンを静電気力によって駆動する場合、電極間の隙間が $10\mu\text{m}$ 以下の時は、スクイズ効果が支配的である。
- (b) 静電気力、メンブレンの大変形、流体のスクイズ効果を連成して解き、静電気によって駆動するマイクロポンプの変形形状を求める数値解析を構築することができた。
- (c) メンブレンの膜厚を遺伝子にコード化して、GA を用いることで、無数にある膜厚分布の組合せの中から効率的に目的の膜厚分布を選択できることを示した。
- (d) シリコンを KOH によってエッチングし、GA によって求めた膜厚分布を持つアクチュエーターを試作し、膜厚分布がフォトリソとエッチングを組み合わせることで作製することができることを示し、実験結果と解析結果がよく一致することを示した。
- (e) 圧電アクチュエーターの電極を分布させてメンブレンの変形形状を制御する解析と実験を行い、圧電アクチュエーターの場合にも、本章で開発した GA によるメンブレンの変形特性制御が可能であることを示した。

以上の結果を総合すると、GA によって解析的に求めたメンブレンの膜厚分布や電極の配置を、フォトリソを用いて作製すれば、メンブレンの変形形状を制御することができることを示すことができた。この方法を用いれば、目的の変形特性をもつメンブレンが単純な作製プロセスによって作製でき、マイクロポンプやミキサーなどの効率を改善するだけでなく、新たな MEMS の動作原理を構築することができる。

参考文献

- [1] Compliant thermal microactuators, Jacques Jonsmann et al., Sensors and Actuators, vol. 76, 463-469(1999)
- [2] A novel topology design scheme for the multi physics problems of electro thermally actuated compliant micromechanisms, Luzhong Yin et al., Sensors and Actuators A 97-98,599-609,(2002)

- [3] "Electrostatic actuation as a self-testing method for silicon pressure sensors", Adriana Cozma et.al., Sensors and Actuators A60, 1997, pp.32- pp.36
- [4] "Highly sensitive triaxial silicon accelerometer with integrated PZT thin film detectors", Korbinian Kunz et.al., Sensors and Actuators A92, 2001, pp.156- pp.160
- [5] "A plastic micropump constructed with conventional techniques and materials", Sebastian Bohm et.al., Sensors and Actuators 77,1999, pp.223- pp.228
- [6] "PZT actuated micromirror for fine-tracking mechanism of high-density optical data storage", Youngjoo Yee et.al., Sensors and Actuators A89, 2001, pp.166- pp.173
- [7] "Modeling, design, fabrication and measurement of a single layer polysilicon micromirror with initial curvature compensation", Young-Hoon Min et.al., Sensors and Actuators 78, 1999, pp.8- pp.17
- [8] 初澤 毅, 後藤 亜世, 小口 寿明, 早瀬 仁則: 干渉型表示素子の提案と動作原理の確認, 電気学会論文誌 E, 119-E(12), 631/635 (1999)
- [9] 南和幸, 森内昭視, 江刺正喜: 封止されたマイクロメカニカルデバイスのダンピング制御, 電気学会論文誌 E, 117-E(2), 109/116 (1997)
- [10] H.Kotera, H.Kita, H.Yohda and Y.Mizoh: Finite Element Analysis of the Interface Phenomena between VCR Tape and Head, IEEE Trans. on Consumer Electronics, Vol. 37, No. 3,1991
- [11] MP.Bendose, N.Kikuchi, Generating optimal topologies in structural design using a homogenization method, Computer method in applied mechanics and engineering, vol. 71,197-224,(1988)
- [12] A homogenization method for shape and topology optimaization, Katsuyuki Suzuki and Noboru Kikuchi, Computer Methods in Applied Mechanics and Engineering, Vol 93, 291-318,1991
- [13] Adaptation in Natural and Artificial Systems, John H.Holland et.al., Univ. Michigan Press (1974)
- [14] Genetic Algorithms in Search, Optimization and Mechine Learning, Goldberg et.al., AddisonWesley (1989)

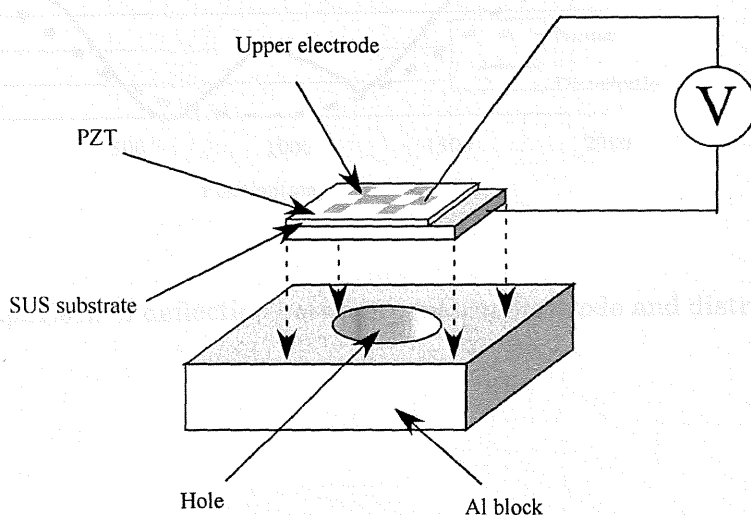


Fig. 1-25 Schematic drawing of PZT actuator.

Table 1-5 Material properties on simulation

Young's modulus of SUS	200GPa
Young's modulus of PZT	83GPa
Poisson ratio of SUS	0.3
Poisson ratio of PZT	0.2
Thickness of SUS	20 μ m
Thickness of PZT	3 μ m
Piezoelectric property of PZT	120 $\times 10^{-12}$ m/V

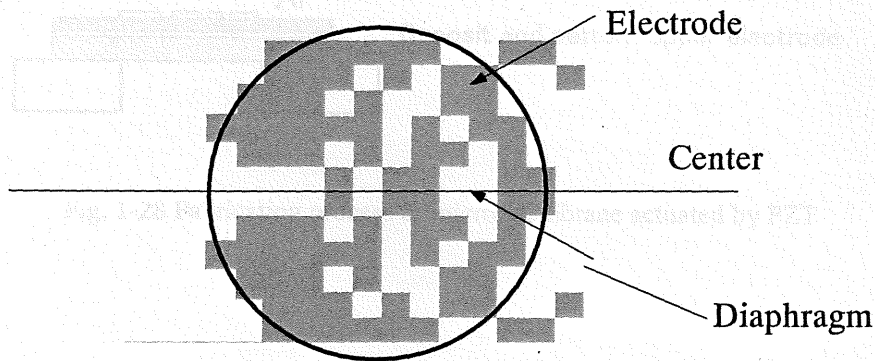


Fig.1-26 Electrode pattern of micro actuator.

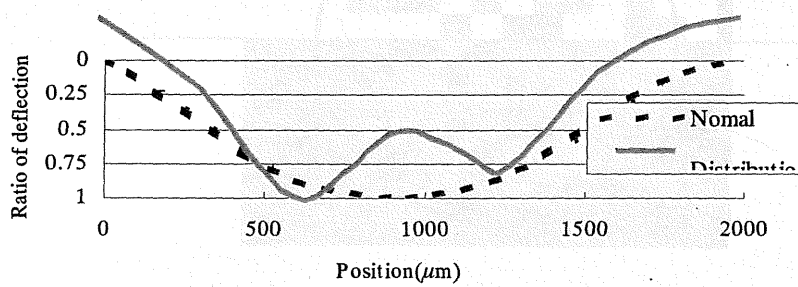


Fig. 1-27 Photograph of upper electrode.

Fig. 1-27 Comparison of deflection between uniform electrode and distributed electrode.

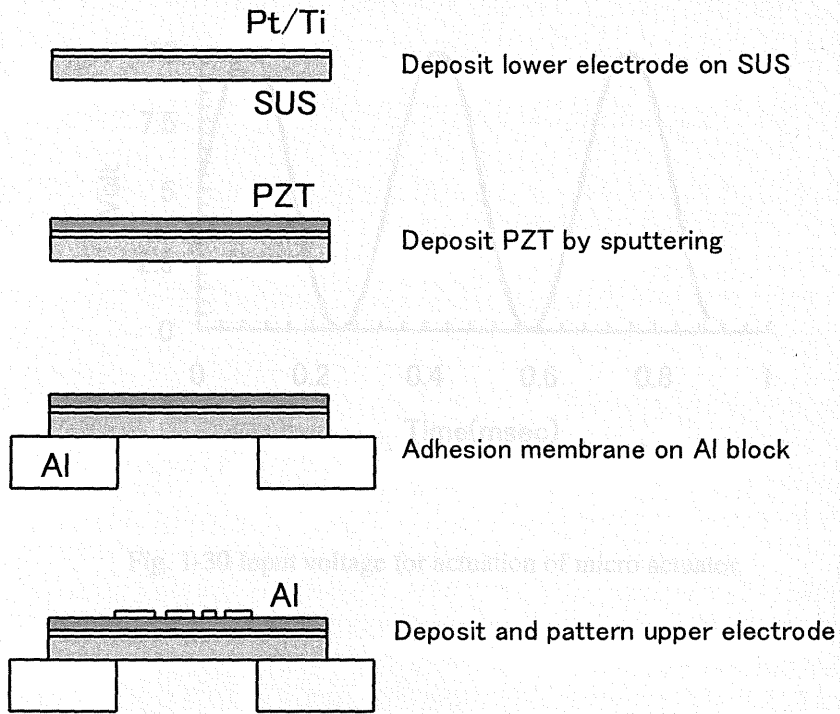


Fig. 1-28 Fabrication process of micro membrane actuated by PZT

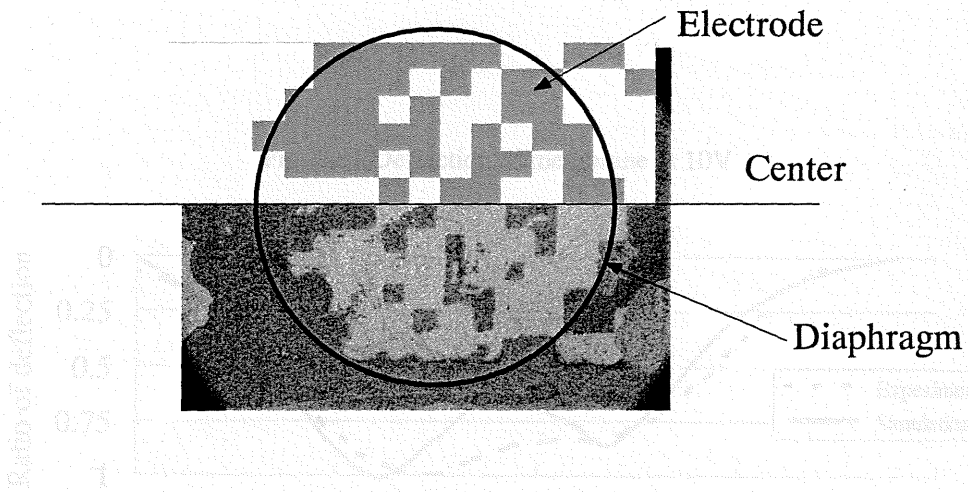


Fig. 1-29 Photograph of upper electrode.

Fig. 1-32 Comparison of deflection at center of membrane on experimental result and numerical one.

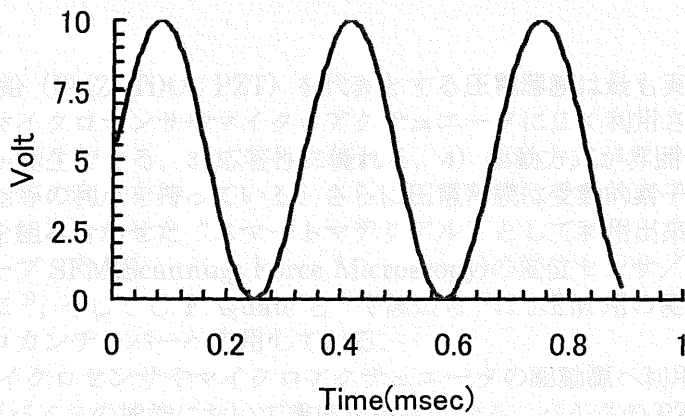


Fig. 1-30 Input voltage for actuation of micro actuator.

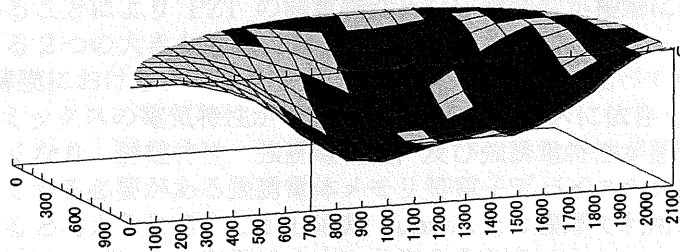


Fig. 1-31 Deflection of membrane at 10V

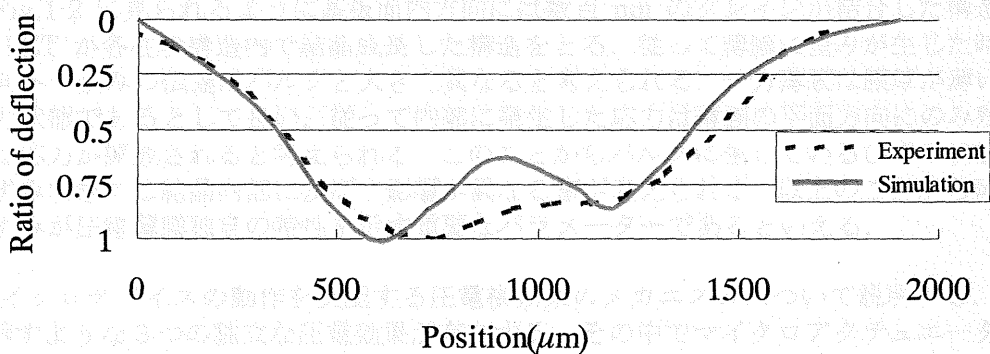


Fig. 1-32 Comparison of deflection at center of membrane on experimental result and numerical one.

第2章 PZT 薄膜の圧電特性に及ぼす内部応力の影響(分布膜の基本特性)

2.1 緒言

ジルコン酸チタン酸鉛 ($\text{Pb}(\text{Zr},\text{Ti})\text{O}_3$: PZT) を代表とする圧電薄膜は最も実用的な電気・機械エネルギーの変換材料としてマイクロセンサやマイクロアクチュエータに広く利用されており¹⁾, 1)変位分解能が高い, 2)大きな力が発生できる, 3)応答性に優れる, 4)駆動方式が雰囲気に影響を受けない為, 様々な媒質中で動作可能等の利点を持っている. さらに圧電薄膜は受動的素子(センサー)と能動的素子(アクチュエータ)を組み合わせた“スマートマテリアル”として利用出来る²⁾. この特徴を利用して須賀らはマルチプローブ SFM(Scanning Force Microscopy)の変位センサ/振動子の機能を併せ持つマイクロカンチレバーに³⁾, そして C. F. Quate ら⁴⁾や渡辺ら⁵⁾は AFM 用の変位センサ/アクチュエータの機能をもつマイクロカンチレバーへ応用している.

圧電薄膜をこれらマイクロセンサやマイクロアクチュエータの駆動源へ利用する場合, 圧電ひずみ定数 d_{31} が圧電マイクロデバイスの機能において重要な指標になる. バルクの PZT の場合, モルフォトピック相境界付近の組成において最大の圧電定数を示し, 圧電ひずみ定数が $d_{31} = -150 \times 10^{-12} \text{m/V}$, $d_{33} = 400 \times 10^{-12} \text{m/V}$ もの大きな値を持つ. しかしマイクロマシンの場合, バルクの PZT を用いることは困難であり, PZT 薄膜を用いる必要がある. PZT 薄膜はゾル・ゲル法⁶⁾⁻⁸⁾, スパッタ法^{9),10)}, MOCVD 法^{11),12)}, 及び PLD(Pulsed Laser Deposition)法¹³⁾等により作製されるが, PZT 薄膜の圧電定数はバルクの圧電定数よりも低い. PZT 薄膜の圧電定数を高めるために組成や成膜温度等の成膜条件について検討されている. しかし, PZT 薄膜の圧電特性を向上させる為には, 従来の材料的な検討だけでなく, 構造的要因からの検討も行う必要がある. 従来, PZT 薄膜の膜厚依存性について報告されているが¹⁴⁾⁻¹⁸⁾, 圧電薄膜の膜厚が下がることにより PZT の誘電特性及び圧電特性が極端に悪化する事が報告されている. これは以下に挙げる2つの大きな原因によるものと考えられている.

第一の原因は圧電薄膜におけるグレインサイズがバルクのそれに比べて小さいことによるものである. Kim は PZT セラミックスの電気特性が PZT のグレインサイズに依存し, 特に $1 \mu\text{m}$ 以下の膜厚でグレインサイズが小さくなり, 誘電特性, 強誘電特性, 及び強誘電特性が悪化することを報告している¹⁹⁾. 薄膜の膜厚を小さくする必要がある強誘電体メモリ等電子デバイスの分野では, このグレインサイズ効果は大きく影響すると考えられる. しかし通常 $1 \mu\text{m}$ 以上の膜厚で利用されているマイクロデバイスにおいては, グレインサイズによる影響は小さいと考えられる.

第二の原因は, 薄膜内部に生じるひずみによるものと考えられる. 圧電薄膜は基板上に成膜されるため, その特性は基板や下地から受ける格子ひずみや熱ひずみ等に大きく影響を受ける. Xu らは圧電薄膜における電気特性の膜厚依存性を検討し, 膜厚の減少による電気特性の悪化が基板と薄膜の間で発生する残留応力に起因することを示している²⁰⁾. またバルクの圧電セラミックスと圧電薄膜では材料内部のひずみの状態が大きく異なると考えられる. Fig.1-2 は Si 基板上に成膜した PZT 薄膜の断面構造を撮った SEM 像である. PZT 薄膜の格子構造はグレインがランダムに配置したバルクの結晶構造とは大きく異なり, Fig.1-2 に見られるように基板面内方向には数百 nm のグレインが結合した構造, 基板垂直軸方向には PZT が各柱状構造内で結晶成長した構造をとる. 従って薄膜に歪みが生じた時の面内及び基板垂直方向への歪みの伝達はバルクと大きく異なると考えられる. 一方薄膜は膜厚が薄いため, 薄膜内は平面応力状態であるとして良い. 従って内部に発生した応力は薄膜の平面方向にのみ残留し, 基板垂直方向には応力が開放されると考えられる. このことからバルクに生じているひずみ状態と薄膜に生じているひずみ状態では結晶内部に及ぼす影響が異なる事が考えられる. 以上のことから薄膜内部に生じているひずみが圧電薄膜独自の特性を示す重要なパラメーターであるといえる.

ここでマイクロデバイスの動作を支配する圧電横効果のメカニズムについて説明する. 圧電体には Fig. 1-1 に示すような3つの独立な圧電効果が存在する. その中でマイクロアクチュエータの駆動源として利用される圧電横効果は薄膜上下方向の軸にかかる電圧によって薄膜面内方向である 1-2 軸にひずみが生じる効果であり, 圧電ひずみ定数 d_{31} が圧電横効果の大きさを示す指標になる. 圧電ひずみ定数 d_{31} を向上させるためには電圧印加時の薄膜面内に発生するひずみ量を大きくすればよい. ここで圧電薄膜の特性は以下に示す原因により, バルクと異なる薄膜の構造から影響を受けると考えられる.

(1) Fig. 1-3 は PZT のペロブスカイト構造を示す. ここで, PZT が正方晶の構造を持つとき, Fig.1-4 に示すように単位格子内の Zr(Ti)サイトが自発変位を起こすことにより格子内にひずみが生じ, また変位を起こした方向に分極軸を形成する. ここで生成される自発分極が PZT の強誘電特性や圧電特性を誘起するため, 自発分極の振る舞いは強誘電特性や圧電特性に大きな影響を与える. 例えば薄膜

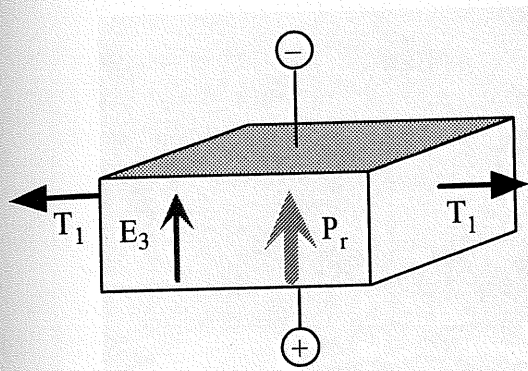
に圧縮応力が生じたとき、先述したように薄膜は平面応力状態とみなすことができ、Fig. 1-4 に示すように面内方向にのみ応力が残留する。これにより結晶格子は受けた応力を開放するために基板垂直方向にひずみ、格子の非対称性が増加する。その影響によって Zr(Ti) サイトも格子の重心から離れ、大きな自発分極を発生させる。即ち PZT 薄膜内に生じたひずみによって格子内の自発分極が変化すれば、圧電特性も影響を受けると考えられる。

(2) PZT 薄膜は Fig. 1-2 にみられるように基板に対して斜めに結晶成長することが多く、このとき Fig. 1-5 の模式図に示すように基板に対して柱状構造及び結晶格子が斜めに成長している。この状態で薄膜面内方向に圧縮応力が発生すると、PZT の結晶格子にせん断力を生み、格子が斜めにひずむと考えられる。これは面内方向の歪み成分の一部がせん断力として働くことから生じる。また薄膜は基板の影響を受けて基板垂直方向にひずみ分布が生じており、結晶格子の各頂点である Pb 原子のうける応力に差が生じることによってせん断力を生じる。こうして薄膜にせん断力が生じたとき、結晶格子は Fig. 1-5 に示すように斜めにひずみ、重心に位置する Zr(Ti) サイトの原子はもともとの自発変位の位置よりも基板垂直方向にずれた位置に移動する。せん断力による Zr(Ti) 原子のずれは格子内部の弾性変形と考えることができ、このとき基板垂直方向の分極量は増加すると考えられる。

圧電特性は自発分極の誘起効果として説明出来るため、PZT の圧電特性は(1)(2)に示すような理由で PZT 薄膜の単位格子にひずみが生じ、分極軸が変化する影響を受けると考えられる。ちなみに(2)と(3)において圧縮ひずみ下での格子の振る舞いを記述したが、引張下でも同様に格子はひずみを受け、同様の現象による圧電特性の変化を伴うと考えられる。上記の理由から柱状構造である PZT 薄膜面内の残留ひずみ量の変化が面内の構造及び結合状態を変化させ、圧電特性の変化につながるのではないかと考えられる。

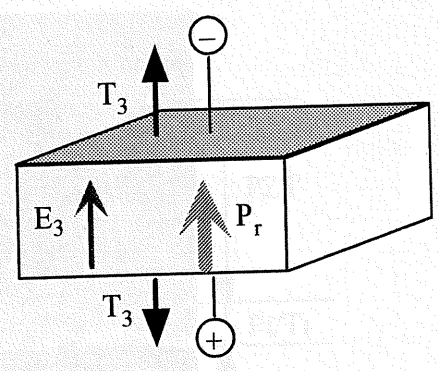
PZT 薄膜には結晶格子内のひずみが生む自発分極によって圧電特性が生じており、成膜後に格子内部のひずみ量を制御することができれば PZT 薄膜の圧電特性を改善することが可能になる。また薄膜内部のひずみ量は外部から機械的にひずみを与えることにより制御可能である。もし局所的に機械的ひずみを与えることで圧電特性を膜内で分布させることができれば、局所的に圧電マイクロデバイスの動作特性を制御する事が可能になる。これは成膜された圧電薄膜の特性に影響されず、目的とする圧電デバイスが構造設計できることを意味しており、従来の成膜条件を制御するだけでは実現されない新たな機能設計が可能となる。またバルクセラミックスを用いた 1-3 コンポジットの構造にみられるような圧電薄膜の圧電効果の分布を 2 次元的に、さらには 3 次元的に変化させた構造の作製も可能となり、圧電薄膜を用いたマイクロデバイスの可能性が広がると考えられる。

そこで本研究では圧電マイクロセンサー/アクチュエーターの動作特性を決める PZT 薄膜の圧電ひずみ定数 d_{31} が薄膜面内に生じる残留応力から受ける影響を検討し、圧電定数を改善する方法を検討する。まず、PZT 薄膜に生じる残留ひずみが圧電特性に及ぼす影響を調べるため、熱膨張率の異なるステンレス基板を用いて残留ひずみの異なる PZT 薄膜を成膜し、圧電特性に関して比較検討を行った。また圧電定数測定法として新たに引張試験装置を用いた圧電定数測定法を提案し、圧電定数の算出を行った。次に PZT 薄膜における誘電特性、及び強誘電特性の残留ひずみ依存性を調べた。また膜内に加える歪みによって誘電特性及び圧電特性が制御できることを確かめ、その影響を薄膜の内部構造の変化であるとして考察を加えた。これらの得られた結果を考慮して、PZT 薄膜の残留応力と圧電ひずみ定数の関係を求めることにした。



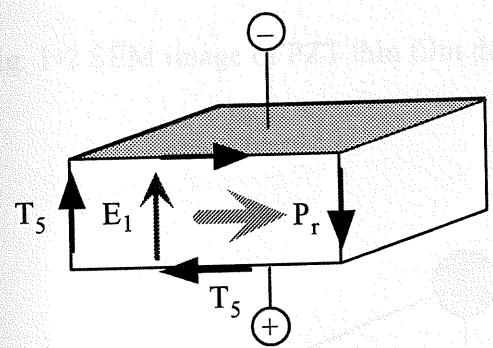
$$k_{31} = \sqrt{\frac{d_{31}^2}{\epsilon_{33}^T S_{11}^E}}$$

(a) Radial mode



$$k_{33} = \sqrt{\frac{d_{33}^2}{\epsilon_{33}^T S_{33}^E}}$$

(b) Longitudinal mode



$$k_{15} = \sqrt{\frac{d_{15}^2}{\epsilon_{11}^T S_{44}^E}}$$

(c) Shear mode

Fig.1-1 Piezoelectric effects of PZT thin film

Fig. 1-3 Perovskite structure of Pb(Zr,Ti)O3

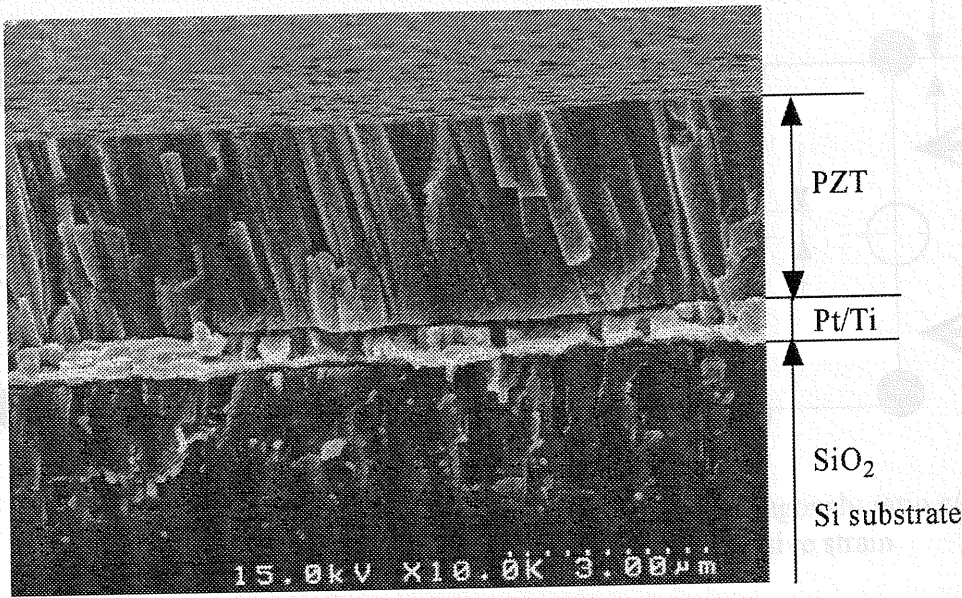


Fig. 1-2 SEM image of PZT thin film deposited on Pt/Ti/SiO₂/Si substrate

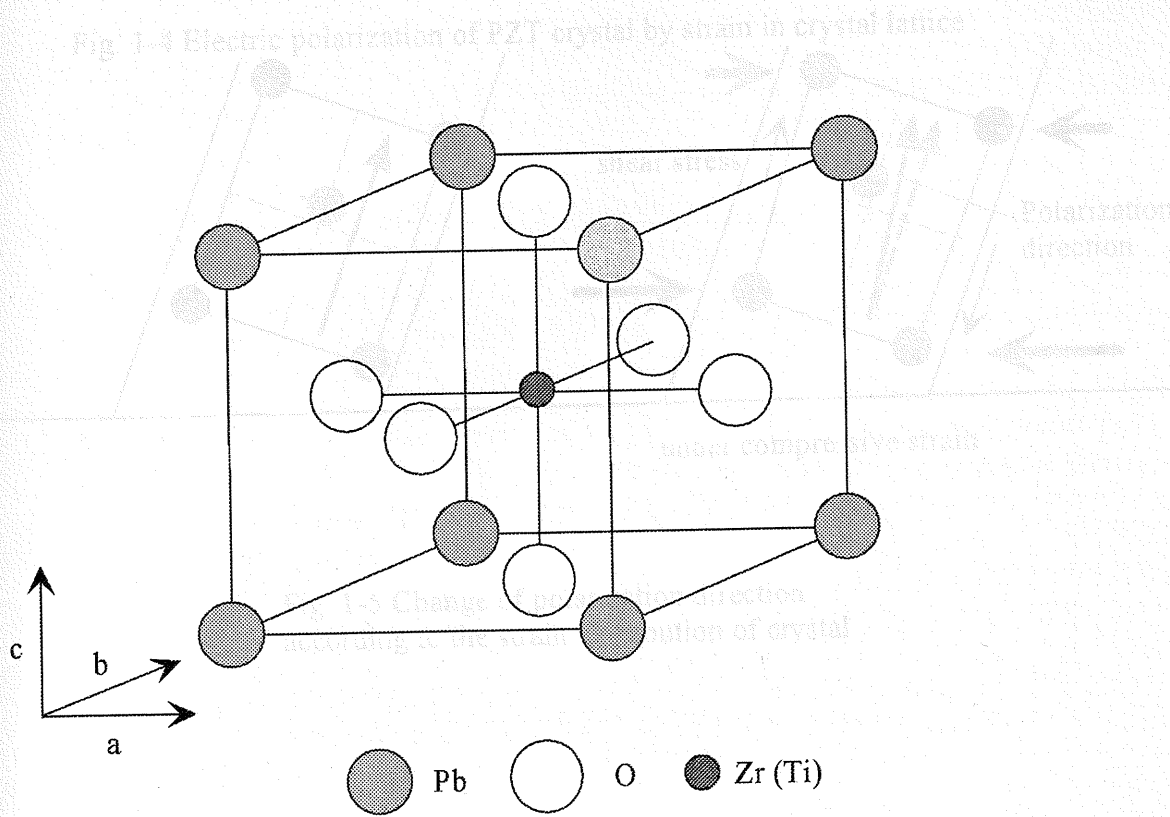
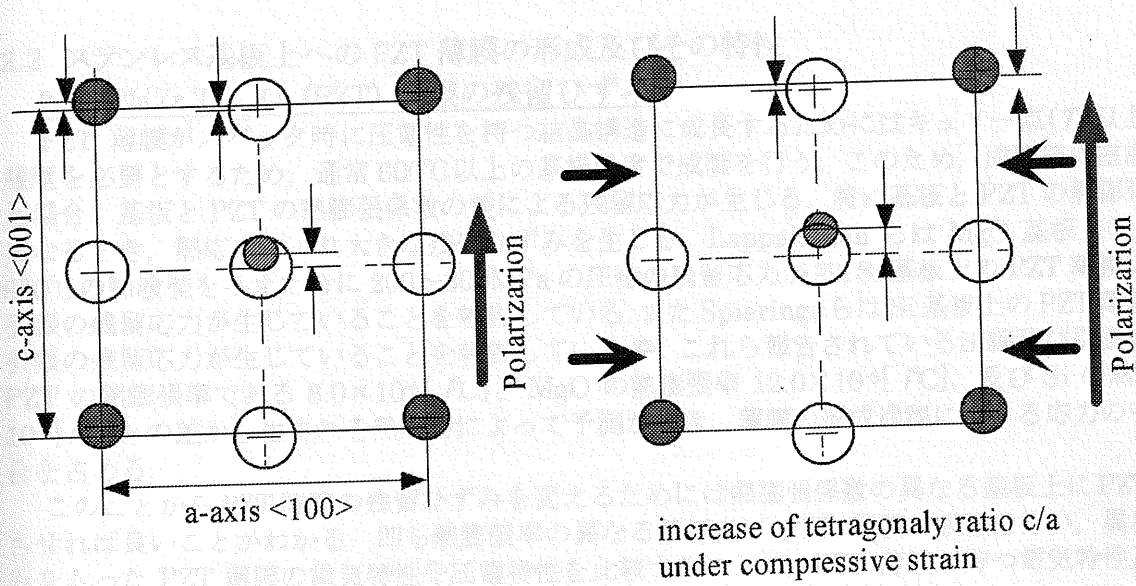


Fig. 1-3 Perovskite structure of Pb(Zr,Ti)O₃



● Pb ● Zr (Ti) ○ O

Fig. 1-4 Electric polarization of PZT crystal by strain in crystal lattice

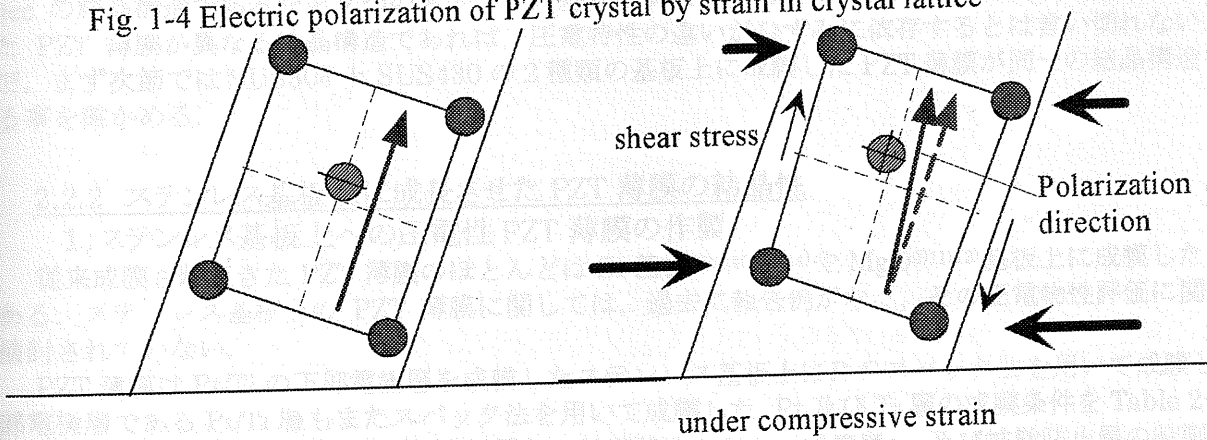


Fig. 1-5 Change of polarization direction according to the strain distribution of crystal

2.2 ステンレス基板上へのPZT薄膜の形成及びその特性

2.2.1 $\text{Pb}(\text{Zr}_x\text{Ti}_{1-x})\text{O}_3$ (PZT) 薄膜の残留ひずみ

PZT 薄膜がスパッタ時に圧電性を持つ結晶構造に成長するためにはキュリー点(T_c)以上の高温の熱履歴を必要とするため、通常 600°C以上の基板温度で成膜を行う。このため、成膜後に室温まで冷却した場合、基板とPZTの熱膨張係数の差による残留応力が生じる。特に基板とPZTの熱膨張率が大きく異なるとき、熱応力により大きな残留ひずみを生じる。LappalainenらはMgO基板上のPZT薄膜に650°Cの熱履歴を与えた時に200~300MPaの圧縮の残留応力が²¹⁾、Si基板上のPZT薄膜には400MPa引張の残留応力が生じていることを報告している。またSpieringsらはSi基板上のPZT薄膜に400MPa引張の残留応力が生じていることを報告している²²⁾。これら報告されている圧縮及び引張の残留応力はPZTの熱膨張率である $8.0 \times 10^{-6} [^\circ\text{C}]$ とMgOの熱膨張率 $12.0 \times 10^{-6} [^\circ\text{C}]$ 、及びSiの熱膨張率 $2.5 \times 10^{-6} [^\circ\text{C}]$ との差から生まれる熱応力によって予測ができ、薄膜の形成過程における応力の中で大きな割合を占める。

このことからPZT薄膜の残留ひずみを変えるためには熱膨張係数の異なる基板上にPZT薄膜を成長させれば良いことがわかる。即ち熱膨張率の異なる基板上にPZT薄膜の成膜を行い、異なる残留ひずみをもったPZT薄膜の電気特性や圧電特性を比較することで、PZT薄膜が持つ電気特性及び圧電特性のひずみ依存性を評価できると考えられる。

そこで本研究では基板として熱膨張係数の異なるSUS304とSUS430の2種類のステンレス基板を用いた。それぞれの基板の熱膨張係数はTable 2-1に示すようにSUS304が $17.8 \times 10^{-6} [^\circ\text{C}]$ 、SUS430が $11.9 \times 10^{-6} [^\circ\text{C}]$ の値を持つ²³⁾。PZTの熱膨張係数はバルクで $8.0 \times 10^{-6} [^\circ\text{C}]$ であり、PZT薄膜も同じ程度の熱膨張係数であると考えると熱膨張係数の差が大きいSUS304基板の方がPZT薄膜に大きな圧縮残留ひずみを生じると考えられる。しかし、SUS304がfccの結晶構造であるのに対し、SUS430はbccの結晶構造であるなど2つのステンレス基板は異なる性質を持つ。そのため2つの基板上に成膜したPZT薄膜が異なる結晶構造であれば、圧電特性の違いがひずみに依存するとは言い切れない。そこで、まず次節ではSUS304とSUS430の2種類の基板上に成膜したPZT薄膜が同一の結晶構造を有する事を確かめる。

2.2.2 ステンレス基板上に成長させたPZT薄膜の結晶性

1: ステンレス基板上への圧電性PZT薄膜の作製

従来成膜されてきたPZT薄膜のほとんどはSi基板⁷⁾⁸⁾¹⁰⁾¹²⁾¹⁴⁾やMgO⁹⁾¹¹⁾¹³⁾基板上に成膜したものである。ステンレス基板上のPZT薄膜に関しては、過去に報告例がなく、その圧電物性評価に関しても検討されていない。

PZT薄膜はPt/Tiの下部電極層を成膜したステンレス基板上にRFスパッタ法を用いて成膜した。下部電極層であるPt/Ti層もまたスパッタ法を用いて成膜した。Pt及びTi層の成膜条件をTable 2-2に示す。Ti層(30nm)は基板とPt下部電極層との付着特性の向上(密着層)、及び拡散防止層の役割を果たしている。Ptの下部電極層は200nm成膜した。PZTの圧電性はモルフトロピック相境界(Morphotropic Phase Boundary)であるZr/Ti比が53/47付近で最大となる。また、高温の雰囲気下での成膜中にPbOの蒸発が起こるため、本研究では $\text{Pb}(\text{Zr}_{0.53}\text{Ti}_{0.47})\text{O}_3$ にPbOを過剰に加えた焼結体をターゲットに使用した。圧電性を有するペロブスカイト型のPZT薄膜を得るためにはキュリー点以上の基板温度で成膜しなければならない。そこで成膜時の基板温度は650°Cとした。スパッタは6インチのターゲットに0.5kWの電力を印加し、約20nm/minの堆積速度で成長させた。150分間成膜した結果、約3 μm の厚さのPZT薄膜が得られた。PZT薄膜の成膜条件をTable 2-3に示す。

2: 結晶構造

成膜したPZTの結晶性はX線回折装置により評価した。X線源として $\text{CuK}\alpha_1$ ($\lambda=1.5405\text{\AA}$)を用いて測定したXRDパターンをFig. 2-1に示す。Fig. 2-1(a)はSUS304上に成膜したPZT薄膜のXRDパターンであり、(b)はSUS430上に作製したPZT薄膜のXRDである。Fig. 2-1の回折パターンに存在する $2\theta=21^\circ$ $2\theta=31^\circ$ $2\theta=38^\circ$ $2\theta=44^\circ$ のピークはそれぞれPZTペロブスカイトの(001)面、(101)面、(111)面、(200)面を示す。得られたXRDパターンから圧電性を示さないパイロクロア層の存在が認められなかったため、得られたPZT薄膜は圧電性を有するペロブスカイト層だけからなる結晶構造であることがわかった。またFig. 2-1のどちらのパターンとも(001)面が最大のピークを示していることから、薄膜が基板垂直方向に対して(001)面に優先配向している事がわかる。Fig. 2-1に見られる $2\theta=39.73^\circ$ のピークは下部電極として成膜したPtの(111)面である。以上の結果よりSUS304及びSUS430上の薄膜は

Pt 電極層から PZT 薄膜までほぼ同一の結晶構造をしていると考えられる。

次に薄膜の結晶性を電界放出型の SEM(FE-SEM)を用いて観察した。Fig. 2-2 に SUS304 上に成膜した PZT 薄膜の SEM 像を、Fig. 2-3 に SUS430 上に成膜した PZT 薄膜の SEM 像を示す。Fig. 2-2 及び Fig. 2-3 よりいずれの薄膜も各グレインに対応した柱状構造内で PZT が結晶成長しており、結晶成長した各々の柱状構造が面内で結合した多結晶構造であることがわかる。また PZT 薄膜表面の SEM 像から、柱状構造をしたグレインサイズは 300nm~400nm であった。X線回折及び SEM 像の結果から、ステンレス基板上に成膜された PZT 薄膜は両者とも柱状構造内で(001)面に優先配向しながら結晶成長しており、面内で柱状構造が連なった多結晶構造をしていることが確かめられた。

PZT 薄膜の状態図は Fig. 2-4 に示す通りであり、モルフォトピック相境界である Zr/Ti が 53/47 付近の組成で正方晶から菱面体晶へ構造相転位する。一方本研究で使用したターゲットの組成は Table 2-3 に示すように $[\text{Pb}(\text{Zr}_{0.53}, \text{Ti}_{0.47})\text{O}_3]_{0.8} + [\text{PbO}]_{0.2}$ であり、得られた PZT 薄膜がどちらの相になっているのかを調べる必要がある。そこで、次に高分解能 X 線回折装置により格子定数の算出、及び格子定数比 c/a の算出を行い、得られた PZT 薄膜の結晶構造を調べた。ここで c 軸とは正方晶の PZT 薄膜が分極を起こしている方向と定義し、 a 軸、 b 軸は c 軸に垂直な結晶軸とする。Fig. 2-1 の XRD パターンより得られた PZT 薄膜は基板垂直方向に(001)面に配向しているため、X 線を試料垂直面から入射させて(001)の面間隔を算出した。その結果、SUS304 基板上の PZT 面間隔は 4.133Å、SUS430 基板上の PZT の面間隔は 4.111Å と算出された。次に試料を $\chi=45^\circ + \alpha$ 傾けた(110)面に垂直な面から X 線を入射させ、(110)の面間隔を測定し、得られた値と(001)面の面間隔より格子定数比 c/a を算出した。得られた PZT 薄膜の格子定数を Table 2-4 に示す。SUS304 基板上の PZT は $c/a=1.034$ をとり、SUS430 基板上の PZT は $c/a=1.028$ であった。強誘電性を持つ PZT 薄膜の状態図は Fig. 2-4 に示す通りであり、Zr/Ti 比が 0.53/0.47 よりも大きな組成比で Fig. 2-5(a)に示す正方晶に、0.53/0.47 よりも小さな組成比で Fig. 2-5(b)に示す菱面体晶になる。Table 2-4 より格子定数比 c/a が 1 よりも大きく、格子が(001)軸方向にひずんでいることから、いずれのステンレス基板上に成膜した PZT 薄膜も正方晶ペロブスカイト構造である事がわかる。このときの PZT 薄膜の Zr/Ti 比を EPMA を用いて測定したところ、ほぼ 53/47 の比があることがわかった。また(001)面の格子定数は SUS304 基板と SUS430 基板上の PZT 薄膜でほぼ同一の値を示したが、(100)面の格子定数は SUS304 上に成膜した PZT 薄膜の方が大きく、格子定数比も SUS304 上の PZT 薄膜の方が大きな値を示す傾向が得られた。これはより大きな圧縮残留ひずみが SUS304 上の PZT 薄膜に生じていることを示し、面内の圧縮力によって分極軸方向である(001)方向に格子が大きくひずんだためと考えられる。

以上のことから SUS304 及び SUS430 基板上に成膜した PZT 薄膜は同様の結晶構造を持つことがわかった。よって次節以降で 2 種類のステンレス基板上に成膜した PZT 薄膜の電気特性、及び圧電特性を比較することで、電気特性、及び圧電特性の残留ひずみ依存性を評価することにした。

3: 引張試験装置を利用した圧電定数の算出

バルクの圧電材料に関する圧電定数測定法に関しては IRE(IEEE)スタンダードにもとづく、共振-反共振法によって求められる²⁴⁾。しかし、薄膜の圧電材料に関しては、バルクと同様の方法では圧電定数を測定できないため、種々の圧電定数測定法が提案されている²⁵⁾⁻²⁸⁾。本研究では従来片持ち梁状に固定した試験片に電圧を加えた時のたわみ振動から圧電定数を算出してきた。しかしながらこの方法では、カンチレバーの長手方向に分布が生じているときに正確な圧電定数の算出ができない。また膜厚方向に一樣でないひずみ分布や特性をもつ薄膜のひずみを間接的にたわみに置き換えて測定するため、カンチレバーの実際の振幅と理論値との間に誤差を生みやすく、必ずしも正しい圧電定数測定法であるとはいえない。また将来的に PZT 薄膜における圧電特性のひずみ依存性を調べるため、成膜後の基板にひずみを加えた試験片の圧電特性を測定を行う必要がある。しかし従来のカンチレバーによる圧電定数測定法ではひずみによって変形した試験片の圧電定数を測定することができない。

そこで本研究では PZT 薄膜内部のひずみ量を変化させた試験片の圧電特性を評価する為に、引張試験装置を用いた圧電ひずみ定数測定法を提案する。引張試験機を用いたこの方法では膜に生じたひずみを直接測定できるため、圧電効果によって間接的に生じるカンチレバーのたわみを測定する従来の方法よりも誤差の影響を少なくできると考えられる。Fig. 2-6 は圧電定数の測定系を示す。引張試験装置は既存の微小引張試験装置を利用した。試験片はアナログ式サーボ制御装置と、荷重測定用のロードセルを取り付けた両端にチャックを用いて直接固定する。引張方向の変位はサーボ制御装置によって動かし、その時の試験片に加わる荷重は、容量が 2.5[N]で直線性が 0.04[%]の小型のロードセルによって測定した。即ちロードセルからは 0.1[μg]の精度が保証されている。ロードセルの出力はストレインアンプによって増幅し、コンピューター上に取り込む。軸方向に引張荷重を与えて真直に固定した試験片の

PZT 薄膜に交流電圧を加えると、PZT 薄膜は圧電横効果(d_{31})によって面内に圧縮ひずみを生じて軸方向に引張力が働く。試験片は引張試験装置を用いて予荷重をかけているため、ロードセルが検出する引張荷重量が PZT によって生じた軸方向の引張力に相当する分だけ減少する。したがって PZT 薄膜のひずみによる荷重変化を固定端であるロードセルを用いて直接測定することができる。

初めに試験片の全面に上部電極をつけた短冊状の試験片を Fig. 2-6 に示す引張試験装置に固定し、ロードセルが検出する荷重変化を調べた。16[V]、0.05[Hz]の矩形波を入力したときのロードセルの荷重変化を Fig. 2-7 に示す。このとき、印加電圧 16[V]に対して PZT 薄膜の引張ひずみによって 6.7[gf]の荷重が減少し、圧電薄膜が生じる力

$$F = \frac{d_{31}V}{t} E_p A_p \quad (2-2)$$

の約 44%に相当する荷重変化を検出することが出来た。ここで V は印加電圧、 t は PZT の膜厚、 E_p は PZT のヤング率、 A_p は PZT 薄膜の断面積を示す。Fig. 2-7 の結果より、引張試験装置を用いて圧電定数の測定が可能であることが確かめられた。引張試験装置を用いたとき、端点はチャックによって試験片の上下面を押さえるだけであるため、試験片内部のひずみ全てを取り出すことができない。従って、ロードセルの荷重変化から PZT 薄膜が発生した荷重量を求める為には、解析による検証を行う必要がある。

次に圧電定数の測定を行う為、引張試験片形状に加工した試験片を用いて同様の実験を行った。測定に用いた引張試験片はゲージ部が 10mm×4.5mm で、チャックで固定する両端部の幅を拡大したダンベル形状に加工したものをを用い、中央のゲージ部にのみ Pt の上部電極を成膜した。PZT 薄膜に電界をかけたときに固定端で検出される荷重変化量を求めるため、NASTRAN を用いた有限要素解析によって計算を行った。応力-熱膨張連成解析モデルを応用した応力-圧電連成解析モデルを用い、Fig. 2-8 に示す引張試験片形状の 1/4 モデルを解析対象とした。PZT 薄膜及び SUS430 の物性値を Table 4-1 に示す。圧電定数に $d_{31} = -60 \times 10^{-12} [\text{m/V}]$ を与え、印加電圧を 24[V]として計算した時、チャックが検出する荷重変化は 13.0[gf]と求めた。チャック部及び試験片の弾性変形分を考慮すると、実際に PZT 薄膜が発生したひずみ量はチャック部にて検出される荷重変化量よりも大きいはずである。そこで実験で得られた荷重変化量は解析結果による補正を行うことで PZT 薄膜のひずみ量に変換し、圧電定数を算出した。

PZT 薄膜の引張試験片を用いて印加電圧と荷重変化の関係を求めた。0.05[Hz]で 8[V]から 24[V]の電圧を加えた時の印加電圧と応力変化の関係を Fig. 2-9 に示す。印加電圧に対してほぼ線形の関係が得られ、PZT 薄膜のひずみ量が測定されていることがわかる。また Fig. 2-9 で測定された荷重変化と印加電圧の関係が原点を通過しないのは、測定系に遊びがあるために PZT 薄膜で発生する微小なひずみに対して引張荷重が逃げているためではないかと考えられる。

Fig. 2-9 から得られた荷重変化から、チャック部の弾性変形分を補正することにより圧電定数を算出した結果、SUS430 基板上に成膜した PZT 薄膜の圧電定数は $d_{31} = -29.62 \times 10^{-12} [\text{m/V}]$ と求められた。今回チャック部での基板と試験片のすべりがよく生じていたため、圧電定数が実際よりも低い値として算出された可能性もある。今後正しい圧電定数を算出するためには、定数算出時の補正量や荷重検出量などの測定法をさらに検証していく必要がある。しかし、今回提案した引張試験装置を用いた圧電定数の算出法は PZT 薄膜が生じたひずみを直接測定する方法であり、PZT のひずみに伴うカンチレバーの振幅を間接的に求める圧電定数算出法よりも原理上の測定精度は高いと考えられる。本研究で提案した引張試験装置を用いた圧電定数測定法は正確な圧電定数を求める方法として期待される測定法であり、また本研究の目的とするひずみを加えたときの圧電特性依存性の測定に利用することが出来ると考えられる。

Table 2-1 Properties of SUS304 and SUS430*¹

	Young's modulus [GPa]	α (R. T. ~ 650°C) [/°C]
SUS304	197	18.7×10^{-6}
SUS430	204	11.9×10^{-6}

Table 2-2 Conditions for depositing Pt/Ti by sputtering

Parameter	Conditions
Substrate temperature	650 °C
Sputtering gas	Ar
Gas flow rate	25 _{SCCM}
Gas pressure	3.0 Pa
RF Power	200 W
Sputtering time of Ti	20 min
Sputtering time of Pt	30 min

Table 2-3 Conditions for depositing Pb(Zr,Ti)O₃ by sputtering

Parameter	Conditions
Substrate	Pt/Ti/SUS304, Pt/Ti/SUS430
Target	$[\text{Pb}(\text{Zr}_{0.53}\text{Ti}_{0.47})\text{O}_3]_{0.8} + [\text{PbO}]_{0.2}$
Substrate temperature	650 °C
Gas composition	Ar(9 _{SCCM}) + O ₂ (1.0 _{SCCM})
Gas pressure	4.0×10^{-1} Pa
RF Power	500 W
Deposition rate	17 ~ 20 nm/min

*¹ 長谷川正義監修, ステンレス鋼便覧, 日刊工業社, (1973)

Table 2-4 Lattice constant of PZT thin film on SUS304 and SUS430 substrates

	lattice constant [Å]			
	(001)	(100)	c/a	(ca ²) ^{1/3}
PZT/SUS304	4.133	3.997	1.034	4.042
PZT/SUS430	4.111	3.999	1.028	4.036

Table 2-5 coefficients in simulation

	Parameter	Conditions	
PZT	c_{11}	8.73×10^{10}	$[\text{N/m}^2]$
	c_{12}	-1.55×10^{10}	$[\text{N/m}^2]$
	c_{13}	-2.43×10^{10}	$[\text{N/m}^2]$
	c_{33}	7.50×10^{10}	$[\text{N/m}^2]$
	c_{44}	2.07×10^{10}	$[\text{N/m}^2]$
	d_{31}	-63.7×10^{-12}	$[\text{m/V}]$
	d_{33}	152×10^{-12}	$[\text{m/V}]$
SUS430	ν	2.04×10^{11}	$[\text{N/m}^2]$
	ν	0.3	

Fig. 2-1(a) X-ray diffraction of PZT thin film deposited on SUS304 substrate

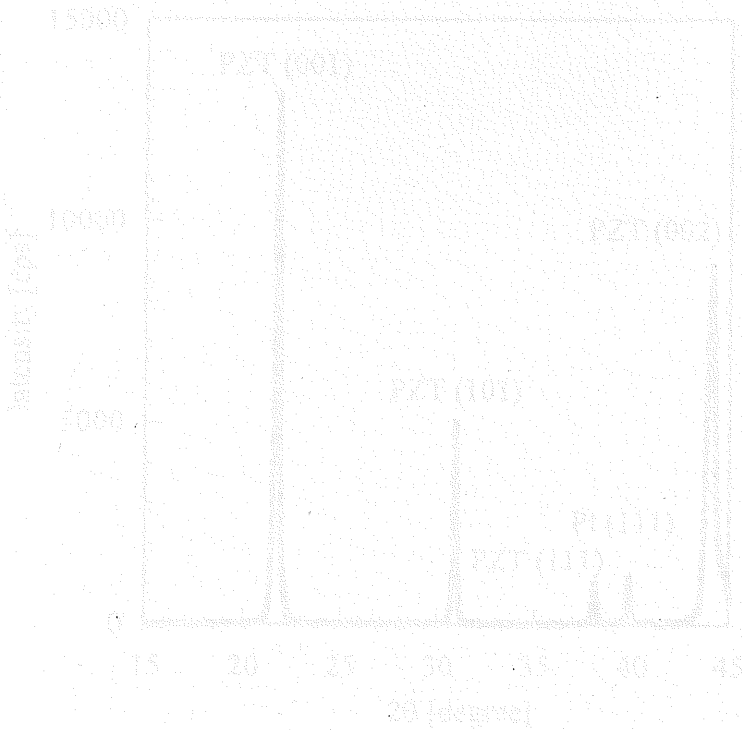


Fig. 2-1(b) X-ray diffraction of PZT thin film deposited on SUS430 substrate

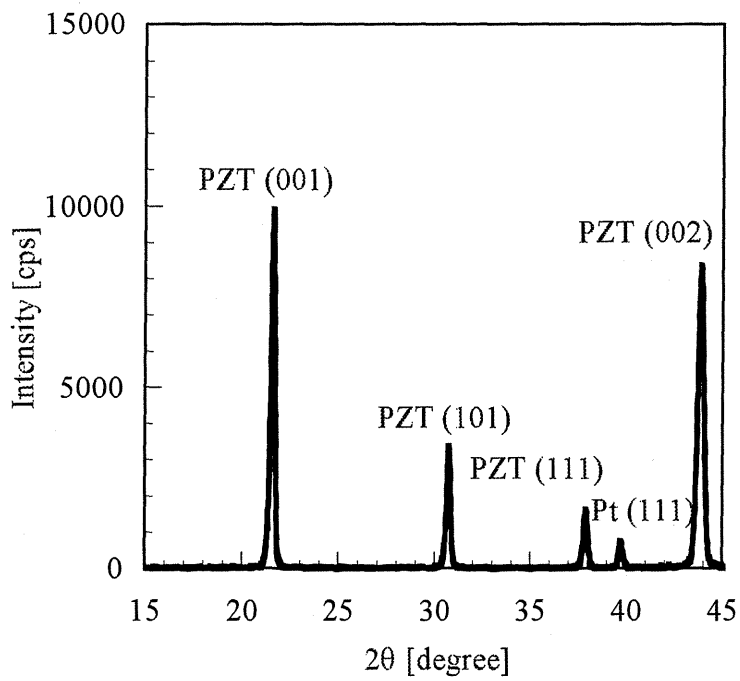


Fig. 2-1(a) X-ray diffraction of PZT thin film deposited on SUS304 substrate

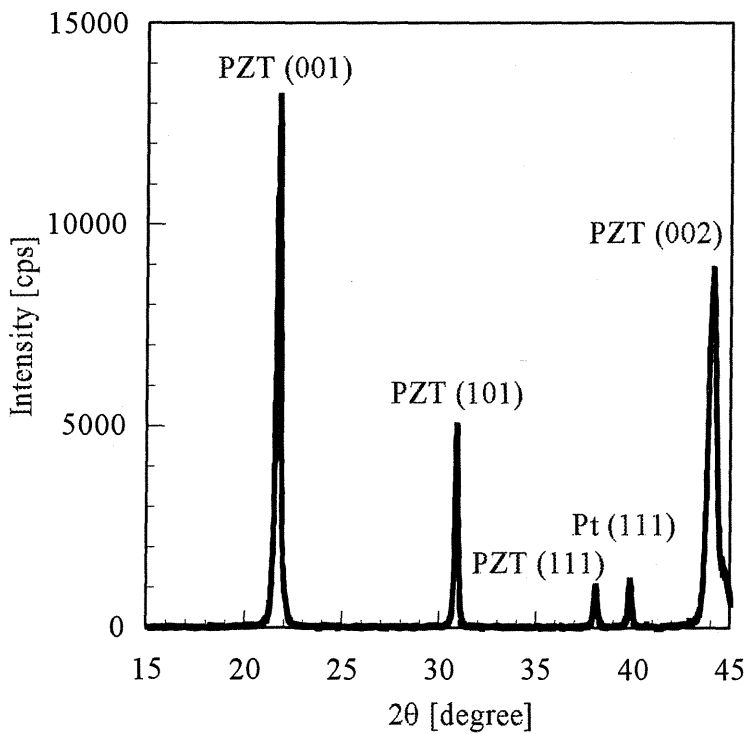
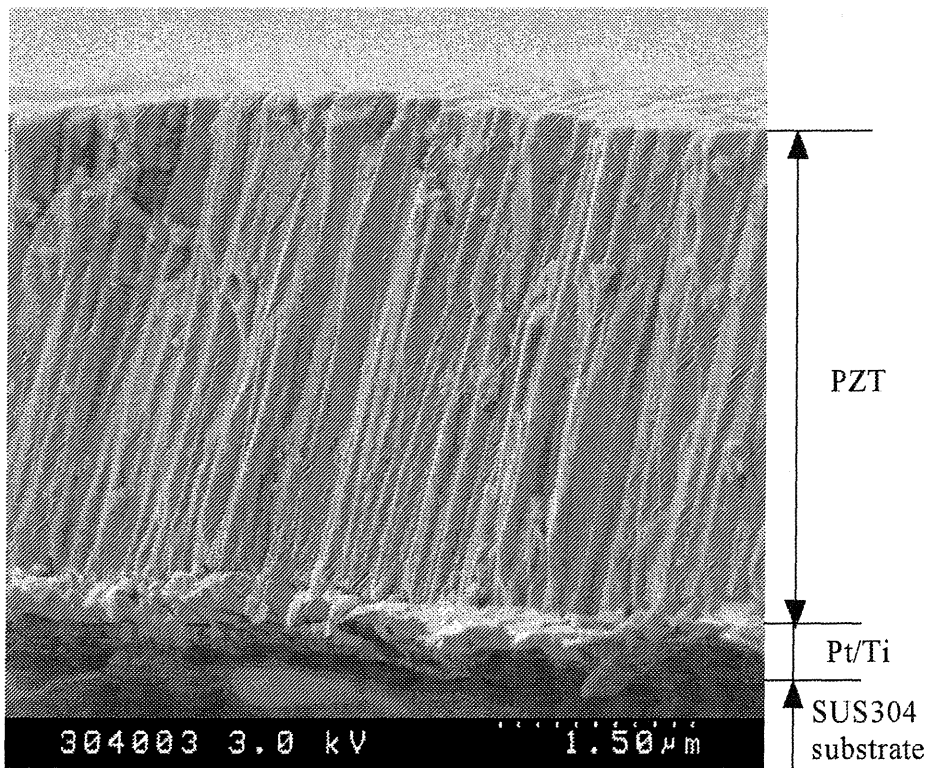
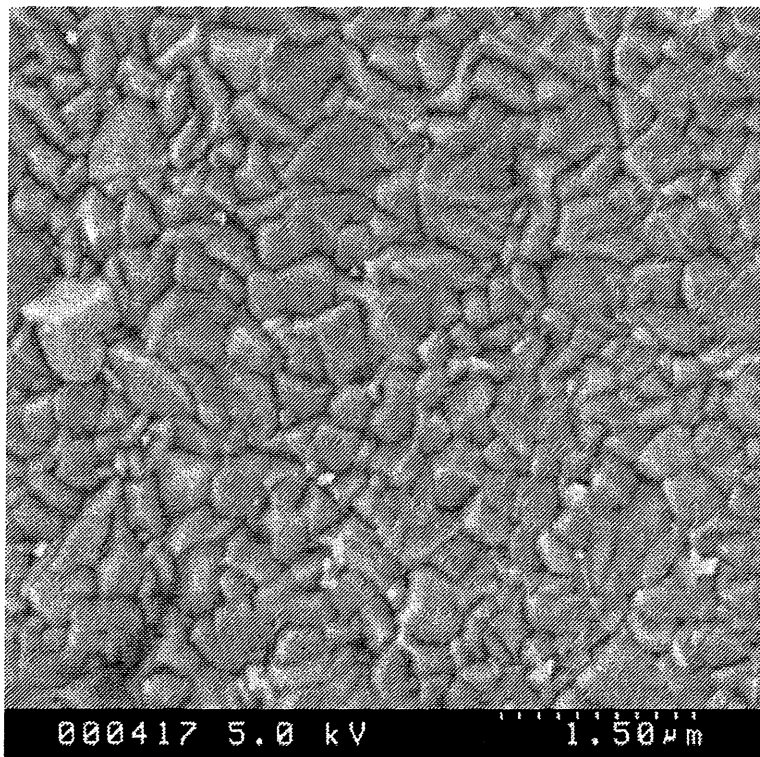


Fig. 2-1(b) X-ray diffraction of PZT thin film deposited on SUS430 substrate

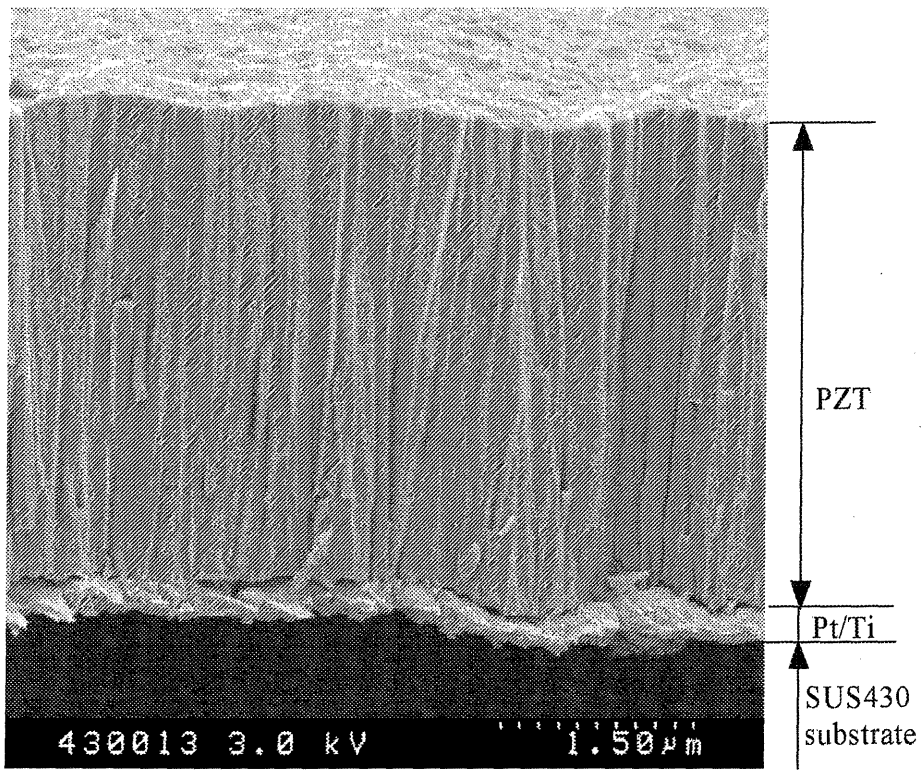


(a) cross section

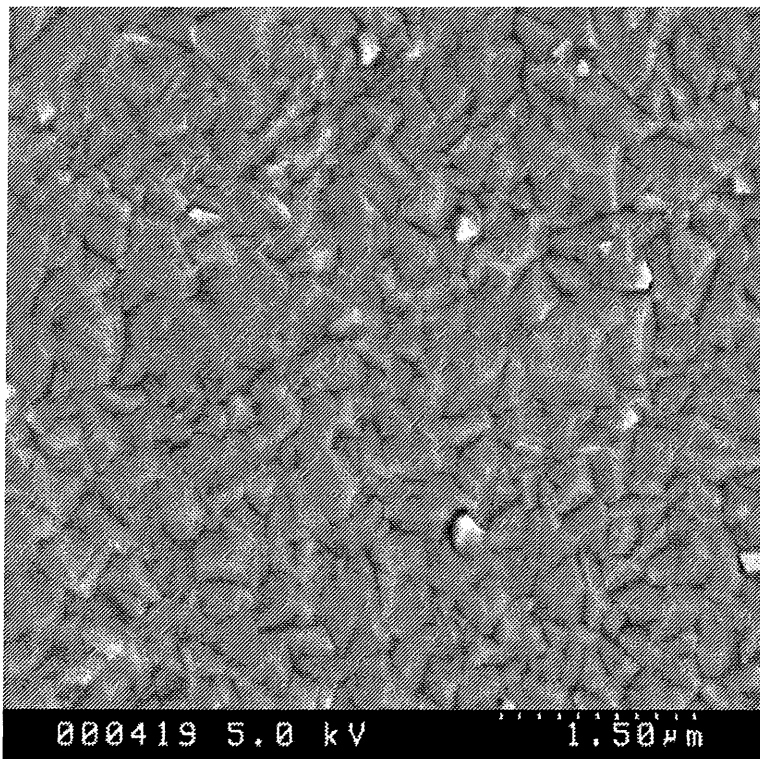


(b) surface

Fig. 2-2 SEM images of PZT thin film deposited on SUS304 substrate

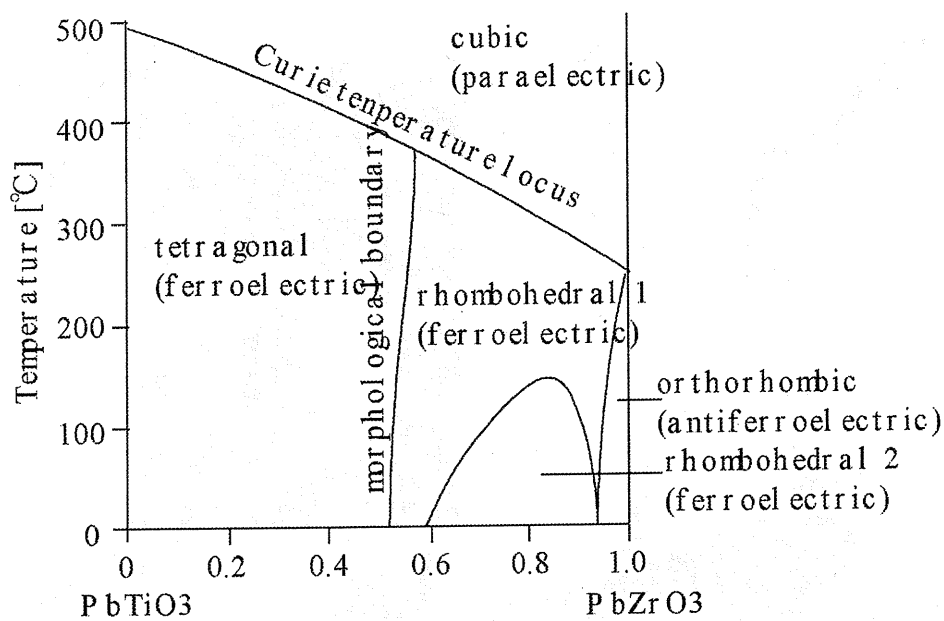


(a) cross section



(b) surface

Fig. 2-3 SEM images of PZT thin film deposited on SUS430 substrate



Fraction of zirconium in $\text{PbTi}_{1-x}\text{Zr}_x\text{O}_3$

Fig 2-4 Equilibrium phase diagram for PZT

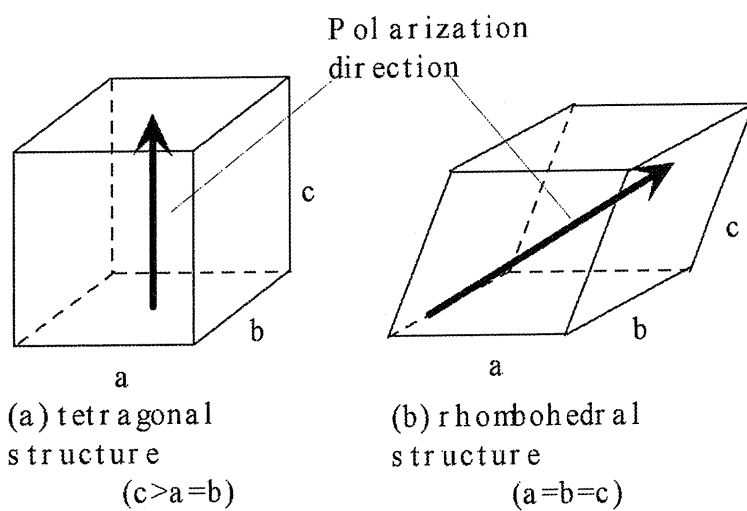
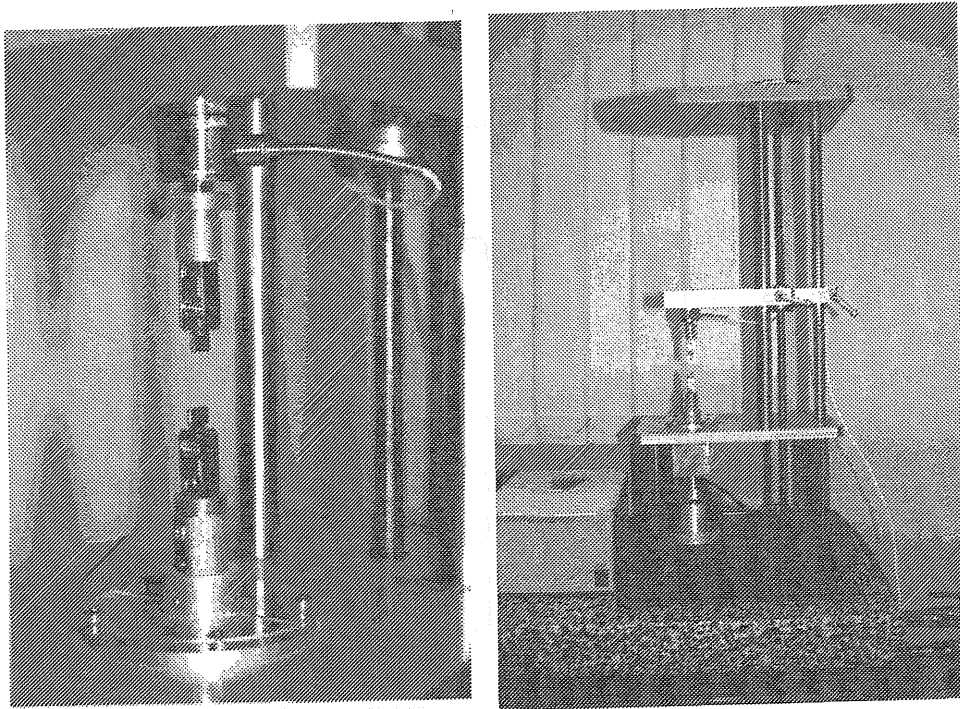
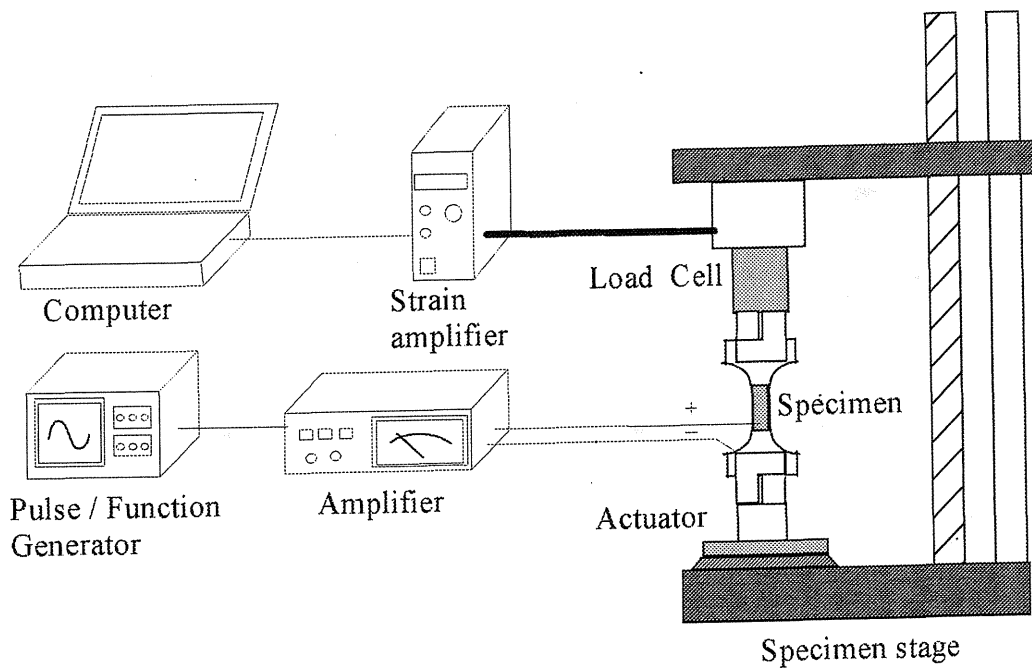


Fig 2-5 Unit cell of ferroelectrics in perovskite structure



(a) Photographs of micro tensile test system



(b) Diagram of micro tensile test system

Fig. 2-6 Schematics for measuring piezoelectric constant d_{31} by micro tensile test system

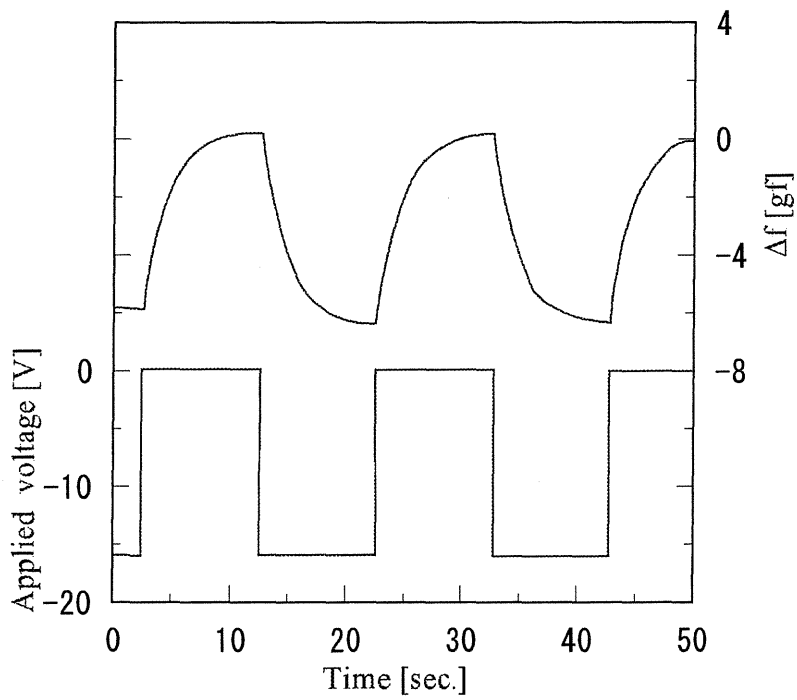


Fig. 2-7 Relationship between applied alternative voltage and change of load in PZT/SUS430 tensile specimen

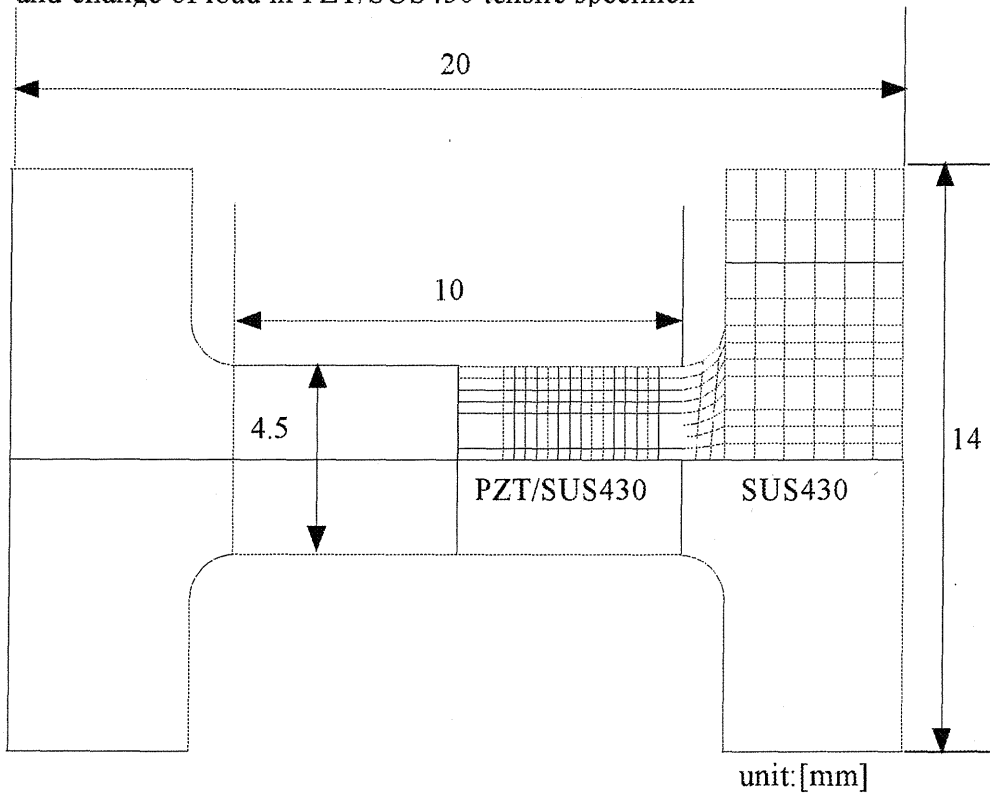


Fig. 2-8 Model for finite element analysis

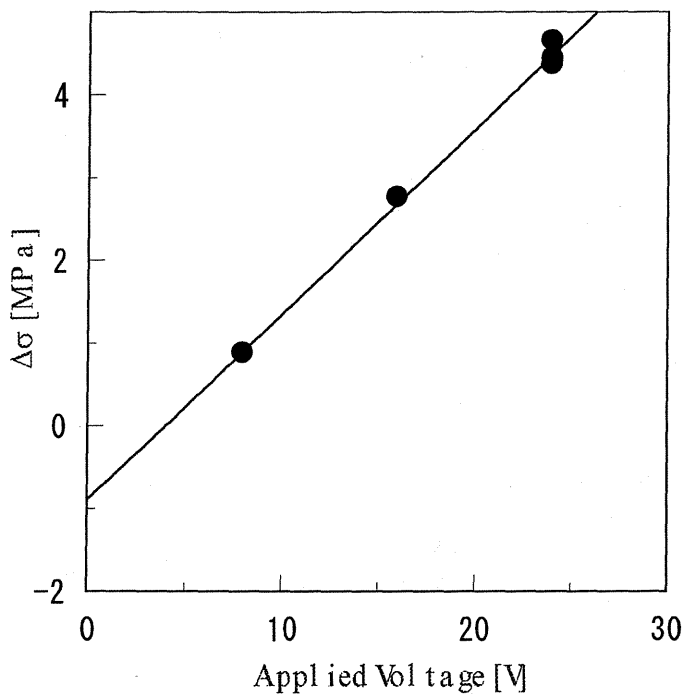


Fig. 2-9 Piezoelectric stress for applied voltage in tensile test system for PZT/SUS430 tensile specimen

2.3 PZT 薄膜における電気特性のひずみ依存性

2.3.1 はじめに

前章において、2種類のステンレス基板上に圧縮残留ひずみの異なる PZT 薄膜を作製し、その結果異なる特性を持つステンレス基板上に同じ結晶構造をもち、膜内の圧縮歪みが異なる PZT 薄膜を作製できたことを述べた。そこで本章では第2章で得られたステンレス基板上の PZT 薄膜を用いて、誘電率及び強誘電率のひずみ依存性について詳しく検討を行い、ひずみに対して生じる薄膜の構造変化と電気特性の依存性についても調べることにした。圧電薄膜の電気特性は圧電特性と同じく圧電性を有するペロブスカイト構造の結晶の振る舞いによってもたらされる現象である。本章において電気特性、及び膜内の構造と印加ひずみの関係が得られれば、圧電特性のひずみ依存性に関する重要な指針が得られるものと考えられる。

従来誘電率など電気特性に関する分野で、PZT 薄膜のひずみ依存性に関する研究が行われてきている。これは圧電薄膜が DRAM 用高誘電率材料としての応用、或いは P-E ヒステリシス特性を利用した不揮発メモリ材料としての応用を目的としているからである。R. F. Brown²⁹⁾は PZT セラミックスの誘電特性に及ぼす応力の影響を検討し、400MPa の圧縮応力に対して誘電率が約 50% になることを示し、またその結果に対して理論的な考察を加えている。しかしながら薄膜内部のひずみはバルクと異なり薄膜垂直方向に応力が解放されるため、誘電特性や強誘電特性といった電気特性のひずみ依存性は異なる傾向を示す可能性がある。そこで薄膜の分野においては J. F. Shepard³⁰⁾が PZT 薄膜に関して電気特性の応力依存性を検討しているが、誘電率の印加応力に対する変化が試料によって異なる傾向を示しており、十分な結論を導けていない。

本章では電気特性のひずみ依存性を確かめるため、はじめに SUS304, SUS430 の基板上に成膜した PZT 薄膜の誘電特性、及び強誘電特性の比較を行い、残留ひずみとの関係について検討した。次に成膜された各々の PZT 薄膜に対して外部からひずみを加えた時の誘電率及び強誘電特性の変化からひずみ依存性を検討した。さらに電気特性のひずみ依存性に関する結果から、印加ひずみが薄膜の格子内部に引き起こす構造変化の予測を行った。

2.3.2 誘電特性及び強誘電特性の残留ひずみ依存性

第2章の Table 2-2, Table 2-3 に示す条件で作製した PZT 薄膜の誘電特性を調べるため、直径 0.3mm

の金の上部電極を真空蒸着法により成膜し、インピーダンスアナライザを用いて 1kHz の条件で薄膜の比誘電率 ϵ_r 、及び誘電損失 $\tan\delta$ を測定した。その結果、Table 3-1 に示すように SUS304 基板上の PZT 薄膜は比誘電率は $\epsilon_r = 220$ 、誘電損失は $\tan\delta < 2.4\%$ の値をとり、SUS430 基板上の PZT 薄膜は比誘電率は $\epsilon_r = 380$ 、誘電損失は $\tan\delta < 3.2\%$ であった。いずれの比誘電率もバルクの比誘電率の値に比べると低い値であるが、SUS430 基板上の PZT 薄膜は SUS304 基板の PZT 薄膜に比べて常に 2 倍近い値になっている。次にソーヤ・タワー回路を用いて $\pm 80V$ 、1kHz の条件で PZT 薄膜の Polarization-Electric field ヒステリシスループ（以下 P-E ヒステリシスループ）を測定し、強誘電特性を評価した。誘電特性の測定時と同様に直径 0.3mm の金の上部電極を真空蒸着法により成膜している。Fig. 3-1 に SUS304、及び SUS430 上の PZT 薄膜の P-E ヒステリシスループを示す。縦軸は薄膜の分極量、横軸は電界の強さである。ヒステリシスループは原点に対して非対称であり、縦軸、横軸の正方向にそれぞれ少しずつシフトしている。これは作製した PZT 薄膜が基板垂直方向に自発分極を持つことを示す。この結果は前述の結晶解析結果と同様に PZT 薄膜が基板垂直方向に対して (001) 方向に配向し、自発分極を持つという結果と一致する。得られた PZT 薄膜の残留分極値及び抗電界値を Table 3-1 に示す。PZT 薄膜の残留分極値はバルクの PZT のそれ ($> 30 \mu C/cm^2$) に比べても大きな値であり、十分な強誘電特性を有しているといえる。従ってステンレス基板上に成膜した PZT 薄膜はポーリングを行わない状態で十分な強誘電性を有する。また残留分極値 P_r は SUS304 上の PZT 薄膜の方が大きな値を示した。残留分極は $E=0$ における薄膜の電圧印加方向における分極量を示している。即ち第 2 章の Table 2-4 に示す格子定数比 c/a 値の関係と同様に、圧縮残留ひずみの大きい SUS304 基板上の PZT 薄膜の方が基板垂直方向に大きな残留分極を持つものと考えられる。

以上の結果から圧縮残留ひずみが小さい SUS430 基板上の PZT 薄膜が約 2 倍近く高い比誘電率を持ち、残留分極値が小さな値を示すことがわかった。これは薄膜内部の残留ひずみが増加することによって薄膜の構造が変わり、電気特性にひずみ依存性が存在することを意味する。そこで次節では個々の PZT 薄膜に対して外部からひずみを印加したときに誘電特性及び強誘電特性がひずみに対応して変化し、またそれらを実際にひずみによって制御できるかを詳細に検討した。

2.3.3 誘電特性のひずみ依存性

前節では熱膨張率の異なる基板上に PZT 薄膜を作製し、残留ひずみの異なる PZT 薄膜を作製することで電気特性や圧電特性に変化が生じることが確かめられた。これは薄膜内部のひずみを変化させることで、PZT 薄膜の特性を簡単に制御できることを示す。次に試験片に曲げモーメントを加えることで PZT 薄膜内部に圧縮、及び引張りひずみを生じさせ、PZT 薄膜の誘電特性、及び強誘電特性の印加歪みに対する傾向を測定した。Fig. 3-2 は誘電特性のひずみ依存性を調べる評価装置である。 $l=20mm$ 、 $b=5mm$ の短冊状の試験片を片持ち梁形状に固定し、片持ち梁先端に荷重 W を加えることによって PZT 薄膜に曲げ応力を加えた。片持ち梁先端から距離 x にある薄膜部が曲げ応力によって受けるひずみは以下の式で計算される。

$$\begin{aligned} \epsilon_{PZT} &= \frac{M}{E_p I_p + E_s I_s} \cdot y \\ &= \frac{Wx}{E_p \left(\frac{bt^3}{12} + \left(\frac{h}{2} \right)^2 bt \right) + E_s \cdot \frac{bh^3}{12}} \cdot \frac{h}{2} \end{aligned} \quad (3-1)$$

ここで E_p は PZT のヤング率、 I_p は PZT の断面二次モーメント、 E_s は基板のヤング率、 I_s は基板の断面二次モーメント、 y は薄膜の中立面から距離である。ここで薄膜の厚み ($3\mu m$) は基板の厚み ($100\mu m$) に比べて非常に小さい為、中立面は基板中央であると近似した。薄膜には曲げによって最大 3×10^{-3} の引張りひずみ、または圧縮ひずみが生じる。PZT 薄膜の誘電率、及び誘電損失 $\tan\delta$ の測定には LCR meter を用いた。試料の上部電極はスパッタリングにより Pt 薄膜を成膜し、銀ペーストにより配線を引き出した。

Fig. 3-3 はステンレス基板上の PZT 薄膜に加えたひずみに対する誘電率 C_p の変化を示す。縦軸は曲げ変形時の誘電率 C_p を無ひずみ状態における誘電率 C_{p0} で割り無次元化している。薄膜の誘電率は引張りひずみ下ではほぼ線形的に増加し、圧縮ひずみ下では線形的に減少する傾向を示している。誘電率の減少及び増加の割合は引張り及び圧縮ひずみが 3×10^{-3} のとき、SUS430 基板上の PZT 薄膜で 15% 程度、SUS304 基板上の PZT 薄膜で 10% 程度の増加、減少であった。また同じひずみ量の圧縮ひずみ及び引張りひずみを加えた時、誘電率は引張りひずみを加えた時の方が大きく変化していることがわかる。これは

ステンレス基板上の PZT 薄膜が大きな圧縮残留ひずみを持つために、圧縮ひずみ下でのひずみ依存性の影響が低減されるためではないかと考えられる。また誘電率の変化はひずみに対して可逆的であり、ひずみを除荷することにより元の誘電率 C_{po} に回復することが確かめられた。これから PZT 薄膜内に生じたひずみによる誘電特性の変化は薄膜内部の弾力的な変形が引き起こしたものであり、格子内の分極の生成や消滅などの不可逆的な変化によるものではない事がわかる。

2.3.4 強誘電特性のひずみ依存性

次に SUS430 基板上に成膜した PZT 薄膜の強誘電特性の変化を調べた。PZT 薄膜に引張ひずみおよび圧縮ひずみを加えた時の P-E ヒステリシスループを Fig. 3-4 に示す。青線は成膜状態での PZT 薄膜のヒステリシスループを示し、引張ひずみ及び圧縮ひずみが生じた時のヒステリシスループも同様に示す。引張ひずみ下でヒステリシスループが小さくなり、強誘電特性が悪くなる事がわかった。逆に圧縮ひずみ下では強誘電特性が向上したことがわかる。またこのヒステリシスループの変化も誘電率と同様に印加ひずみに対して可逆的であり、除荷により元のヒステリシスループに回復した。この事から薄膜内部構造の弾力的な変化が残留分極の増加、減少を生んだと考えられる。Fig. 3-5 は SUS430 基板上に成膜した PZT 薄膜をひずませたときの残留分極値 P_r 、飽和分極値 P_{sat} 、及び抗電界値 E_c の変化である。飽和分極値、残留分極値、抗電界値すべてが引張ひずみ下で減少し、 4.2×10^{-3} の引張ひずみで残留分極値が約 10% 減少する事が確かめられた。残留分極値が増加したのは、薄膜面内方向からのひずみにより結晶格子が可逆的な弾性変形を起こし、基板垂直方向の分極量が増えるように変形を起こしたためと考えられる。また同様に圧縮ひずみ下で抗電界値が増大しているのは残留分極値の増加により分極の反転に要する抵抗が増し、分極の反転に必要な電界が上がったためであると考えられる。即ち圧縮ひずみによる格子の弾性変形の影響は基板垂直方向の自発分極の増大、及び自発分極の反転にかかる抵抗の増大を引き起こすと考えられる。これらの考察から考えられる格子内部の構造変化の影響は次節にて検討する。

また膜内の圧縮ひずみによって強誘電ヒステリシスが強くなる事が Fig. 3-4 及び Fig. 3-5 より示された。これは前節の Fig. 3-1 において大きな圧縮残留ひずみを持つ SUS304 基板上の PZT 薄膜が強い強誘電ヒステリシスを示した結果と同様に、薄膜基板垂直方向の自発分極が PZT 薄膜の強誘電特性の違いが膜内の圧縮残留ひずみの違いで説明できることを示す。

2.3.5 印加ひずみに対する結晶構造の変化

本章ではこれまでに電気特性の残留ひずみ依存性、及び印加歪み依存性を検討してきた。その結果誘電特性、及び強誘電特性を持つひずみ依存性は PZT 薄膜内のひずみによって生じる薄膜の弾力的な変形が原因であり、これは第 1 章で我々が示した歪みによる格子の変形によるものであると考えることが出来る。

まず PZT 薄膜に圧縮ひずみがしょうじたとき、Fig. 1-4 に示すように結晶の非対称性が減少することによる電気特性の変化が説明できる。PZT 薄膜内部は平面応力状態であるため、圧縮歪みが増加したときには格子横方向からの圧縮応力が残留し、増大する。その結果、格子内部の歪みは応力が開放される面内垂直方向に生じ、格子の非対称性が増加する。これは薄膜の格子定数比 c/a が増大することを示し、自発分極量が増えることから強誘電特性が増加することが証明できる。

次に薄膜が面内垂直方向に対して斜め方向に成長している Fig. 1-5 の場合を想定する。先程と同様に PZT 薄膜内部は平面応力状態であると考えられる。また薄膜は基板垂直方向にも歪み分布が生じているため、結晶格子は格子の上面と下面の圧縮力の差によりせん断力が生じる。このとき単位格子の中心から $\langle 001 \rangle$ 方向に変位していた Zr(Ti) サイトの原子はせん断力によって基板垂直方向に変位を生じると考えられる。その結果、結晶格子の分極方向は圧縮ひずみをうける前の状態よりも基板垂直方向に回転し、強誘電特性における残留分極の増加を誘発する。また Zr(Ti) サイトの原子が $\langle 001 \rangle$ 軸の変位方向からずれることによって分極の反転に対する抵抗が増大し、その結果抗電界値が増加したものと考えられる。

一方誘電率についても同様に説明できる。誘電率の値は異方性であり、c 軸の誘電率 ϵ_{r33} は a 軸の誘電率 ϵ_{r11} より小さい。即ち圧縮ひずみにより基板垂直方向に分極軸がそろうと PZT 薄膜の見かけの誘電率 ϵ_{r33} は減少すると考えられる。これは MgO 基板上に成膜したエピタキシャル単結晶薄膜が小さな誘電率しか示さない理由と同じであると考えられる³¹⁾。即ち第 1 章で考えた歪みによる格子変形のみならず電気特性の歪み依存性の結果からもその妥当性が示される。

PZT 薄膜における電気特性のひずみ依存性を調べる事により以下の知見を得ることが出来た。 3×10^{-3} 程度までの印加ひずみは薄膜の内部構造に弾力的な変化を生じさせ、薄膜の電気特性に可逆的な変

化を与える事が確かめられた。引張ひずみにおいては誘電率が増加し、強誘電ヒステリシスの残留分極値及び抗電界値が下がり、強誘電特性そのものが悪化した。これは薄膜内部に加わる引張ひずみによって、分極軸の回転が起こったことと結晶格子の非対称性、即ち格子定数比 c/a 値が減少して自発分極が減少したことによる影響の2つが考えられる。

また誘電特性及び強誘電特性の印加ひずみ依存性と第2章で確かめた残留ひずみ依存性から薄膜内部の残留ひずみ分布を与えることによって電気特性の改善、または制御が行える事がわかった。本研究では PZT 薄膜に面内方向のひずみを与えることで圧電特性が変化することを示したが、そのことは成膜後に基板にひずみを与えることによって圧電特性を改変できるということである。即ち PZT の成膜後に基板に歪みを与えて圧電特性が面内に分布する圧電薄膜を作製することが出来れば、新たな特性を持たせた圧電マイクロアクチュエーターの設計を可能にすると考えられる。さらに歪みが圧電特性に与える影響を研究するには成膜時に PZT 薄膜内部のひずみ量を曲げ応力や引張応力等で機械的に変化させることで成膜後の残留ひずみを制御し、任意に薄膜の圧電定数を制御できると考えられる。

Table 3-1 Dielectric, ferroelectric, and piezoelectric properties of PZT thin films

Sample	ϵ	$\tan\delta$ [%]	Pr [$\mu\text{C}/\text{cm}^2$]	Ec [kV/cm]	d_{31} $\times 10^{-12}$ [m/V]
PZT/Pt/Ti/SUS304	244.7	2.46	55.0	120	-59.3
PZT/Pt/Ti/SUS430	384.7	2.39	50.2	110	-30.2
PZT/Pt/Ti/SiO ₂ /Si	471.5	2.51	4.45	84.5	
(reference)					
PZT/Pt/Ti/MgO ^{*2}	150-200	< 2.00	> 50	150-200	-100
PZT ceramics ^{*3}	730		> 30		-93.5

^{*2} I. Kanno, S. Fujii, T. Kamada, and R. Takayama, Appl. Phys. Lett., Vol.70, 1378-1380 (1997)

^{*3} 岡崎清, セラミック誘電体工学, 学献社, 334-335 (1969)

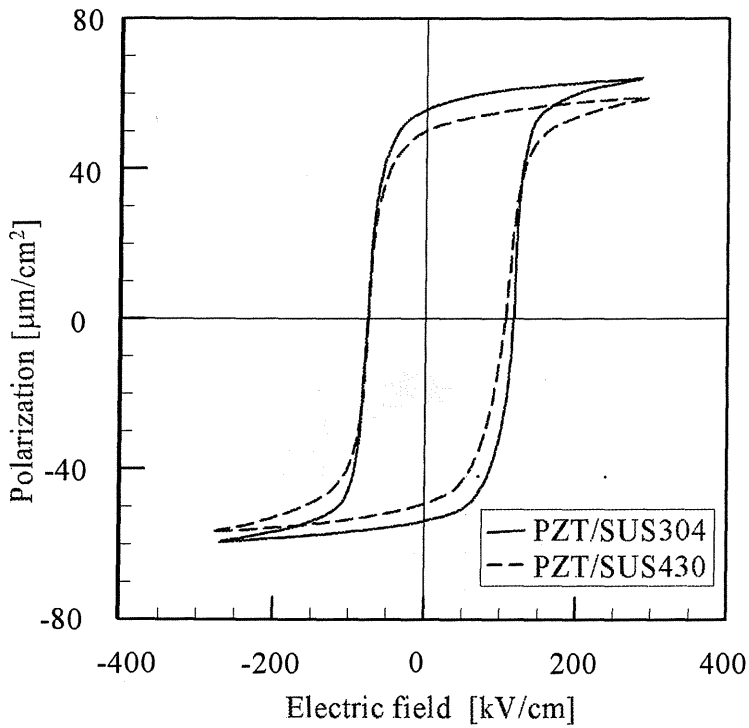


Fig. 3-1 Polarization v.s. electric field hysteresis loop for PZT thin films deposited on stainless steel substrate

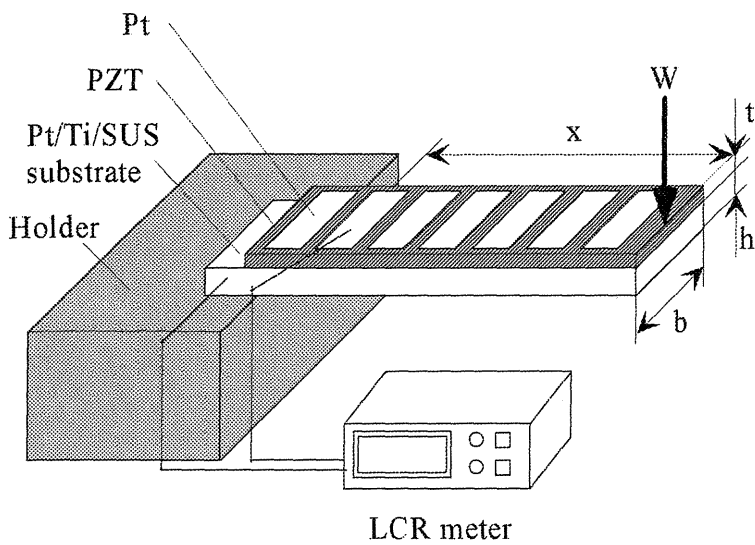


Fig. 3-2 Measurement system for evaluating dependence of dielectric constant on applied bending strain

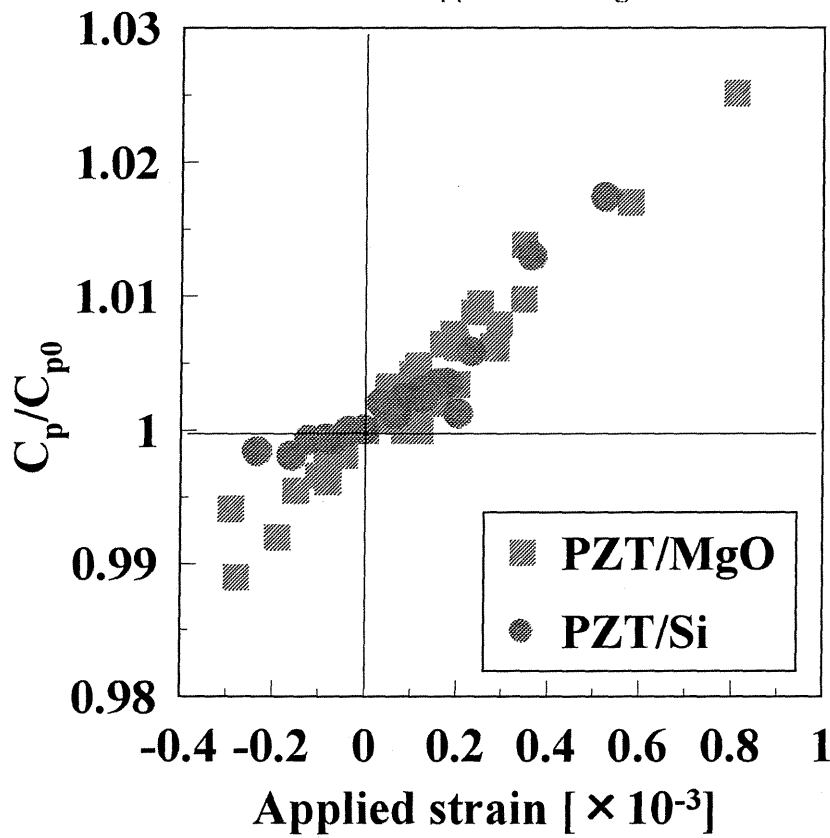


Fig.3-3 Dependence of dielectric constant on applied strain

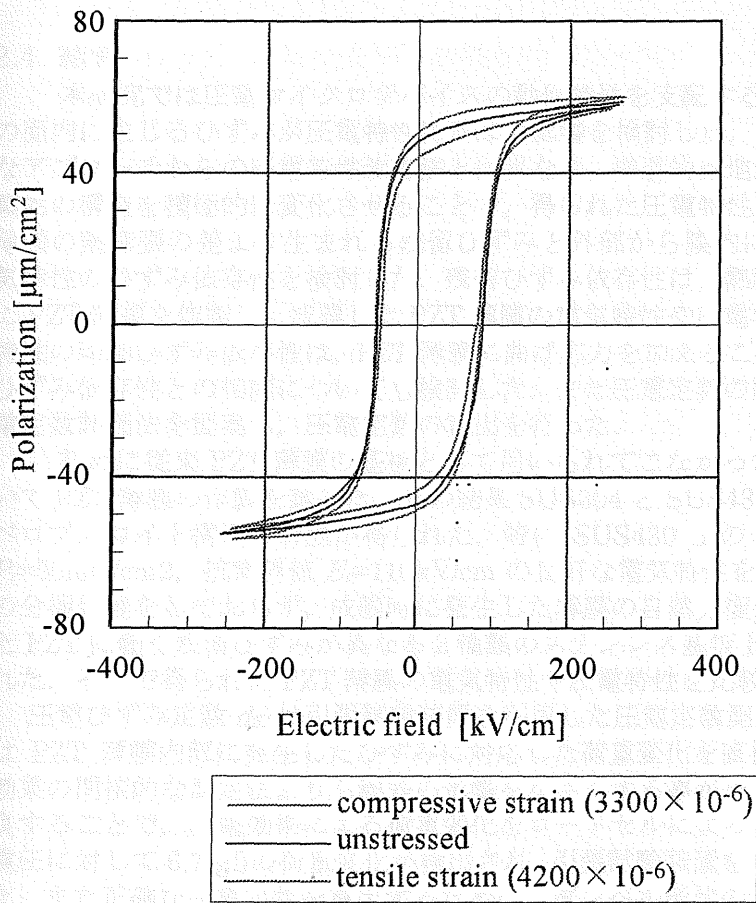


Fig. 3-4 Change in polarization hysteresis with applied strain for PZT thin films deposited on SUS430 substrate

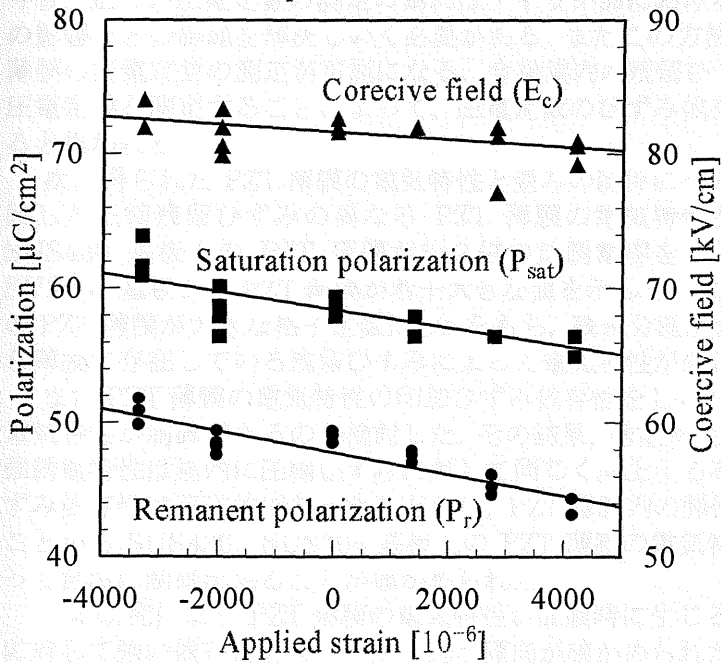


Fig. 3-5 Ferroelectric properties of PZT thin films for applied strain

2.4 結言

本研究では圧電マイクロデバイスの動作特性を支配する圧電定数 d_{31} の向上を図るため、PZT 薄膜の面内に生じるひずみが圧電特性に及ぼす影響を検討した。これは従来の成膜条件に支配された材料的なアプローチからの圧電特性改善法とは異なり、構造的見地から膜内のひずみ状態やひずみ分布などの膜内の構造を積極的に変化させることで、得られた圧電特性の制御が行える利点がある。そこで基板と薄膜の熱膨張の差より生まれる残留ひずみと外部から膜内に加えるひずみの両面から圧電特性及び電気特性のひずみ依存性を検討した。残留ひずみ依存性は、熱膨張率の異なる2種類のステンレス基板上に PZT 薄膜を作製し、成膜した PZT 薄膜の電気特性や圧電特性を比較することで検討した。また電気特性の印加ひずみ依存性は、PZT 薄膜に曲げ応力を加えることで詳細に検討し、得られた結果から残留ひずみ依存性とのかん関についても検討した。また圧電定数の印加ひずみ依存性を測定する為に新たな圧電定数評価法を提案し、圧電定数の算出を行った。

初めに従来 PZT 薄膜の基板として用いられてこなかったステンレス基板上に RF スパッタ法を用いて PZT 薄膜の作製を試みた。その結果 SUS304 と SUS430 の2種類の基板上に c 軸に優先配向したペロブスカイト構造の薄膜が得られた。特に SUS430 上の PZT 薄膜は比誘電率 $\epsilon_r=385$ 、残留分極値 $P_r=50\text{mC/cm}^2$ 、抗電界値 $E_c=110\text{kV/cm}$ の良好な電気特性を示した。今回得られた PZT 薄膜は成膜後の分極処理をしておらず、成膜時に発生した薄膜の自然分極により上記の優れた圧電特性を生じた。また PZT に働く残留ひずみが異なる2種類のステンレス基板上に同じ結晶構造を持つ PZT 薄膜が作製された。そこで得られた PZT 薄膜の電気特性や圧電特性を比較し、残留ひずみ依存性を調べた。

圧電ひずみ定数 d_{31} は引張試験装置を利用した圧電定数測定法を本研究で新たに提案した。この方法は PZT 薄膜内部に発生したひずみに対応した荷重変化を直接ロードセルで検出するため、従来の圧電効果の間接的な測定法よりも誤差の影響を小さくする事が出来ると考えられる。微小引張試験装置を改良することで、圧電効果による荷重変化をロードセルによって測定した結果、 $0.05[\text{Hz}]$ で $16[\text{V}]$ の印加電圧に対して $6.7[\text{gf}]$ の荷重変化が検出され、引張試験装置を用いて圧電特性が評価法できることを示した。また正確な圧電定数を算出するために、ダンベル形状の試験片を用いて圧電効果による荷重変化を測定し、解析を利用してチャック部における荷重変化と薄膜が生じるひずみの関係から圧電定数を逆算した結果、 $d_{31} = -29.62 \times 10^{-12} [\text{m/V}]$ と算出された。引張試験装置を用いた圧電定数測定法は PZT に発生するひずみを直接測定出来ることから、誤差の影響を受けにくい優れた圧電測定評価法であるといえる。今後、正しい圧電定数の測定の為にはチャック部における荷重検出量の補正やチャックと基板のすべりの影響などの課題を解決していく必要がある。またこの方法を用いる事により基板にひずみを加えた PZT 薄膜の圧電定数の測定が可能になる。今後膜内の残留ひずみだけを変化させた同一条件の PZT 薄膜の圧電定数を測定することによって、圧電定数のひずみ依存性について定量的な傾向を求めることが出来ると思われる。

次に得られた PZT 薄膜の電気特性と歪みの関係について検討した。2種類のステンレス基板上に成膜した圧縮残留ひずみの異なる PZT 薄膜の電気特性を比較したところ、圧縮残留ひずみの小さい SUS430 基板上の PZT 薄膜が約2倍の比誘電率を示し、また強誘電特性は圧縮残留応力の大きな SUS304 基板上の PZT 薄膜が若干大きな値を示した。これは圧縮残留ひずみが大きい SUS304 基板上の PZT 薄膜が大きな格子定数比 c/a をもち、残留分極が大きくなったためだと考えられる。このことから薄膜に存在している残留ひずみによって電気特性が変化することがわかった。

また PZT 薄膜の電気特性の印加ひずみ依存性をしらべ、成膜後に加えた歪みによっても PZT 薄膜の電気特性が制御できるのか検討した。その結果、誘電特性は膜内の引張ひずみに対して線形的に向上し、強誘電特性は膜内に圧縮ひずみに対して同じく向上する事が確かめられた。またこれらの電気特性のひずみ依存性は可逆的であったことから、PZT 薄膜内の弾性的な変形がもたらすことがわかった。以上のことから SUS430、SUS304 基板上の PZT 薄膜の電気特性が膜内の残留ひずみを変化させることによって自由に制御出来る事が確かめられた。

本研究により PZT 薄膜の電気特性が成膜時に生じる残留ひずみ、また成膜後に加える歪みの両方に対して強い依存性を持ち、定性的な傾向が確かめられた。圧電マイクロデバイスの動作特性を支配する圧電特性は電気特性と同様に膜内のひずみに強く影響されることから圧電特性も同様に残留ひずみ、及び印加歪み依存性があると考えられる。よって薄膜内部に存在するひずみの影響を積極的に利用し、ひずみを薄膜内に積極的に与えることで圧電特性を改善した PZT 薄膜の作製、及び目的とする圧電定数に変化させた PZT 薄膜の作製が出来ると考えられる。これは従来行われてきた材料的アプローチからは行うことが出来ない。また、歪みの与え方も成膜時の基板を制御することによって残留ひずみを変化させることができ、成膜後においても機械的な加工を PZT 薄膜に施すことで圧電特性の改変が可能

になる。更には PZT 薄膜の見かけの圧電定数を最大にする圧電マイクロデバイスの構造設計，面内に圧電特性を分布させて目的の変位を得るアクチュエーターなどの成膜に制約されないデバイスの作製が可能になり，さらには 2 次元加工や 3 次元加工といった従来考えられなかった圧電デバイスの立体構造設計も延性材料であるステンレス基板を用いて作製可能であると考えられる。圧電特性の歪み依存性に関しては本研究で提案した引張試験装置を用いた圧電定数評価法を用いて検討できるため，今後正確に歪み依存性を検討していく必要がある。

References

- 1) D. L. Polla and L. S. Francis, *Annu. Rev. Mater. Sci.*, 28, 563-597 (1998)
- 2) R. E. Newnham, *MRS Bulletin*, May, pp.20-34 (1997)
- 3) Chengkuo Lee, T. Itoh and T. Suga, *Sensors and Actuators A72*, 179-188 (1999)
- 4) S. C. Minne, S. R. Manalis, A. Atalar, and C. F. Quate, *Appl. Phys. Lett.*, 68(10), 1427-1429 (1996)
- 5) S. Watanabe and T. Fujii, *Rev. Sci. Instrum.*, 67(11), 3898-3903 (1996)
- 6) T. Tuchiya, T. Ito, G. Sasaki and T. Suga, *Journal of Ceramic Society of Japan*, 104(3), 159-163 (1996)
- 7) D. A. Barrow, T. E. Petroff, R. P. Tandon, and M. Sayer, *J. Appl. Phys.*, 81 (2), 876-881 (1997)
- 8) K. Nashimoto, D. K. Fork, and G. B. Anderson, *Appl. Phys. Lett.*, 66 (7), 822-824 (1995)
- 9) K. Iijima, I. Ueda, and K. Kugimiya, *Jpn. J. Appl. Phys.*, Vol. 30 (9B), 2149-2151 (1991)
- 10) B. A. Tuttle, J. A. Voigt, D. C. Goodnow, D. L. Lamppa, T. J. Headley, M. O. Eatough, G. Zender, R. D. Nasby, and S. M. Rodgers, *J. Am. Ceram. Soc.*, 76 (6), 1537-44 (1993)
- 11) M. Shimizu, M. Sugiyama, H. Fujiwara, T. Hamano, T. Shiozaki, K. Matsushige, *Journal of Crystal Growth*, 145, 226-231 (1994)
- 12) C. M. Foster, G.-R. Bai, R. Csencsits, J. Vetrone, and R. Jammy, L. A. Wills, E. Carr, and J. Amano, *J. Appl. Phys.*, 81 (5), 2349-2357 (1997)
- 13) S. B. Krupanidhi and D. Roy, *J. Appl. Phys.*, 72 (2), 620-625 (1992)
- 14) K. R. Udayakumar, P. J. Schuele, J. Chen, S. B. Krupanidhi, and L. E. Cross, *J. Appl. Phys.* 77, 3981-3986 (1995)
- 15) J. W. Jang, S. J. Chung, W. J. Cho, T. S. Hahn, and S. S. Choi, *J. Appl. Phys.*, 81 (9), 6322-6327 (1997)
- 16) J. Zhu, X. Zhang, Y. Zhu, and S. B. Desu, *J. Appl. Phys.*, 83 (3), 1610-1612 (1998)
- 17) S. Horii, S. Yokoyama, H. Nakajima, and S. Horita, *Jpn. J. Appl. Phys.*, Vol. 38, 5378-5392 (1999)
- 18) H. Fujisawa, S. Nakashima, K. Kaibara, M. Shimizu, and H. Niu, *Jpn. J. Appl. Phys.*, Vol. 38, 5392-5396 (1999)
- 19) N. Kim, Ph. D. Thesis, The Pennsylvania State University, (1994)
- 20) B. Xu, Y. Ye, Q.-M. Wang, and L. E. Cross, *J. Appl. Phys.*, Vol. 85, 3753-3758 (1999)
- 21) J. Lappalainen, J. Frantti, and V. Lantto, *J. Appl. Phys.*, 82 (7), 3469-3477 (1997)
- 22) G. A. C. M. Spierings, G. J. M. Dormans, W. G. J. Moors, M. J. E. Ulenears, and P. K. Larsen, *J. Appl. Phys.* 78, 5073 (1995)
- 23) 長谷川正義監修, ステンレス鋼便覧, 日刊工業新聞社, (1973)
- 24) (a) IRE Standards on Piezoelectric Crystal: Measurements of Piezoelectric Ceramics, 1961
(b) IEEE Standard on Piezoelectricity, No. 176-1978, 176-1987
- 25) S. Wakabayashi and M. Sakata, *OMRON TECHNICS*, Vol.36 No.2, (1996)
- 26) 山下馨, 奥山雅則, 西野仁, 西村孝之, PZT 薄膜の圧電性評価, H9 電気学会全国大会講演論文集, 3-254
- 27) K. Lefki and G.J. Dormans, *J. Appl. Phys.*, 76(3), 1764-1767 (1994)
- 28) R. Winters, M. Reinermann, C. Enss, G. Weiss, and S. Hunklinger, *J. Vac. Sci. Technol. B*, 13(3), 1316-1319 (1995)
- 29) R. F. Brown, *Can. J. Phys.*, Vol.39, pp.741-753 (1961)
- 30) Trolrier-Mckinstry, P. Aungkavattana, F. Chu, J. Lacky, J-P. Maria, J. F. Shepard JR., T. Su and F. Xu, *Mat. Res. Soc. Symp. Proc.*, Vol.493, 59-68 (1998)

次頁には発表論文を添付

Prof. Hidetoshi Kotera*

Dr. Hideo Tani**

Dr. Haku Kanno**

Dr. Ryoichi Takayama**

Prof. Susumu Shima*

Ms. Taku Hirasewa*

Ms. Toshi Yamamoto*

*Department of mechanical engineering, Kyoto University

Yoshida-honmashi, Sakyo-ku, Kyoto, 606-8501, Japan

**Matsushita Electric Industrial Co., Ltd.

Abstract

This study shows the possibility of controlling dielectric or piezoelectric properties of PZT thin film by applying strain after deposited on SUS 304 and SUS430 stainless steel. The results show that the relative dielectric coefficient increases with decreasing compressive strain. While the crystal orientation of PZT film deposited on SUS304 coincide with that on SUS430, the residual compressive strain in the former is different from the latter. We compare the dielectric properties of PZT film deposited on SUS304 with that on SUS430 at the same strains in the films. Dielectric properties of the former agree fairly well with those of the latter.

1. Introduction

For creating and designing micro-electromechanical systems (MEMS), new functional materials should be integrated on substrate, such as silicon and stainless steel (SUS)⁽¹⁻³⁾. Piezoelectric thin films, such as lead zirconate-titanate (PZT), boron doped diamond and oxidized zinc (ZnO), are the key materials for actuating the micro-electromechanical parts. In the last decades, many micro-electromechanical parts are actuated by the piezoelectric thin film⁽⁴⁻⁹⁾. Although the piezoelectric property is of major importance for the properties of MEMS, not much attention was given to measure the piezoelectric coefficient of the deposited thin film. Since the piezoelectric thin film is deposited by sputtering and sol-gel, the piezoelectric coefficient is affected both by the deposition conditions and by the Zn/Ti ratio. However, it is common sense that the electro-mechanical properties of deposited thin film is not changed after deposition. Namely, to improve the properties, the research work has been done from the view of the material composition and deposition conditions⁽¹⁰⁻¹²⁾. It is hard to find the literatures about improving the thin film properties after deposition⁽¹³⁾.

The aim of this study was to improve the piezoelectric properties of the deposited PZT thin film after deposition. If it becomes possible to improve the piezoelectric properties of PZT thin film after deposition, more effective MEMS devices can be designed and fabricated.

Since the piezoelectric properties of PZT thin film is affected by its residual stress, two kinds of substrates which thermal expansion ratio are different were used and the dielectric constant of the thin films was measured. For improving the piezoelectric properties of the deposited thin films, the external strain was applied to the thin films. We compared the dielectric properties of PZT film deposited on two substrates at the same strain in the films.

PIEZOELECTRIC PROPERTIES OF PZT THIN FILM

Prof. Hidetoshi Kotera*

Dr. Hideo Torii**

Dr. Isaku Kanno**

Dr. Ryoichi Takayama**

Prof. Susumu Shima*

Ms. Taku Hirasawa*

Ms. Toshi Yamamoto*

*Department of mechanical engineering, Kyoto University

Yoshida-honmachi, Sakyo-ku, Kyoto, 606-8501, Japan

**Matsushita Electric Industrial Co., Ltd.

Abstract

This study shows the possibility of controlling dielectric or piezoelectric properties of PZT thin film by applying strain after deposited on SUS 304 and SUS430 stainless steel. The results show that the relative dielectric coefficient increases with decreasing compressive strain. While the crystal orientation of PZT film deposited on SUS304 coincide with that on SUS430, the residual compressive strain in the former is different from the latter. We compare the dielectric properties of PZT film deposited on SUS304 with that on SUS430 at the same strains in the films. Dielectric properties of the former agree fairly well with those of the latter.

1. Introduction

For creating and designing micro-electromechanical systems (MEMS), new functional materials should be integrated on substrate, such as silicon and stainless steel (SUS)¹⁾⁻⁴⁾. Piezoelectric thin films, such as lead zirconate-titanate (PZT), boron doped diamond and oxidized zinc (ZnO), are the key materials for actuating the micro-electromechanical parts. In the last decades, many micro-electromechanical parts are actuated by the piezoelectric thin film⁵⁾⁻⁸⁾. Although the piezoelectric property is of major importance for the properties of MEMS, not much attention was given to measure the piezoelectric coefficient of the deposited thin film. Since the piezoelectric thin film is deposited by sputtering and zol-gel, the piezoelectric coefficient is affected both by the deposition conditions and by the Zr/Ti ratio. However, it is common sense that the electro-mechanical properties of deposited thin film is not changed after deposition. Namely, to improve the properties, the research work has been done from the view of the material composition and deposition conditions⁹⁾⁻¹²⁾. It is hard to find the literatures about improving the thin film properties after deposition¹³⁾.

The aim of this study was to improve the piezoelectric properties of the deposited PZT thin film after deposition. If it becomes possible to improve the piezoelectric properties of PZT thin film after deposition, more effective MEMS devices can be designed and fabricated.

Since the piezoelectric properties of PZT thin film is affected by its residual stress, two kinds of substrates which thermal expansion ratio are different were used and the dielectric constant of the thin films was measured. For improving the piezoelectric properties of the deposited thin films, the external strain was applied to the thin films. We compared the dielectric properties of PZT film deposited on two substrates at the same strains in the films.

2. Experimental materials

Since most of MEMS devices are functioning owing to the deflection of a cantilever or a membrane, the transverse piezoelectric coefficient d_{31} of deposited thin film is a major importance. The piezoelectric coefficient d_{31} is a function of dielectric constant ϵ_{33} as,

$$d_{31} = k_{31} \sqrt{s_{11}^E \epsilon_{33}}$$

where k_{31} is an electro-mechanical exchange coefficient and s_{11}^E is an elastic compliance. Since the elastic parameter s_{11}^E is necessary for the calculation of d_{31} are not known accurately, ϵ_{33} is more practical for evaluating the piezoelectric property of the deposited PZT thin film.

PZT that Zr/Ti ratio was 53/47 was deposited on two SUS substrate, SUS 304 and SUS 430. The thickness of the substrates was 100 μ m. The residual stress of the deposited thin films at room temperature relates to the thermal expansion rate of the substrate and of the PZT. 30nm Ti and 200nm Pt were deposited as a lower electrode at 650 $^{\circ}$ C with 0.2kw sputtering. On the lower electrode, the PZT thin film was deposited at 650 $^{\circ}$ C with 0.5kw sputtering. Thickness of the PZT thin film was 3 μ m. The deposition conditions for fabricating an experimental specimen, as shown in Fig.1, are summarized on Table.1.

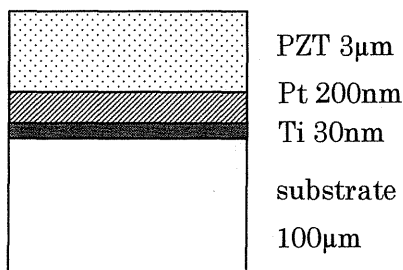


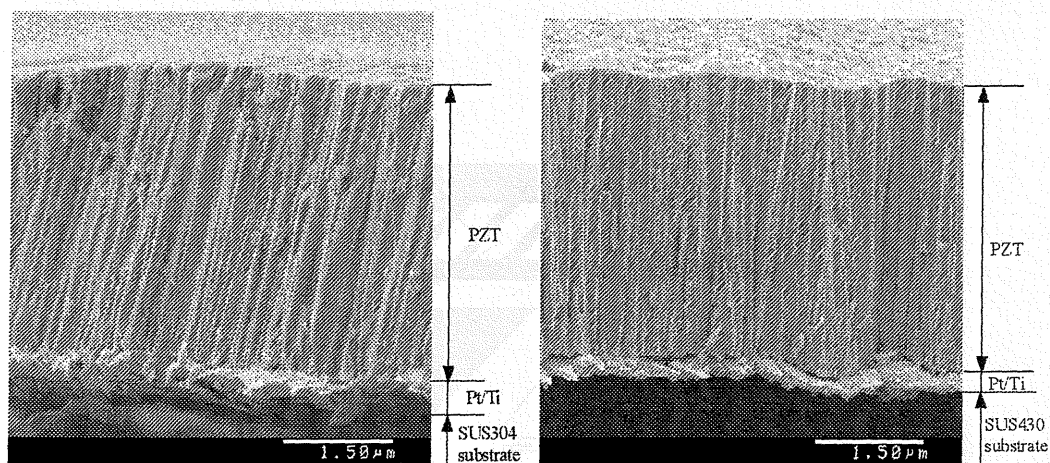
Fig.1 Cross section of specimen

Table 1 Conditions for depositing $\text{Pb}(\text{Zr,Ti})\text{O}_3$ by sputtering

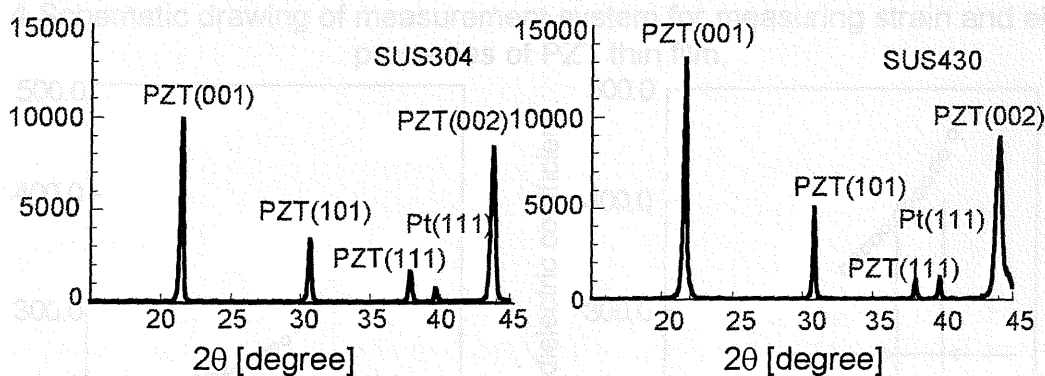
Parameter	Conditions
Substrate	Pt/Ti/SUS304, Pt/Ti/SUS430
Target	$[\text{Pb}(\text{Zr}_{0.53}\text{Ti}_{0.47})\text{O}_3]_{0.8} + [\text{PbO}]_{0.2}$
Substrate temperature	650 $^{\circ}$ C
Gas composition	Ar(9 sccm)+O $_2$ (1.0 sccm)
Gas pressure	4.0×10^{-1} Pa
RF Power	500 W
Deposition rate	17~20 nm/min

The composition of the deposited PZT thin film was measured by EPMA. The Zr/Ti ratio of the deposited PZT thin film was 53/47. The SEM images of the deposited PZT thin films on SUS 304 and SUS 430 were shown in Fig 2(a) and (b) respectively. The crystal orientation of the deposited PZT thin film were measured by XRD as shown in Fig. 3(a) and (b). Since the XRD pattern of PZT thin film deposited on SUS304 is similar to that on SUS430 as shown in Fig.3, the crystal orientations of those two films appear to coincide with each other. It is shown that PZT thin films both on SUS304 and on SUS430 were oriented in the axis of (001) direction.

Since the thermal expansion coefficient of SUS304 is $18.7 \times 10^{-6} [^{\circ}\text{C}]^{-1}$ and PZT bulk ceramic $8.0 \times 10^{-6} [^{\circ}\text{C}]^{-1}$, the residual compression strain of the PZT thin film at room temperature (25 $^{\circ}$ C) is assumed to be 6.7×10^{-3} . The residual strain of PZT thin film on SUS430 is assumed to be 2.4×10^{-3} since the thermal expansion coefficient of SUS430 was $11.9 \times 10^{-6} [^{\circ}\text{C}]^{-1}$. The PZT thin film deposited on SUS304 is subjected to be compressed more than on SUS430.



(a) on SUS304 (b) on SUS430
Fig.2 SEM image of deposited PZT thin film



(a) on SUS304 (b) on SUS430
Fig.3 XRD patterns of PZT thin films deposited on SUS304 and SUS430

3. Improvement of piezoelectric properties

There are many methods that have been reported to measure the piezoelectric properties. A resonant frequency was measured to characterize ZnO thin film. PZT thin films have been characterized by measuring the frequency shift of a resonant frequency and by measuring the force for bending the cantilever. In this study we measure the relationship between dielectric coefficient of PZT thin film and the applied strain by bending a deposited substrate as shown in Fig.4. One end of substrate was cramped and an external force was applied at the other end. The dielectric coefficient of the PZT thin film was measured by the LCR meter. Since a thickness of the substrate is thick enough comparing to the thickness of the PZT thin film, it is assumed that the strain ϵ_{xx} of PZT thin film is almost constant in thickness direction. The internal strain of the PZT thin film can be calculated as,

$$\epsilon_{xx} = \frac{3t}{2l^3} yx$$

where t refers to thickness of substrate, l to distance from the fixed position, x the distance from position at which the force was applied with deflection y .

The experimental results are little different each other since the crystal orientation of the PZT thin film deposited on SUS304 is inclined a little more than on SUS430. It can be said that dielectric properties of the former, however, agree fairly well with those of the latter.

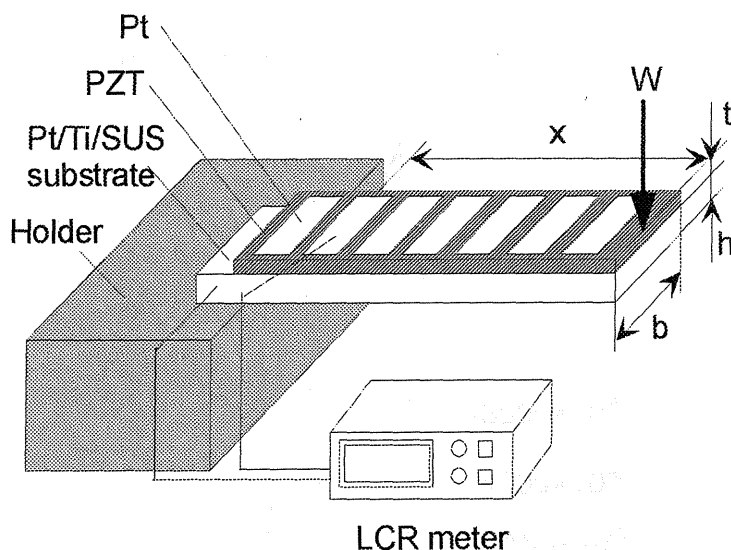


Fig.4 Schematic drawing of measurement system for measuring strain and electric properties of PZT thin film.

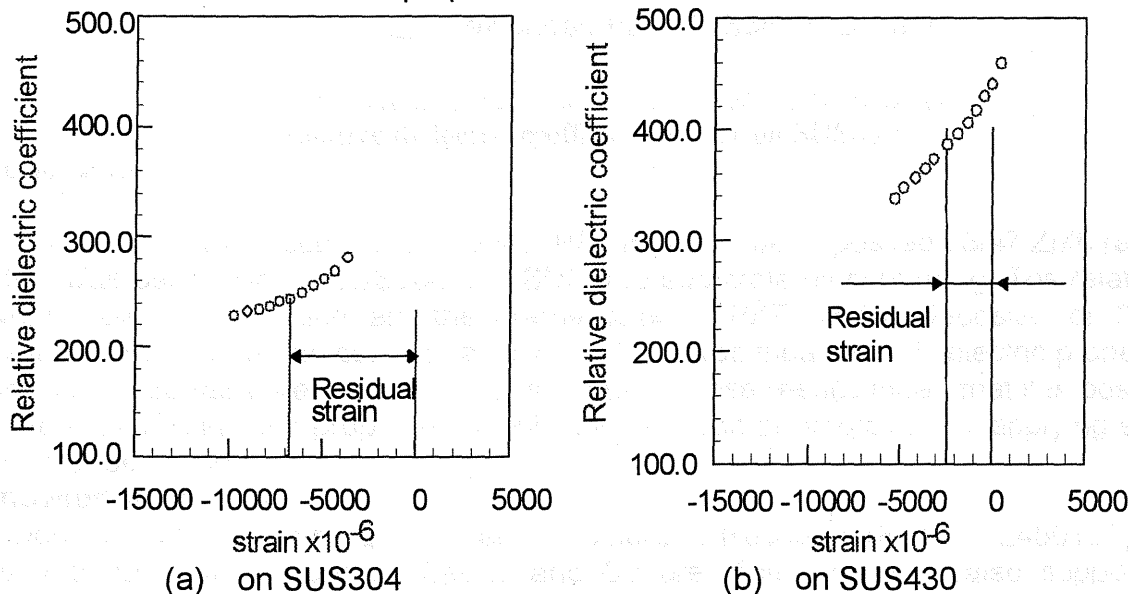


Fig.5 Relationship between relative dielectric coefficient and strain

The relationship between internal strain and the dielectric constant of PZT thin films deposited on SUS304 and SUS430 substrates are plotted on Fig. 5(a) and (b) respectively. The dielectric coefficient increases with decreasing the compression strain. Since piezoelectric property of PZT thin film is obtained by shifting Zr/Ti atom according to the compression strain, the position of Zr or Ti atom changes by the applied strain. The dielectric coefficient was thus changed. The above results means that the dielectric coefficient of PZT thin film can be improved by applying the external strain.

We compare the dielectric properties of PZT film deposited on SUS304 with that on SUS430 at the same strains in the films as shown in Fig.6, 3.5×10^{-3} , 4.5×10^{-3} and 5.15×10^{-3} . The deposited thin film on SUS 304 was extended, on the contrary the thin film on SUS430 was compressed. The dotted line means that the dielectric constant improved of PZT thin film deposited on SUS304 coincides with that on SUS430. The experimental results are little differs each other since the crystal orientation of the PZT thin film deposited on SUS304 is inclined a little more than on SUS430. It can be said that dielectric properties of the former, however, agree fairly well with those of the latter.

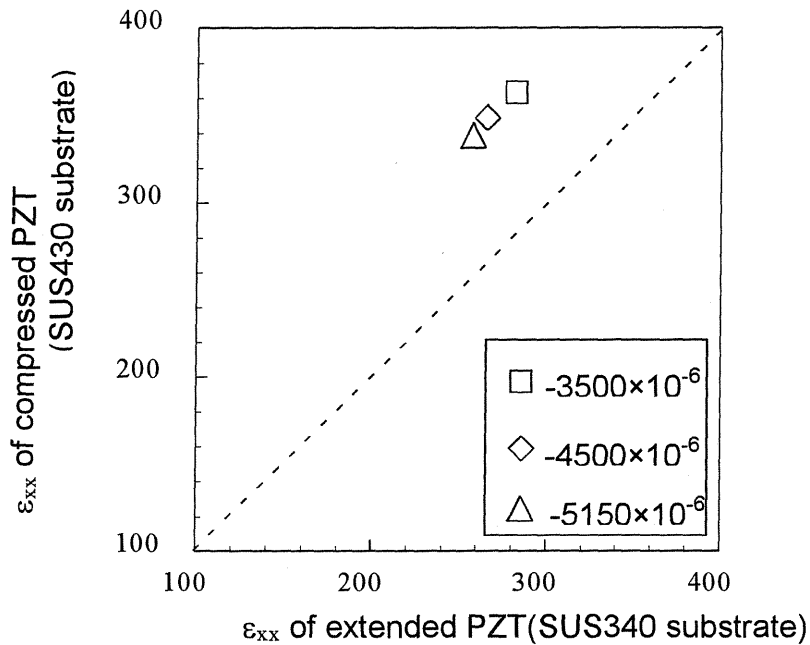


Fig.6 Relative dielectric coefficient of PZT on SUS430 vs. relative dielectric coefficient of PZT on SUS304

4. Conclusions

To improve the piezoelectric coefficient of PZT thin film, we deposited 53/47 Zr/Ti ratio PZT thin film was deposited on SUS304 and SUS 430 substrate by sputtering. The relationship between dielectric coefficient and the internal strain of PZT thin film deposited on SUS304 with that on SUS430 at the same strains in the films was measured. Dielectric properties of the former agree fairly well with those of the latter. These results mean that it is possible to improve the piezoelectric properties of PZT thin film can be improved by applying external strain after deposition.

Acknowledgement

This work was supported by grant-in-aid for Scientific Research (B)(No. 12450102) by the Ministry of Education, Science, Sports and Culture. This work was also supported by grant-in-aid by AMADA FOUNDATION FOR METAL WORK TECHNOLOGY.

References

- (1) Kurt E. Petersen and C.R. Guarnieri, J. Appl. Phys., Vol. 50, No. 11, November, 6761-6766(1979)
- (2) O. Tabata, K. Kawahata, S. Sugiyama and I. Igarashi, Sensors and Actuators, Vol. 20, 135-141 (1989)
- (3) W. C. Oliver and G. M. Pharr, J. Mater. Res., Vol. 7, No.6, June 1564-1583(1992)
- (4) T.P. Weihs, S. Hong, J.C. Bravman and W.D. Nix, J. Mater. Res., Vol. 3, No.5, Sep/Oct 931-942(1988)
- (5) Christian Burrer, Jaume Esteve and Emilio Lora-Tamayo, J. of Microelectromechanical systems Vol.5, No. 2, June, 122-130(1996)
- (6) T. Fujii, Shunji Watanabe, Masatoshi Suzuki and Takamitsu Fujii, J. Vac. Sci. Technol. B Vol. 13, No. 3, May/June 1119-1122(1995)
- (7) Chengkuo Lee, Toshihiro Itoh and Tadatomo Suga, Sensors and Actuators A72, 179-188 (1999)
- (8) P. Muralt, M. Kohli, T. Maeder, A. Kholkin, K. Brooks, N. Setter and R. Luthier, Sensors and Actuators A 48 157-165 (1995)

- (9) Toshiyuki Tuchiya, Toshihiro Itoh, Gen Sasaki and Tadatomo Suga, Journal of the Ceramic Society of Japan, Vol. 104, No. 3, 159-163 (1996)
- (10) D. A. Barrow, T. E. Petroff, R. P. Tandon and M. Sayer, J. Appl. Phys. Vol. 81, No. 2, 876-881
- (11) Shunji Watanabe, Takamitsu Fujiu and Akira Tanaka, Appl. Phys. Lett., Vol. 62, No. 25, 21 June, 3377-3379 (1993)
- (12) I. Kanno, S. Fujii, T. Kamada and R. Takayama, Applied Physics Letters, Vol. 70, No. 17, March 1997
- (13) Marc-Alexandre Dubois and Paul Muralt, Sensors and Actuators, Vol. 77, 106-112 (1999)

第3章 圧電素子を分布させたメタマテリアルによる進行波ポンプの研究

3.1 緒言

半導体製造技術の成熟と医療技術の進歩により半導体製造技術と分析化学が結びつき、 μ TAS (Micro Total Analysis Systems) という新分野が開かれた。 μ TAS では分析を微小なチップ上で行うため、試薬の量を大幅に減らすことができ、反応に要する時間も短縮できる。このような μ TAS は、サンプル導入部、流体制御部、反応・検出部、サンプル排出部などから構成される。本研究では、サンプル導入部、流体制御部、サンプル排出部に注目し、このような流体搬送機構を実現するためのアクチュエータとして、進行波型マイクロポンプを考案、試作した。

現在最も知られているマイクロポンプの構造は、ダイヤフラムを用いてチャンバーの容積をアクティブに増減させ、駆動圧力を得るタイプのものである。J. G. Smits は、3つのアクティブバルブを蠕動運動させることによりポンプを作製¹⁾し、最近では、C. Grosjean らが熱駆動による蠕動運動型ポンプを作製²⁾している。しかし、このようなポンプは、バルブ部やヒータ部の構造が複雑になりがちであり、生産の観点からすると好ましくない。また、従来のマイクロポンプは機械的なバルブを有するものが多かったが、機械的な損傷による機能の低下が避けられないため、バルブレス化が求められている。このようにマイクロポンプは未だ開発途上にあり、さらなる簡素化やバルブレス化など様々な構造が考案されている。近来では特に、限られた空間の有効利用のため、前後双方向へのポンプ作用を持ったものも盛んに開発されている。例えば、松本らは温度による液体の粘性の違いを利用して、双方向のバルブレスポンプを作製した³⁾。これからは、このような、機械的なバルブを使用せず、一方向以上の搬送機構を持ったマイクロポンプが重要となると考えられる。しかし、このポンプの場合、熱を利用するため化学反応に対する熱の影響が懸念される上に、ヒータ間距離の制約上、ポンプの小型化に限度があると考えられる。また、C. H. Ahn らは回転型のポンプを考案している⁴⁾が、これも小型化・耐久性および簡素化の点から問題がある。

以上に加えて、これまでに開発されてきたマイクロポンプは、ポンプ部と流路部を別個に考えているものが殆どであり、限られた空間を有効に利用する上では、流路そのものに搬送機能を持たせたマイクロポンプが理想的であると考えられる。流体が流路を流れる際に生じる圧力降下は避けられない現象であり、ポンプ部と流路部がそれぞれ別の働きをする場合、流路の下流域まで流体を搬送するためにポンプの吐出圧力を高める必要があり、それだけポンプのサイズが大きくなる。このことから、ポンプを小型化するためには流路を短くし、ポンプの数を増やしてその働きを分散させれば良いと考えられる。つまり、 μ TAS として装置全体を小型するためには、より小さなポンプが必要であり、それはポンプを流路中に分散させることによって実現できると考えられる。だが、バルブ、もしくはそれに代わるものをも分散させようとする、構造が著しく複雑になりかねない。したがって、本研究のマイクロポンプでは、ポンプのダイヤフラム部のみを分散させ、進行波を励起することで搬送の方向付けを行い、流体を輸送する進行波型マイクロポンプの基本原理について検討した。

3.2 進行波型マイクロポンプの作製

3.2.1 デバイスの基本構造と作製プロセス

μ TAS における動的な構成要素については、これまでに様々なアクチュエータが考案されており、圧電型、静電型、電磁型、熱型、磁歪型、SMA (Shape Memory Alloy) 型などのものが研究・開発されている。とりわけ、①微小変位の高精度制御が可能、②エネルギー変換効率が高い、③応答が速い、④電

磁干渉がない、⑤姿勢の影響が小さい、などの特徴から、圧電材料を用いたものが有力視されている。本研究では、圧電材料として代表的なチタン酸ジルコン酸鉛($\text{PbZr}_x\text{Ti}_{1-x}\text{O}_3$, PZT)[村田製作所製]をユニモルフ型¹の機械的駆動要素として使用した。この材料は、ジルコン酸鉛(PbZrO_3)とチタン酸鉛(PbTiO_3)の固溶体セラミックスである。温度特性が良く、現在家庭用ガス器具の圧電着火素子、超音波振動子、圧電ブザーなどに使用されており、圧電セラミックスの中で最も汎用性の高い材料となっている。なお、このPZTには、予め厚み方向上下に薄い電極が付けられている。

アクチュエータの動きを流路に伝えるための層及び流路には、シリコンゴム(シリコンゴム)を用いた。この材料はヤング率が小さく、破断に至るまでの歪が大きい(100-1000%)ことからマイクロバルブ⁵⁾やマイクロポンプ⁶⁾における膜材料としても利用されている。さらに、本研究では粘弾性の性質を利用して、振動の位相差を付けることにも利用した。

まず、励起する進行波の様子を簡単に説明する。原理は、最大変位点の位置を時間的に少しずつ進行方向へずらしていくというものである。このような原理で励起する進行波の様子を Fig. 13 に示す。

本研究では、一端固定、他端自由である振動基板を用いてそれぞれ位相の異なる定常波を発生させ、位相の遅れた変位を流路に伝えることによって流路自身に進行波を励起する。一端固定、他端自由のは、自由端で最大の変位を生じるが、自由端で進行波を励起しても利用しづらい。そこで、PZT/SUS430 基板の上に空隙を設けてシリコンゴムを載せることにより、最大の変位点を固定端方向にずらした。それと共に、ヤング率が小さく、大きい歪が得られる特性を活かして、より円滑に進行波が励起できるようにした。

本アクチュエータの定常波励起部分に関する基本構造はユニモルフ型であり、Fig. 1-2 に示すように、PZT に SUS430 を貼付する。こうして異なる 5 枚の基板を作製し、glass を挟むことにより作製した空隙層を介してシリコンゴムに接着する。さらに溝を刻んだシリコンゴムを載せ、シリコンゴム同士の粘着力で密着させることにより 1 つのアクチュエータを構成する。

まず、最下部に長さ：20mm、幅：2mm、厚さ：0.2mm の PZT を一端固定、他端自由になるよう、アクリル樹脂の基盤に貼り付ける(Fig. 1-1)。次に、厚さだけが PZT と違い、長さ：20mm、幅：2mm、厚さ：0.1mm の SUS430 を PZT の上に貼付する(Fig. 1-2)。その上の層には glass を 2 つ用いてそれぞれ PZT/SUS430 板の両端に接着し、その間に空隙を設ける。(Fig. 1-3)。Glass の寸法は長さ：2mm、幅：2mm、厚さ：0.9mm である。続いて、2 つの glass の上に長さ：20mm のシリコンゴムを橋架けて定常波を発生させる部分を完成させる(Fig. 1-4)。ここで、シリコンゴムの幅を 1mm とし、1 つの PZT/SUS430/glass 基板につき 2 つのシリコンゴムを載せた。なお、シリコンゴムの厚さは 1.00mm と 0.96mm の 2 種類があり、1 つの PZT/SUS430/Glass 基板には同じ厚さのものを載せ、PZT/SUS430/Glass 基板について交互に厚さの異なるシリコンゴムを載せる。すなわち、シリコンゴムは、厚さが 1.00mm, 1.00mm, 0.96mm, 0.96mm, 1.00mm, 1.00mm, 0.96mm…となるように並べる。以上のようにして、厚さが 1.00mm のシリコンゴムを載せた構造を 3 つ、厚さが 0.96mm のシリコンゴムを載せた構造を 2 つ、計 5 つの PZT/SUS430/glass/Silicon_rubber 基板を作製し、0.5mm の間隔で横に並べる(Fig. 1-5)。Table 1 に PZT/SUS430/glass/Silicon_rubber 基板の寸法を示す。

Table 1 : dimension of actuator

material	thickness(m m)	length(mm)× width(mm)
Si rubber	1.00 or 0.96	20×0.8
glass	0.9	2×2
SUS430	0.1	20×2
PZT	0.2	20×2

本アクチュエータの進行波励起部分は、流路も兼ねており、シリコンゴムで作製するので、前プロセス(Fig. 1-5)で作製した定常波励起部分のシリコンゴムの上に載せるだけで密着し、下層の振動を受けることができる(Fig. 1-6)。その構造は、長さ：16mm、幅：2mm、高さ：1mmの梁に幅：0.6mm、深さ：0.6mmの溝を刻んだものであり、この溝が流路となる。

この流路兼、進行波励起部分とは別に、流れる液体の供給部と受入部が必要となる。そのために Fig. 2に示すような流路及びバッファ部を作製する。上となる部分から順に、基板となるglass層(厚さ：1mm)、流路及びバッファ部を形作るシリコンゴム層(厚さ：1mm)、底となるシリコンゴム層(厚さ：1mm)である(順に、Fig. 2-1~3)。作製した流路幅は2.5mmで、深さは1mmである。なお、前プロセス(Fig. 1-6)で作製した流路と組み合わせるために、この流路が入り込む部分には底を付けていない。

これまでのプロセスで作製したアクチュエータ部と流路部を組み合わせることで1つの進行波型マイクロポンプに仕上げる。その組み合わせ方とその結果完成する全体図を Fig. 3に示す。このプロセスではglass基板の流路及びバッファ部を、アクリル基板のアクチュエータ部に被せるように設置する。このとき、Fig. 4, 5の側面図及び断面図に示すように進行波励起部分のシリコンゴム流路とglassを基板とする流路とは僅かな隙間を隔てており、一体とはならない。このような状態に設置した流路に液体を流すと、進行波励起部分のシリコンゴムとglassを基板とする流路とは一体でないにも拘らず、この部分から液体が漏れ出すことはない。これは液体の表面張力によるものと考えられ、進行波励起部分のシリコンゴムとglassを基板とする流路との隙間寸法や、液体にかかる圧力によっては漏れ出すことがあると考えられる。なお、このように、駆動を伝達する部分以外の余計な部分との結合がない構造を作ることによって、進行波励起部分の変形を拘束する条件を減らし、容易に振幅の大きな進行波を励起できる。

組み合わせ方の詳細は以下の通りである。流路及びバッファ部が構成されたglass基板を、定常波励起部分のシリコンゴムが振動したときに接触しないように0.2mmの隙間を空けて、進行波励起部分のシリコンゴムを載せたアクチュエータ部の直上に設置する。これにより、進行波励起部分の流路上壁と流路及びバッファ部のglassとの距離は0.2mmとなる(Fig. 5参照)。

3.2.2 進行波素子の動作原理

圧電体に機械的応力を加えると歪が生じ、電気分極を発生する(正圧電効果)。逆に、電圧を印可すると、一般には分極に比例した歪を生じる(逆圧電効果)³⁾。このような特徴を有する圧電材料は、機械的エネルギーと電気的エネルギーの間のエネルギー変換素子として利用される。圧電素子の利用法の1つであるユニモルフ型圧電アクチュエータは、厚み方向に分極された板状の圧電セラミックスと金属板とを貼り合わせている。板状圧電セラミックスに分極と同一方向の電圧を印加すると、セラミックス板は長さ方向及び幅方向に収縮し、逆方向に電圧を印加すると伸長しようとする(圧電横効果)。この

性質を利用し、本研究ではPZTに金属(SUS430)板を貼り合わせ、全体として生じた撓みから屈曲変位を得ている。更に、位相をずらした交流電圧を印加することによって位相のずれた屈曲運動を発生させ、この運動を連続させることで進行波を励起している。また、シリコンゴムの共振を利用して位相差を付けることでも進行波を励起している。

前節で述べたように、本研究では圧電素子と構造材を積層し、進行波素子を作製する。そのために、まず、逆圧電効果による歪が生じたときの構造体の曲率半径を求める。

Fig. 6に示す多層の組合せ梁を考える。Fig. 6-aは梁を幅方向から見た図であり、Fig. 6-bは軸方向から見た図である。多層の組合せ梁の純曲げに関する一般式⁷⁾より、積層材の幅 b が一定のとき、曲率半径 R は、

$$R = \frac{\sum_i E_i I_i}{\sum_i M_i} \quad (1)$$

である。ここで、 I_i は断面二次モーメント、 M_i は各材料断面に働く曲げモーメントであり、それぞれ、

$$I_i = \frac{b}{3} \left\{ (h_i - \bar{y})^3 - (h_{i-1} - \bar{y})^3 \right\} \quad (2)$$

$$M_i = b \int_{(\bar{y}-h_{i-1})}^{h_i-\bar{y}} \frac{P_i}{bt_i} y dy = \frac{P_i}{2} \{ t_i + 2(h_{i-1} - \bar{y}) \} \quad (3)$$

により求まる。ここで、 P_i : 各材料層の内力、 t_i : 各材料層の厚さ、 h_i : 上面から各材料層までの距離(但し、 $h_0 = 0$)である(Fig. 6参照)。添字は上面からの材料番号を表す。なお、 \bar{y} は上面から測った中立面の位置で、

$$\bar{y} = \frac{\sum_i E_i (h_i^2 - h_{i-1}^2)}{2 \sum_i E_i t_i} \quad (4)$$

である。

以上の式が、多層の組合せ梁の純曲げに関する理論であるが、式(3)から分かるように、曲率半径 R を求めるには各材料層の内力 P_i の値が必要である。そこで、逆圧電効果による曲げ変形の際に生じる各材料層の内力を求めるために、静的な条件下でFig. 7のような、本研究のアクチュエータをモデル化した組合せ梁を考える。ここで、 P は各材料層界面で歪を一致させるために作用する反力を表し、添字はそれぞれの材料に対応することを意味する。最上部のシリコンゴム流路の影響は無視できるほど小さいと仮定する。さらに、SUS430とシリコンゴムの間に空隙があっても、PZT、SUS430とシリコンゴムは同じ曲率中心を持つものとし、反力 P は同一材料断面に垂直で、等しく分布すると仮定する。

歪を引き起こす原因となるものは次の3種類が考えられる。

- ① 逆圧電効果
- ② 反力 P
- ③ 梁の曲げ

この3つの起因を考慮して、電圧を印加したとき界面での歪は一致するから、

$$0 + \frac{-P_{Sir}}{E_{Sir} b t_{Sir}} + \frac{y_{interface1}}{R} = d_{31} \frac{\Delta V}{t_{PZT}} + \frac{-P_{PZT}}{E_{PZT} b t_{PZT}} + \frac{y_{interface1}}{R} \quad (5)$$

$$0 + \frac{-P_{SUS}}{E_{SUS} b t_{SUS}} + \frac{y_{interface2}}{R} = d_{31} \frac{\Delta V}{t_{PZT}} + \frac{-P_{PZT}}{E_{PZT} b t_{PZT}} + \frac{y_{interface2}}{R} \quad (6)$$

が成り立つ。ここで、 E : ヤング率, b : 板幅, t : 板厚, $y_{interface1}$: シリコンゴムと SUS430 の界面の y 座標, $y_{interface2}$: SUS430 と PZT の界面 y 座標, R : 曲率半径, d_{31} : PZT の圧電歪定数, ΔV : 印加電圧とし, 添字は各材料を表す(Sir はシリコンゴム)。

また, 力のつり合い

$$P_{PZT} + P_{SUS} + P_{Sir} = 0 \quad (7)$$

より,

$$P_{PZT} = \frac{d_{31} b E_{PZT}}{1 + \frac{E_{PZT} t_{PZT}}{E_{SUS} t_{SUS} + E_{Sir} t_{Sir}}} \Delta V \quad (8)$$

$$P_{SUS} = E_{SUS} b t_{SUS} \left(-d_{31} \frac{\Delta V}{t_{PZT}} + \frac{P_{PZT}}{E_{PZT} b t_{PZT}} \right) \quad (9)$$

$$P_{Sir} = E_{Sir} b t_{Sir} \left(-d_{31} \frac{\Delta V}{t_{PZT}} + \frac{P_{PZT}}{E_{PZT} b t_{PZT}} \right) \quad (10)$$

となる。

式(8)~(10)により各材料層の内力の値が求められるので, 式(1)~(4)を本研究の進行波素子に適用して素子全体の曲率半径 R を計算できる。

式(1)~(4), (8)~(10)において, $d_{31} = 9.0 \times 10^{-12}$ [C/N], $\Delta V = 10$ [V], $E_{SUS} = 210$ [GPa], $E_{Sir} = 10$ [MPa], $E_{PZT} = 90$ [GPa], $t_{Sir} = 1$ [mm], $t_{PZT} = 0.2$ [mm] という条件で SUS430 の厚さを変化させたときの全体の曲率半径を求めた。ただし, 基板は長さ方向に一様な曲率を持ち, 円弧状に屈曲するとした。このとき, 空隙を挿入した場合($t_{glass} = 0.9$ [mm])と挿入しなかった場合($t_{glass} = 0$ [mm])の2種類を同時に求め, 比較した。その結果を Fig. 8 に示す。

Fig. 8 から, 空隙の無い方が小さな曲率半径を生じることが分かる。すなわち, 空隙を狭く設定した方が大きな撓みを得られる。しかし, 空隙はシリコンゴムが大きく変形するときの空間的な余裕になっており, 重要な役割を果たしていると考えられる。よって, 本研究では厚さ 0.9 mm の glass により高さ 0.9 mm の空隙を設けた。さらに Fig. 8 によると, SUS 厚さがおよそ 80 μ m のとき, 撓みが最大となることが分かる。このことから, 本研究では最大の撓みを与える厚さに近い 100 μ m 厚の SUS430 板を用いた。

シリコンゴムは粘弾性が大きい材料であり, 振動時には変位速度に比例した粘性力が働き, 共振周波数では位相が遅れると考えられる。この位相の遅れを制御できれば, 入力電圧の位相を制御しなくても個々のシリコンゴムの振動位相を操れると考えられる。よって, PZT/SUS430 基板の周期的な変位によるシリコンゴムの強制振動について考え, 位相の変化を制御する方法を検討する。

定常波励起素子1つについて Fig. 9 に示すようにモデル化して考える。シリコンゴムの粘弾性を考慮し, 複素弾性率 $E = E_r(1+i\eta_s)$ を用いることで曲げ振動時の位相変化を求める。 $x=l$ において支持台(PZT/SUS層)の周期的な変位はシリコンゴムに加速度を与えるから, シリコンゴムの曲げ振動に関する運動方程式は, 加速度により及ぼされる力を $e^{i\omega t} f(x)$ とおくと,

$$\mu \frac{\partial^2 y(x,t)}{\partial t^2} + E_r(1+i\eta_s)I \frac{\partial^4 y(x,t)}{\partial x^4} = e^{i\omega t} f(x) \quad (11)$$

と書ける。ここで, μ : シリコンゴムの線密度, E_r : シリコンゴムのヤング率, η_s : シリコンゴムの損失係数, I : シリコンゴムの断面2次モーメント, $y(x,t)$: シリコンゴムの上方向への変位である。

式(11)の解は変数分離できると仮定して $y(x,t) = X(x)T(t)$ とおくと、式(11)は、

$$\mu X(x) \frac{d^2 T(t)}{dt^2} + E_r (1 + i\eta_s) IT(t) \frac{d^4 X(x)}{dx^4} = e^{i\omega t} f(x) \quad (12)$$

と書け、

$$X(x) = A \cos kx + B \sin kx + C \cosh kx + D \sinh kx, \quad k \equiv \frac{\omega^2 \mu}{EI} \quad (13)$$

$$T(t) = \tau e^{i\omega t} \quad (14)$$

とおくと、

$$\frac{d^4 X(x)}{dx^4} = k^4 X(x) \quad (15)$$

すなわち、式(12)は、

$$\left\{ \mu \frac{d^2 T(t)}{dt^2} + k^4 E_r (1 + i\eta_s) IT(t) \right\} X(x) = e^{i\omega t} f(x) \quad (16)$$

となり、 $X(x) \neq 0$ なる x の範囲では[†]、

$$\mu \frac{d^2 T(t)}{dt^2} + H_r (1 + i\eta_h) T(t) = e^{i\omega t} \frac{f(x)}{X(x)} \quad (17)$$

と変形できる。ここで、

$$H_r = \frac{k^4 E_r I (1 - 3\eta^2)}{(\eta^2 + 1)^3}, \quad \eta_h = \frac{\eta(\eta^2 - 3)}{1 - 3\eta^2} \quad (18)$$

である。さらに、式(14)より、

$$i\omega T(t) = \frac{dT(t)}{dt} \quad (19)$$

と置き換えられるので、結局、式(17)は、

$$\mu \frac{d^2 T(t)}{dt^2} + \frac{H_r \eta}{\omega} T(t) + H_r T(t) = e^{i\omega t} \frac{f(x)}{X(x)} \quad (20)$$

と変形される。

式(20)は、各位置 x での粘性減衰振動を表していると考えられ、左辺第1項が慣性項、第2項が粘性項、第3項が剛性項である。また、右辺の項は外力項であり、このような粘性減衰のある強制振動の解は、一般に Fig. 10-a に示すような共振曲線で表される。Fig. 10-b に同時に示した位相遅れ曲線から分かるように、共振周波数付近で位相遅れは $0 \sim -\pi$ へと大きく変化する。

この位相遅れに注目し、これを ϕ とおくと、式(20)の場合、

$$\phi = \tan^{-1} \frac{\eta}{1 - \frac{\mu}{H_r} \omega^2} \quad (21)$$

と求められる。ここで、 $\mu = \rho b h$ (ρ : シリコンゴムの密度、 b : シリコンゴムの幅、 h : シリコンゴムの厚さ)であるから、

[†] 端点における強制振動のため、全ての時間において変位が0、すなわち $X(x) = 0$ になる点は固定端以外にはない。

$$\phi = \tan^{-1} \frac{\eta}{1 - \alpha \frac{h^6}{\omega^6}} \quad (22)$$

である。但し、 α は寸法に依らない材料定数である。このことから位相遅れ ϕ はシリコンゴムの厚さ h の6乗に依存することが分かる。Fig. 11-bに h の値を変化させたときの位相遅れ ϕ の変化の様子を示す。なお、Fig. 11は、 $\pm 25V$ の交流電圧を印加した場合の、厚さ0.96mm、1.00mmのシリコンゴムの変位と位相の様子である。これより、シリコンゴムの厚さ h の値が小さいほど共振周波数が小さく、共振周波数付近での位相遅れ量が h の値によって異なることが分かる。すなわち、共振周波数付近では、 h の値が小さいほど位相遅れ量が多い。この特徴を利用して、互いに隣り合うシリコンゴムの組に進行波を励起できるような位相差を付けることを考える。

シリコンゴムが等間隔に並び、隣接する組の位相差が $\pm\phi$ であるならば、進行波の波形は正弦波で、位相差がマイナスである方向(位相が遅れる側)に進行していくものと考えられる。本研究では、位置によって特に波形を変える必要がなかったのでシリコンゴムを等間隔に並べ、進行波の波形を正弦波とした。なお、位相差の絶対値が両隣で等しくなる必要はなく、等しくない場合は、位置によって進行波の速さが変わるものと考えられる。このことを利用すると周波数によって流量を制御できると考えられる。

これまでの理論により、共振周波数付近において位相を変化させることが可能であると分かったが、最大でも π までしか変化させることができない。隣り合う振動板の振動位相を順次変化させて進行波を励起するためには、入力電圧に対して

$\pi < \phi < 2\pi$ の範囲の位相差も生じさせなければならない。そこで、入力電圧を交流正弦波とし、第1、第4、第5基板の組と第2、第3基板の組とで電極を反転させることにより、それぞれの基板に印加する電圧の位相を π だけずらした(Fig. 12を参照)。この π の位相差と先に述べた共振周波数付近での位相のずれから、第1、第4、第5基板の組では入力電圧に対して $0 < \phi < \pi$ の範囲の位相差を生じさせることができ、第2、第3基板の組では $\pi < \phi < 2\pi$ の範囲の位相差を生じさせることができる。このようにして各々の基板に位相のずれた撓み振動を行わせ、全体としてFig. 13に模式的に示すような進行波を励起できると考える。なお、Fig. 13は、PZT/SUS430/glass基板の変位を小さくし、シリコンゴムの変位を誇張している。

3.3 進行波及び液体搬送の測定

まず、定常波励起部分のシリコンゴムが位相のずれた振動を行い、進行波を励起できるかどうかを確認するため、溝を刻んだ流路の代わりに薄いシリコンゴム(長さ:16mm,幅:2mm,厚さ:0.2mm)のみを載せたアクチュエータで駆動させた。このアクチュエータの概観をFig. 14に示す。

ファンクションジェネレータとアンプを用いてPZTの上下電極間に電圧を印加し、レーザードップラー振動変位計を用いて薄いシリコンゴムの変位を長さ方向に等間隔の測定点を30箇所取って測定した。電源及び測定装置の概略図をFig. 15に示す。

この測定では共振による位相のずれを利用せずに、入力電圧の位相をずらすことで振動の位相を制御した。すなわち、定常波が励起されるシリコンゴムの厚さは全て同じである。入力電圧の位相を $\pi/2$ ずつ遅らせたとき、基準高さに対する薄いシリコンゴムの変位の時間経過はFig. 16のようになった。このときの入力電圧は振幅 $\pm 25V$ 、周波数10Hzの正弦波である。Fig. 16から、定常波運動の位相をずらすことによって進行波ができたことがわかる。

進行波の発生が確認できたので、次に、流路をFig. 3の状態に組み合わせ、流路を液体で満たした。液体はイオン交換水を用い、流動の様子を可視化するためにマイクロビーズ(solids-latex, 直径:22 μm)をこの水に含ませた。

ファンクションジェネレータとアンプを用いて、周波数0~1000Hzで振幅0~50Vの正弦波を発生させ、PZTを変形させた。このときの印加電圧はFig. 12に示す通りであり、上下電極間にかかる電圧の向きを変えることで印加電圧の位相を π だけずらした。このときの実験装置の概略図をFig. 15に示す。

レーザードップラー振動計により各位置における進行波励起流路の変位を測定したところ、進行波の発生が認められた。その様子をFig. 17に示す。このときの印加電圧は周波数600Hzで $\pm 5V$ の正弦波である。続いて、水の流動の様子を顕微鏡にて観察した。その結果、電圧を印加するとマイクロビーズが大きく一定方向に動き出し、電圧を0にするとマイクロビーズの動きが止まった。この際、進行波の

方向とビーズの進行方向が等しいことが分かった。入力電圧は位置によって位相が π ずつずれているが、等間隔にずれているので電界の影響には全体として指向性がなく、電界の影響により液体もしくはマイクロビーズが動いたとは考えられない。以上のことから、進行波により水が流動したと考えられる。但し、ビーズの動きと水の流量との間の関係が明確でないため、流量を評価するには両者の関係を検討する必要がある。

600Hz 以外でも進行波が発生し、マイクロビーズの動きが観察された。そのときのビーズの移動速度は、印加電圧の振幅と周波数に依存することが分かった。周波数を同一にして、電圧振幅を変化させたときのビーズの移動速度についてまとめたものを Table 2 に示す。なお、ビーズの移動速度は、基板番号 1 から 5 への方向(Fig. 12 参照)を正にとった。

Table 2 : 印加電圧の周波数及び電圧振幅とマイクロビーズの移動速度

周波数(Hz)	電圧振幅(V)	ビーズの移動速度($\mu\text{m/s}$)
290	± 5.0	110
460	± 2.5	-110
470		430
560	± 0.5	70
	± 1.0	360

特定の周波数で水が流動したことの原因は、流路の共振と位相差の 2 つが考えられる。このことを利用すると周波数によって流量を制御できると考えられる。この原因を究明すれば、周波数によって流量を制御できると考えられる。また、印加電圧の振幅を大きくすると、同じ周波数でもビーズの動きが速くなった。これは、印加電圧の増加により進行波の振幅が大きくなり、駆動力が増したからだと考えられる。このことから、印加電圧の振幅によっても流量の制御が可能であると考えられる。

3.4 結言

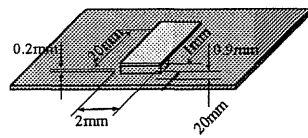
本研究では進行波型マイクロポンプを試作し、進行波によって液体を輸送できることを確認した。

- ・ 板状の圧電セラミックスである PZT に金属板(SUS430)を貼り付けて屈曲運動をさせる際に、板の長さ及び厚さによって得られる屈曲変位が異なることを計算した。この計算により貼付する金属板の厚さに最適値があることが分かった。
- ・ 個々の振動基板に定常波を励起し、その振動運動の位相を、励起したい進行波の進行方向に ϕ ($0 < \phi < \pi/2$) ずつ遅らせていくことによって進行波を励起することができた。
- ・ 粘弾性を考慮した曲げ振動の計算により、振動基板の厚さの 6 乗に依存して共振周波数が変化することが明らかになり、実際に振動基板の共振周波数付近における位相変化を利用して進行波を発生させることができた。
- ・ マイクロビーズを含んだ水を流路に満たし、マイクロビーズの運動の様子から水の流動を観察した。これにより、励起した進行波によって水を搬送できることが確認された。このとき、入力電圧の振幅によって流量を変化させられることが分かった。また、入力電圧の周波数によっても流量を操作できることが明らかになった。このような制御を行うには入力電圧と流量の関係、入力電圧の周波数と流量の関係を明らかにする必要がある。

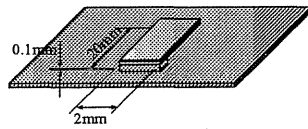
【参考文献】

- 1) J.G.Smits, "Piezoelectric micropump with three valves working peristaltically," *Sensors and Actuators*, A21-23, 1990, p.203-206.
- 2) C. Grosjean and Y.C. Tai, "A Thermopneumatic Peristaltic Micropump," 1999 International Conference on Solid-State Sensors and Actuators (Transducers '99), 1999.
- 3) S. Matsumoto, A. Klein and R. Maeda, "Development of Bi-directional Valve-less Micropump for Liquid," in MEMS '99, 1999, p.141-146.
- 4) Chong H. Ahn and Mark G. Allen, "Fluid Micropumps Based on Rotary Magnetic

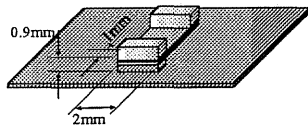
- Actuators," in MEMS '95, 1995, p.408-412.
- 5) Charles Grosjean, Xing Yang, and Yu-Chong Tai, "A Practical Thermopneumatic Valve," in MEMS '99, 1999.
 - 6) Ellis Meng, Xuan-Qi Wang, Howen Mak, and Yu-Chong Tai, "A Check-valved Silicone Diaphragm Pump," in MEMS '00, 2000.
 - 7) 柴田俊忍, 大谷隆一, 駒井謙治郎, 井上達雄, 「材料力学の基礎」, 培風館, 1991
 - 8) 本間基文, 北田正弘編, 「機能材料入門」, アグネ, 1981
 - 9) ファインセラミックス事典編集委員会, 「ファインセラミックス事典」, 技報堂出版株式会社, 1987
 - 10) 小林繁夫, 「振動学」, 丸善株式会社, 1994
 - 11) Takuro Ikeda, "Fundamentals of piezoelectricity," Oxford University Press, 1996
 - 12) 池田拓郎, 「日本音響学会誌 第23巻 第5号」, 1967, p.300-310.



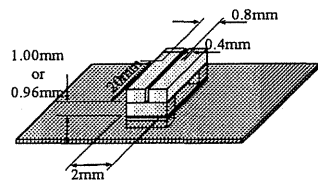
1) アクリル基板にPZTを接着



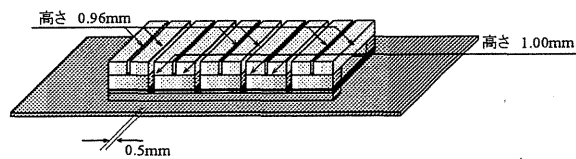
2) PZTの上にSUS430を貼付



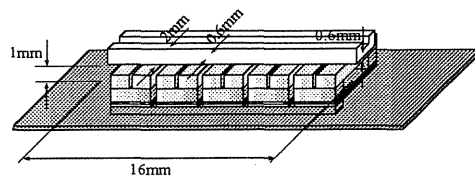
3) SUS430の上にglassを接着



4) glassの上にSilicon_rubberを接着



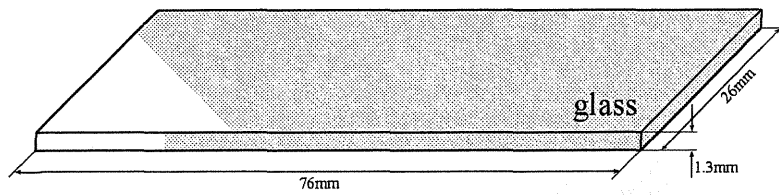
5) (PZT/SUS430/glass/Silicon_rubber)基盤を5つ作製



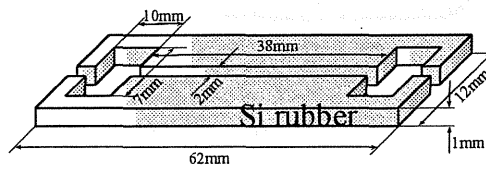
6) channelを載せる

Fig. 1 : アクチュエータの作製プロセス

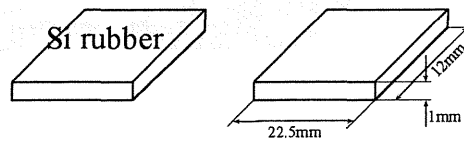
1) cover glass



2) channel



3) bottom



積層する

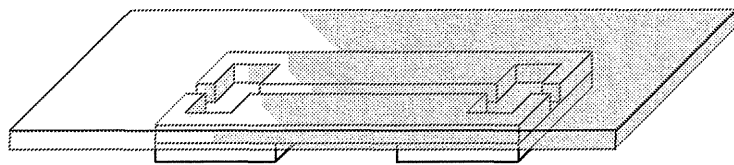


Fig. 2 : 流路部の作製プロセス

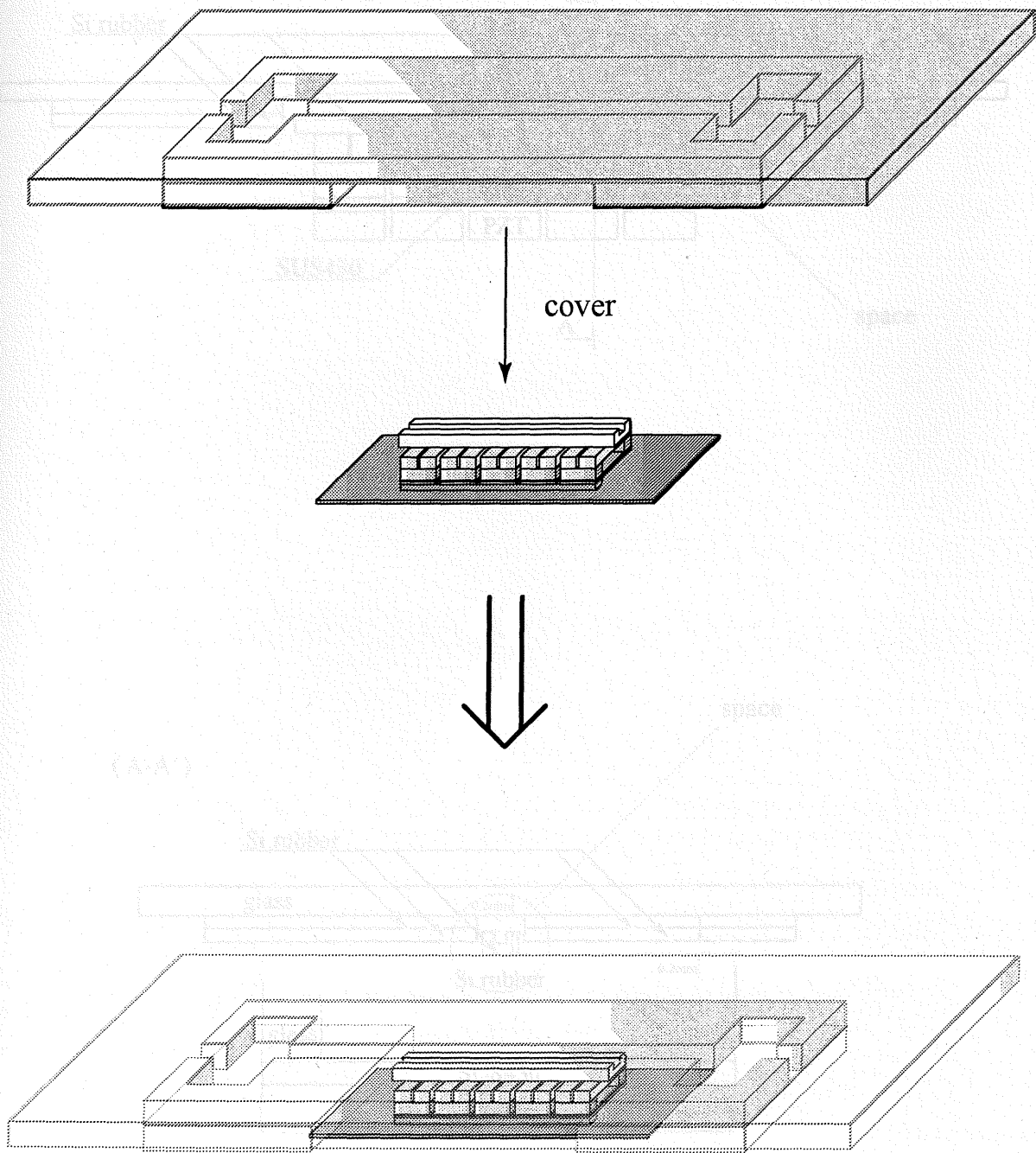


Fig. 5 : cross section

Fig. 3 : アクチュエータ部と流路部の組み合わせ

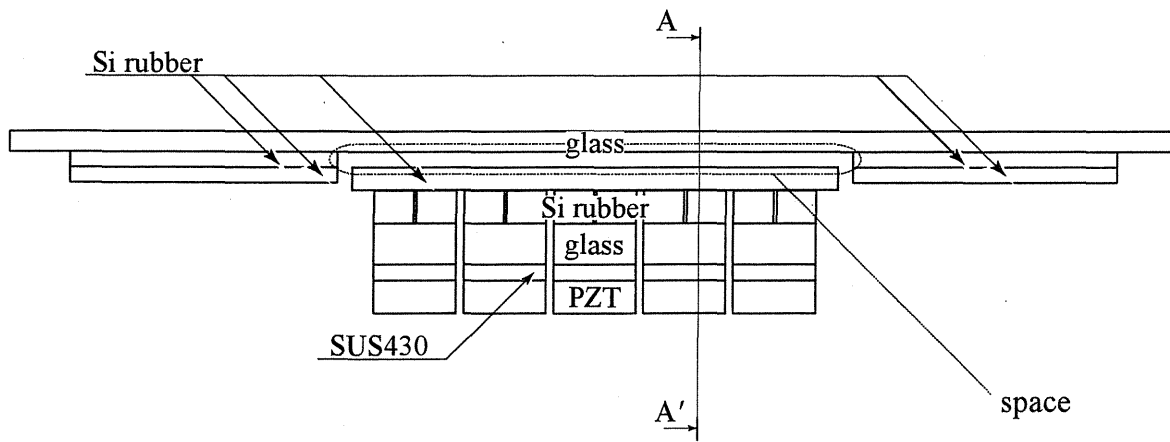


Fig. 4 : side view

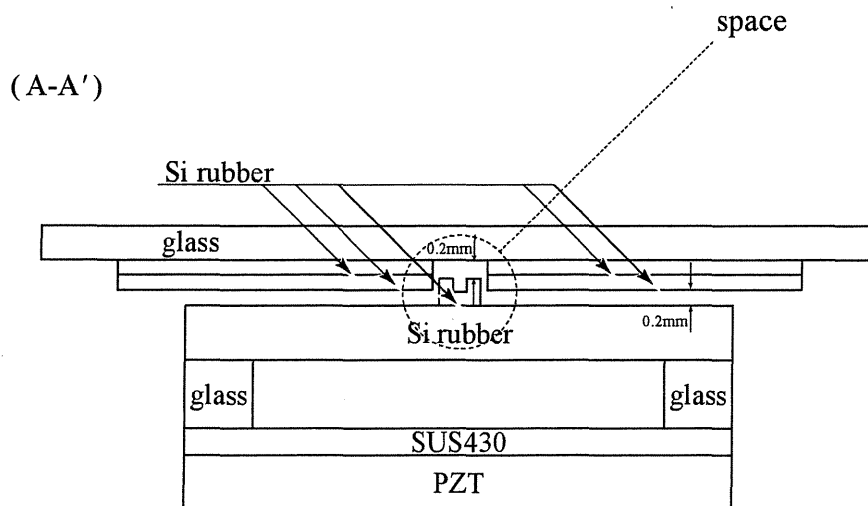


Fig. 5 : cross section

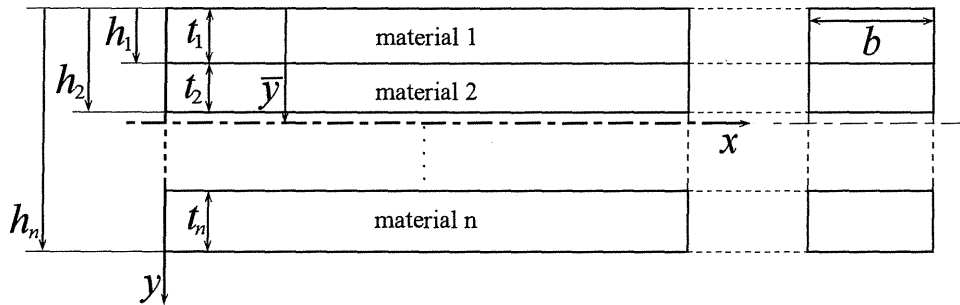


Fig. 6 : composite layer

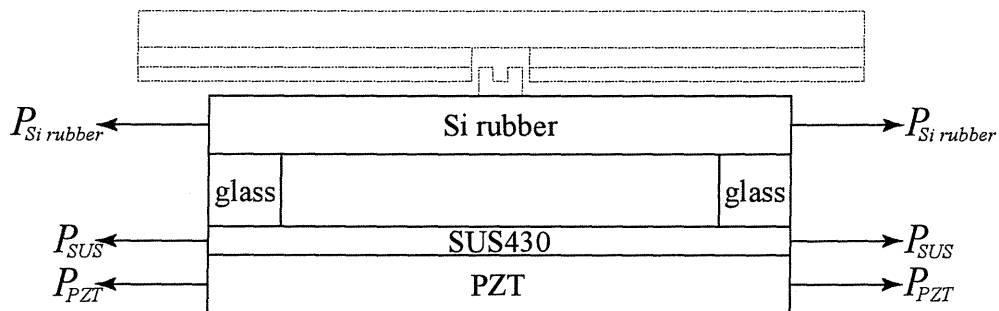


Fig. 7 : definition of forces

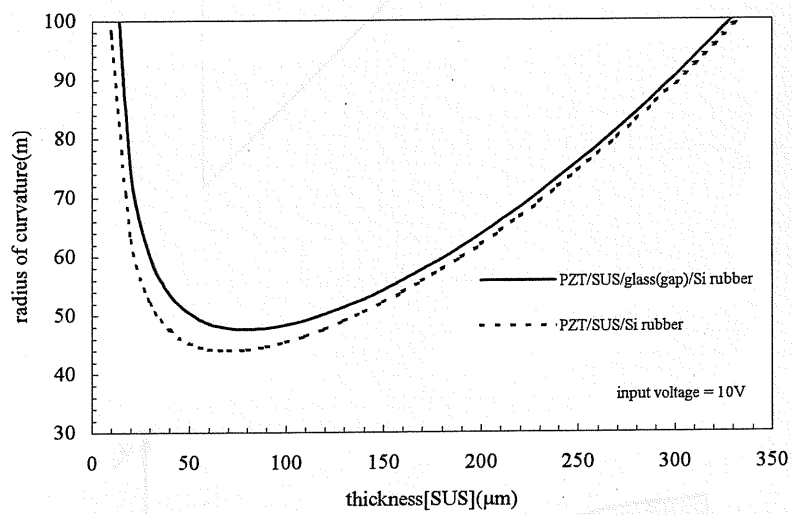


Fig. 8 : SUS 厚さと PZT/SUS (/glass)/Si rubber 基盤の曲率半径の関係

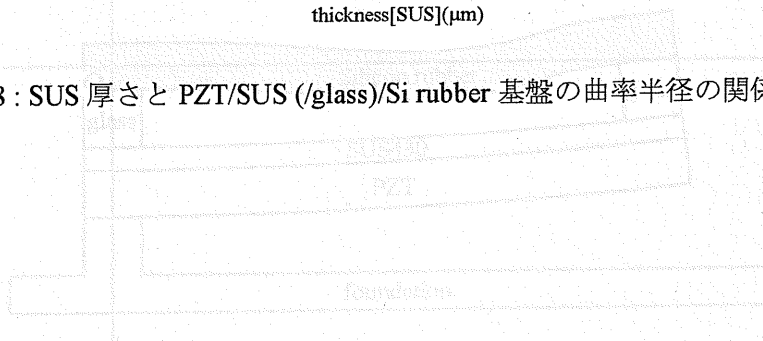
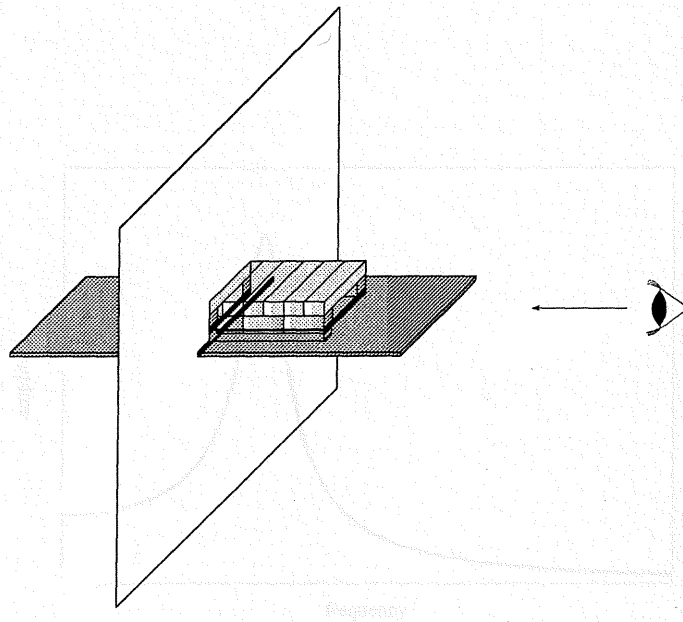
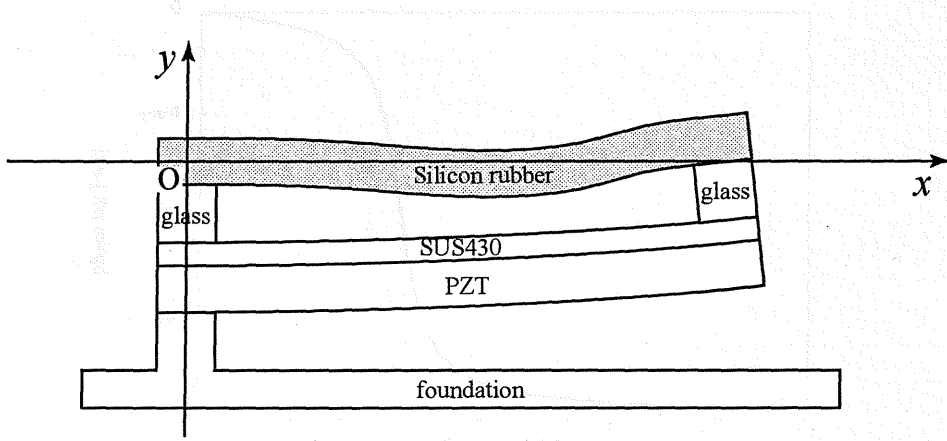


Fig. 9 : 実験装置の断面図

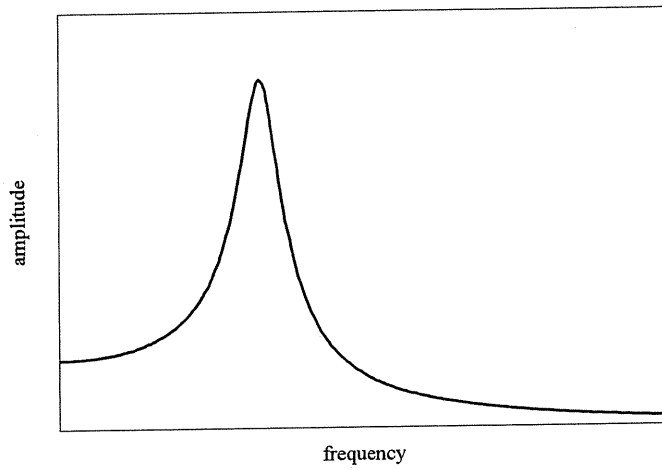


a) resonance curve

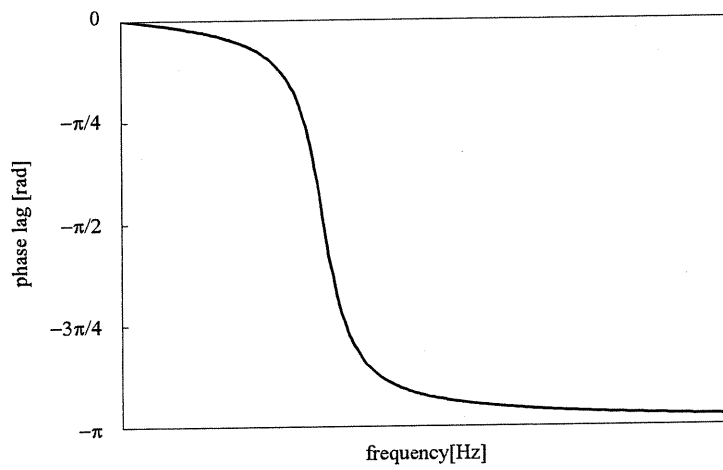


b) phase lag

Fig. 9 : 定常波励起素子の断面図

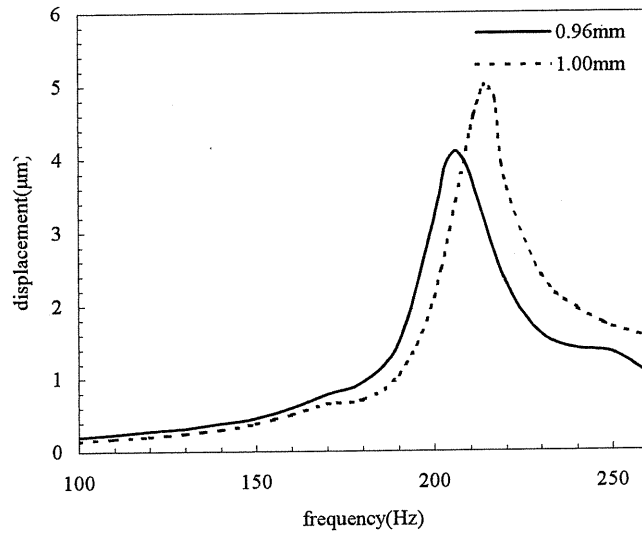


a) resonance curve

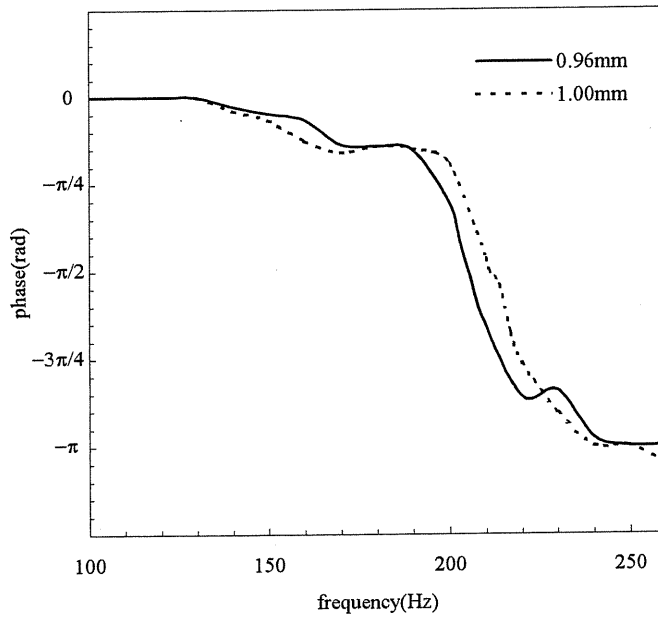


b) phase lag

Fig. 10 : 粘性減衰のある強制振動の解



a) resonance curve



b) phase lag

Fig. 11 : シリコンゴムの厚さを変えたときの周波数と位相遅れの関係

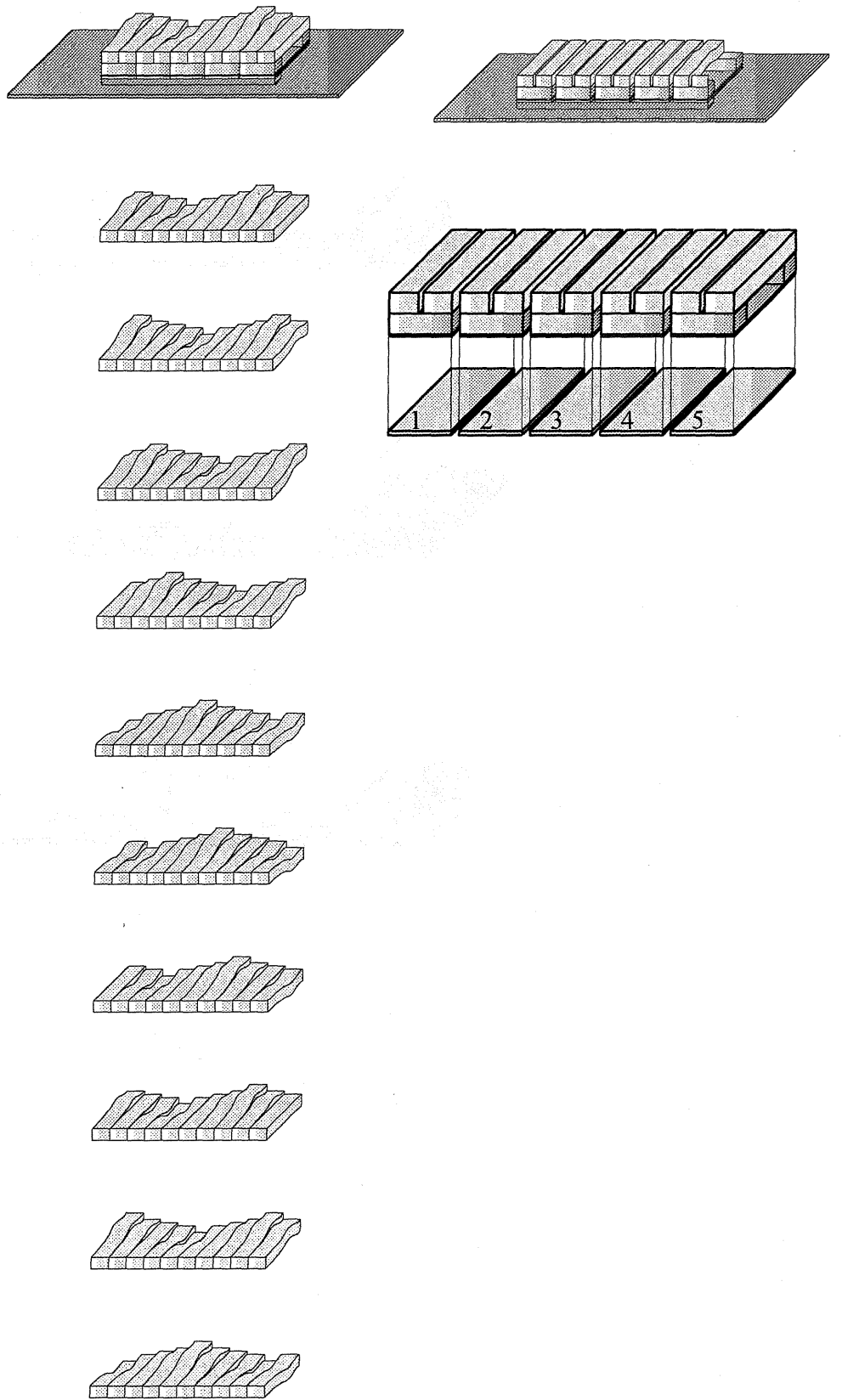


Fig. 12 : moving wave

進行波の方向

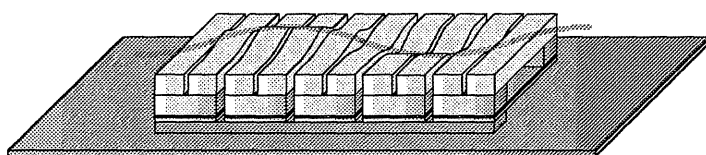
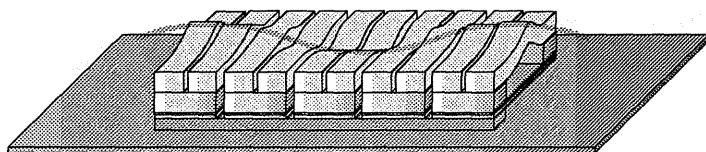
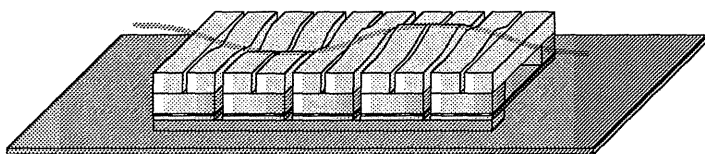
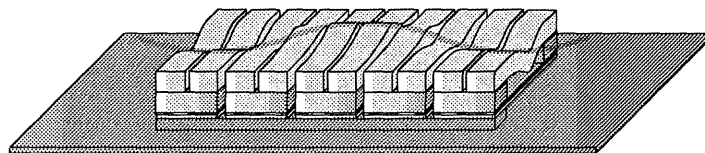
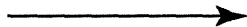


Fig. 13 : 励起される進行波の様子

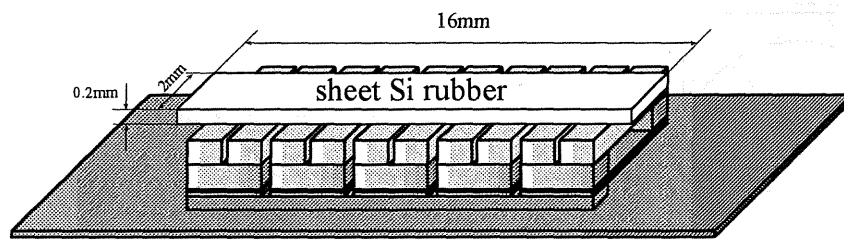


Fig. 14 : 流路の代わりに薄いシリコンゴムを載せたときの進行波励起アクチュエータ

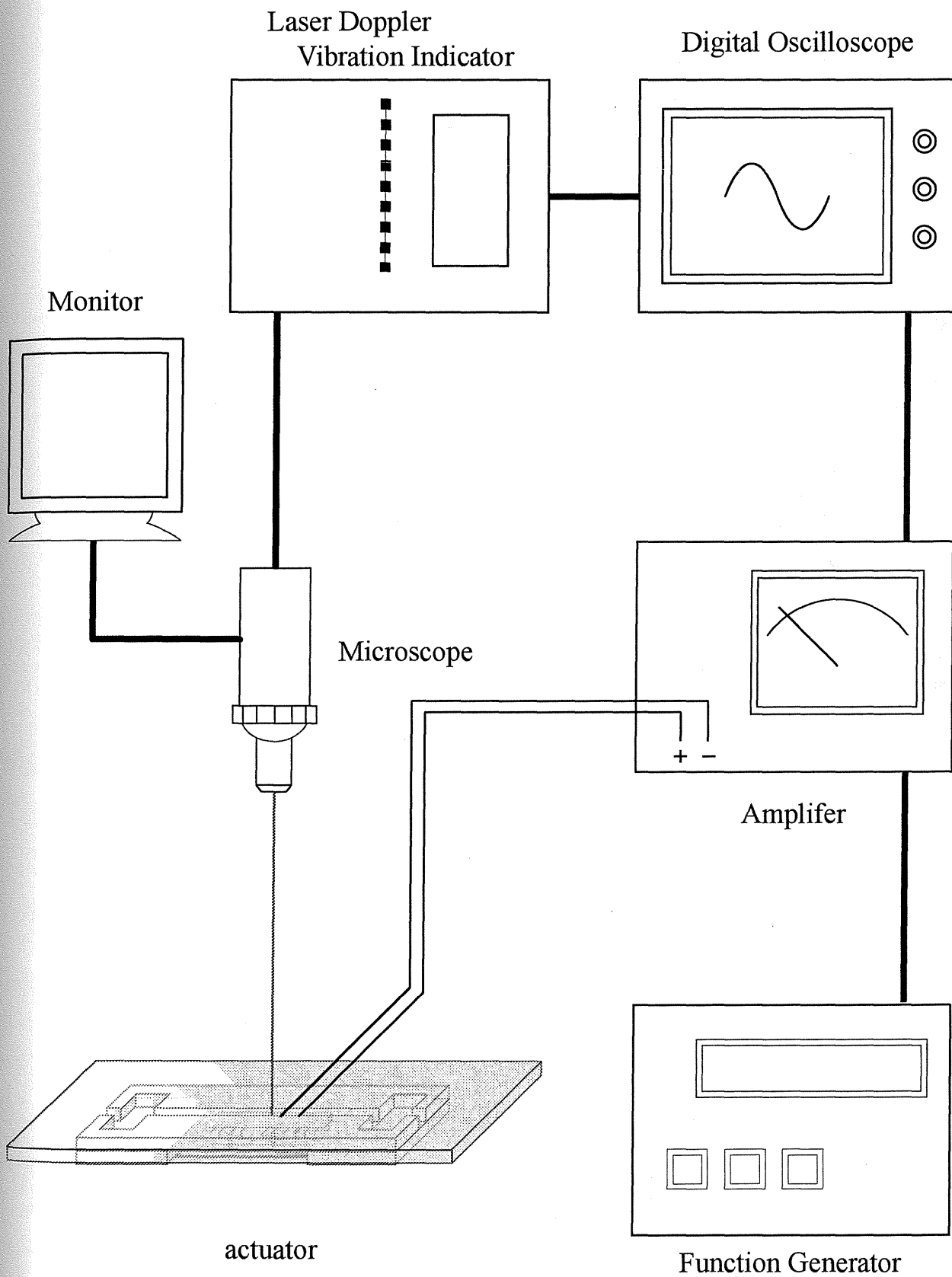
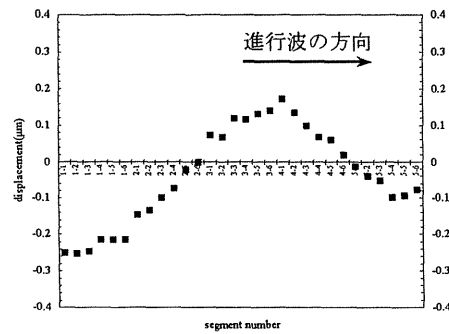
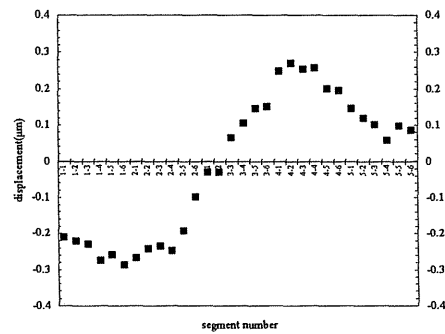


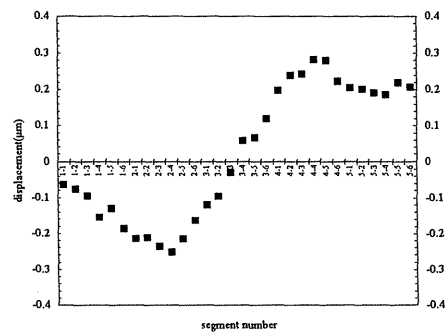
Fig. 15 : experimental set up



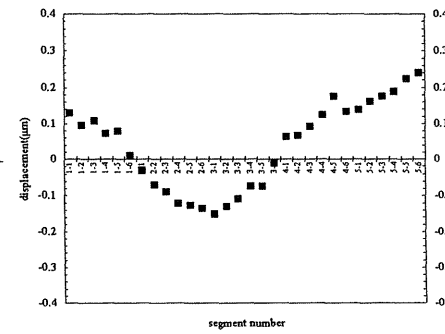
a) $T/8$ [s]



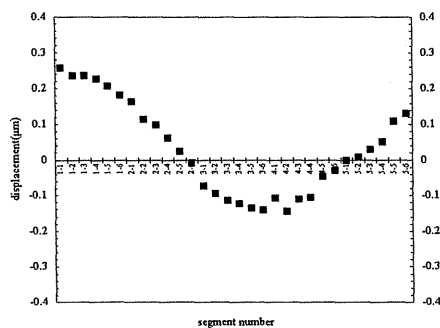
b) $2T/8$ [s]



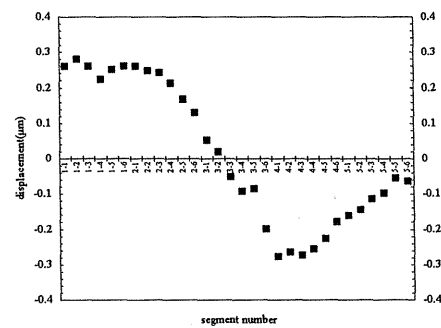
c) $3T/8$ [s]



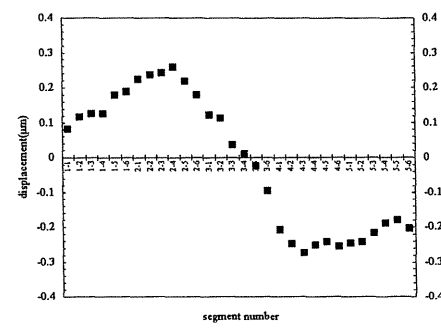
d) $4T/8$ [s]



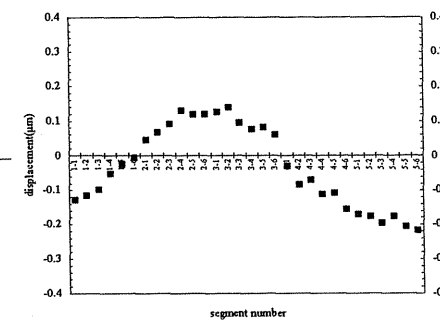
e) $5T/8$ [s]



f) $6T/8$ [s]

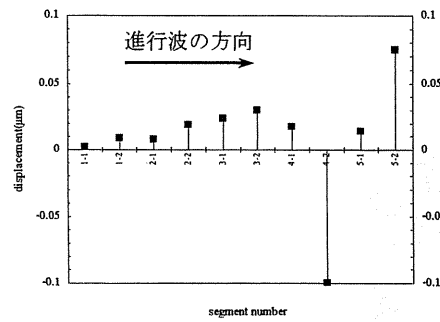


g) $7T/8$ [s]

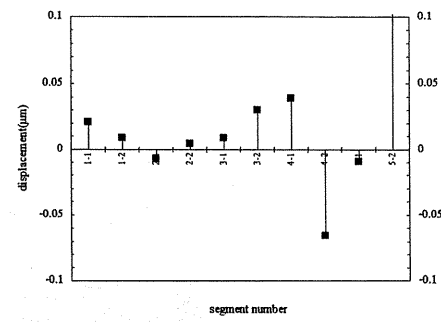


h) T [s]

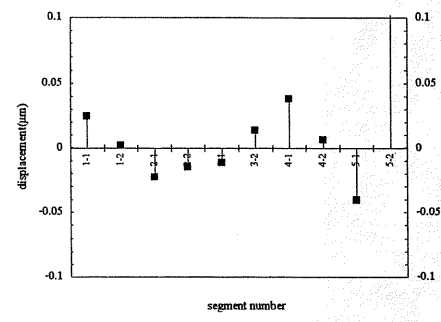
Fig. 16: $\pm 25V$ -10Hz の交流電圧で駆動したとき、薄いシリコンゴムに発生した進行波状変位



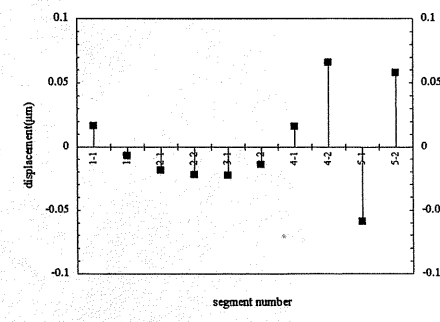
a) $T/8$ [s]



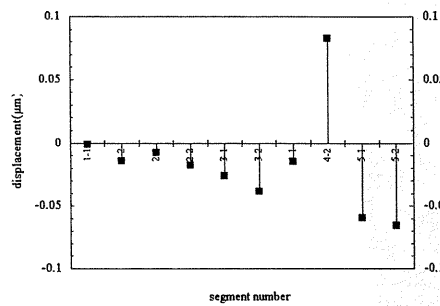
b) $2T/8$ [s]



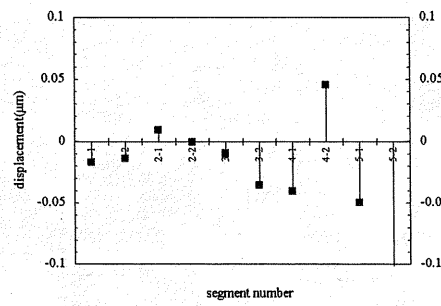
c) $3T/8$ [s]



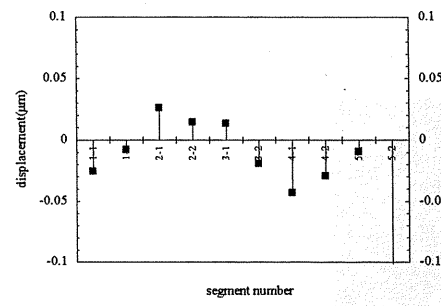
d) $4T/8$ [s]



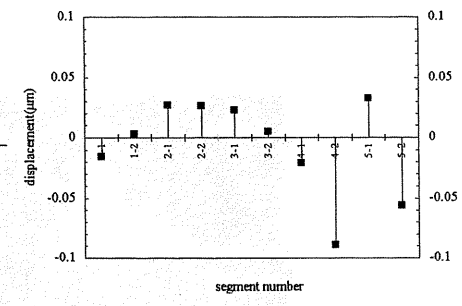
e) $5T/8$ [s]



f) $6T/8$ [s]

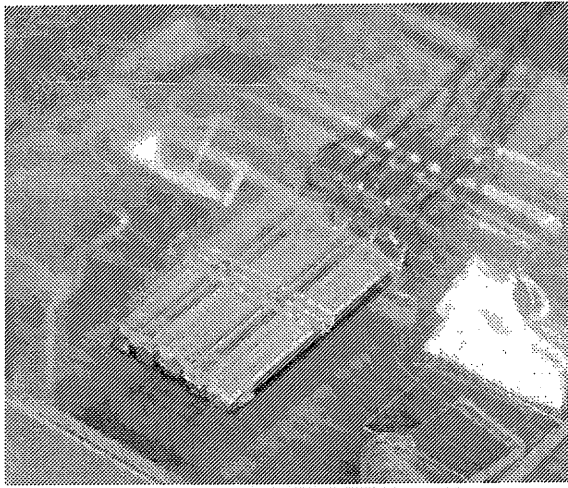


g) $7T/8$ [s]

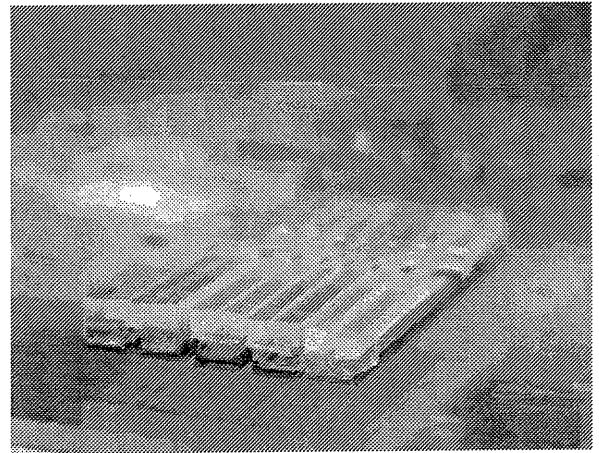


h) T [s]

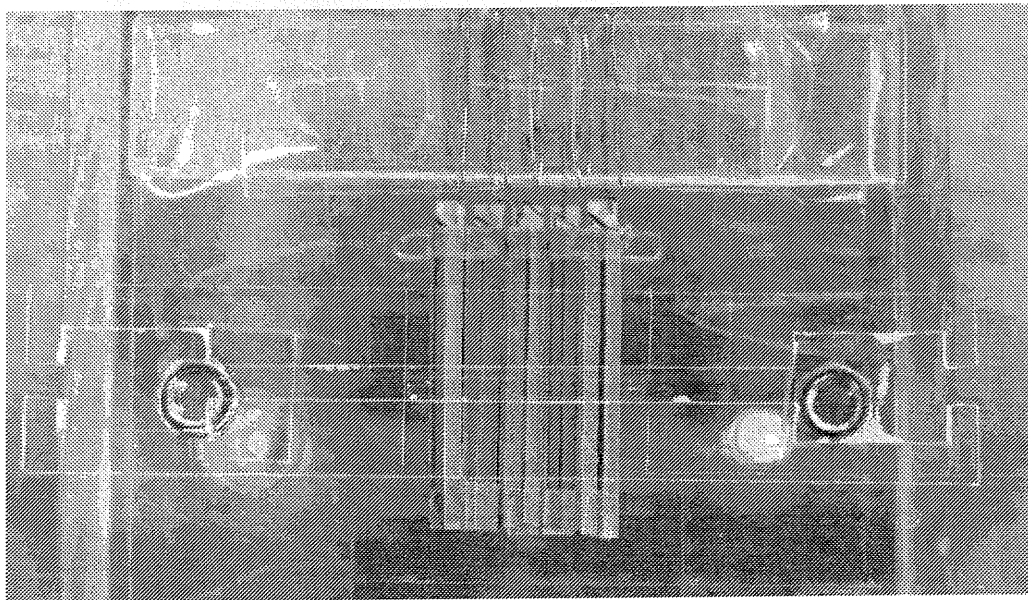
Fig. 17: $\pm 5V-600Hz$ の交流電圧で駆動したとき、流路に発生した進行波状変位



a) 進行波励起流路



b) 定常波励起シリコンゴム



c) 進行波型マイクロポンプの全体写真

Fig. 18 : 進行波型マイクロポンプの写真

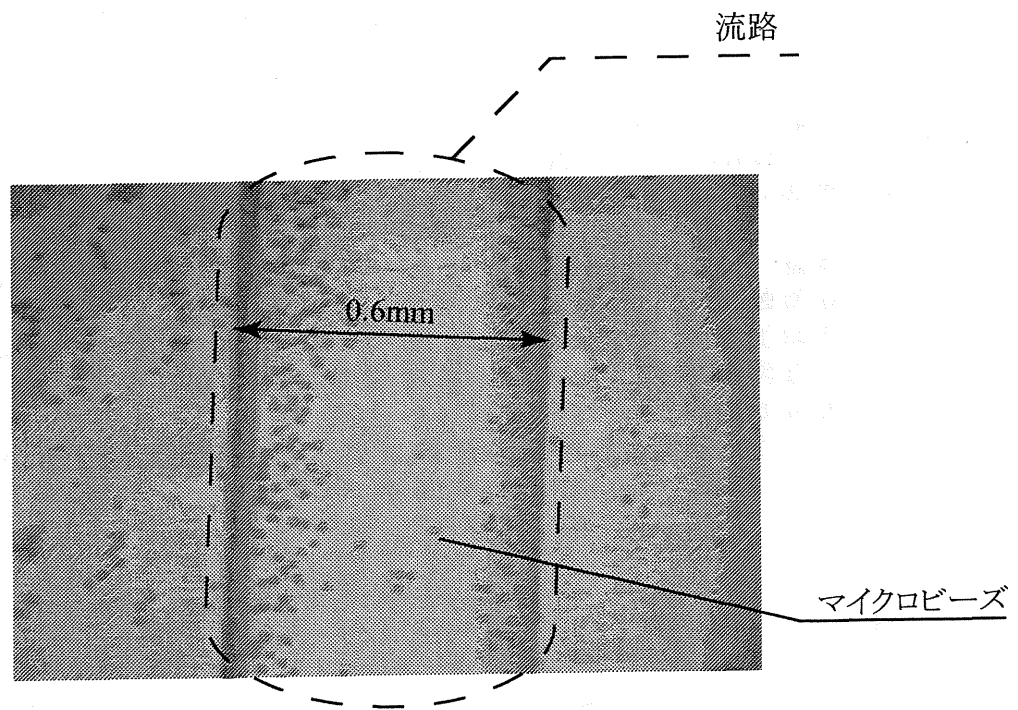


Fig. 19: 進行波状流路を水が流れる様子

4章分散構造によるマイクロミキサーに関する考察

4.1 緒言

近年、 μ TASに関する研究が盛んに行われている。 μ TASとは、生命科学における分子操作や、医療における血液分析に代表される検査装置をマイクロデバイス内で行うものである。マイクロデバイス内でこのような作業を行うことにより、必要とする血液等が少量で済み、痛みが少なく人に優しい検査形態を実現できる。さらに、摂取量も少ないため後処理も簡単であり、二次的な感染を防ぐことができる。また、環境センサーとしても反応時間の短縮やセンサーの設置の容易さなどが上げられる。 μ TASはマイクロミキサー部分、マイクロポンプ部分、リアクター部分、セパレーター部分、ディテクター部分、から構成される。

μ TASの利点である反応時間の短縮化を実現するためには、サンプルと試薬を迅速に混合することのできるマイクロミキサーが重要である。 μ TASに使われる領域においてレイノルズ数は非常に小さく(Reynolds numbers $\ll 2000$)流れは層流である。すなわちこの領域で流体を混合するというのは非常に困難である。

これまで研究されてきたマイクロミキサーは非積極、積極の2種類に分類される。非積極なものとは、流路構造に工夫を加え2種流体の接触面積を増加させ、反応速度を高める方法である。^{1), 2), 3)}2種流体の反応の速度は互いの接触面積に依存しており、より速い反応速度を得るためには複雑な構造を必要とし、製作が困難になってしまう。またこれらのミキサーは物質の拡散速度に大きく依存しているので反応が終了するまでに時間を要する。このように外部から何らかのエネルギーを供給することなく混合をするものは非積極的混合方法と定義できる。

反対に積極的方法により攪拌を行うことで反応速度を高める方法で、valveless micropumpのノズル付近において乱れが生じることを利用したものや⁴⁾、PZTを用いてmixing chamber内に超音波を与えて攪拌させる方法⁵⁾、磁性流体を注入し外部よりかき混ぜるもの⁶⁾などがある。これらのミキサーについては流体の混合に関して確立された理論がなく、非効率的にエネルギーを供給しているため十分に混合ができているとはいえない。

これらの問題点を解決するために本研究においては、まずケルビン・ヘルムホルツ不安定性理論^{7) 8)}を用いて、2流体界面に微小振動を与えた場合、その微小振動が時間につれて発達するかどうか、またその振動の波数と角振動数の分散関係について検討するとともに、マイクロメンブレンの振動により2流体をミキシングすることが可能なマイクロミキサーを製作して検討した。

4.2 ケルビン・ヘルムホルツ不安定性理論による解析

2流体が混ざるといふ現象は、流体界面が不安定になりやがては界面が消滅するということを意味する。そこで2流体界面に微小な振動が発生した時、その振動が不安定に発達する条件について解析を行う。

発達する微小振動の条件はケルビン・ヘルムホルツ不安定性理論より求める。Fig 1に示すように流体が上下に2種類流れる場合を考える。一般に μ TASの領域では粘性力の影響が大きいとされるが、界面の不安定性は界面と垂直方向の粘性応力との関係が非常に重要であり、界面と平行な方向での粘性応力は影響を及ぼさない。Fig.1は流体を並行流として扱っているため界面の不安定性を議論する場合には非粘性流体としてよい。そこで取り扱う流体は非粘性とし、速度、圧力、密度、界面の変位をそれぞれ以下のように定義した。

x 方向の流速を時間に関して定常なもの、変化するものに分けて

$$U_i = U_i^0(z) + u_i(t, x, y, z),$$

y 方向の流速を

$$V_i = v_i(t, x, y, z),$$

z 方向の流速を

$$W_i = w_i(t, x, y, z),$$

圧力を時間に関して定常なもの、非定常なものに分けて

$$P_i = P_i^0(z) + p_i(t, x, y, z),$$

流体の密度を時間に関して定常なもの、非定常なものに分けて

$$\rho_i = \rho_i^0(z) + \delta\rho_i(t, x, y, z),$$

とした。さらに 2 流体界面の微小振動を次式とした。

$$\eta = \eta(t, x, y),$$

ただし $i=1, 2$ でそれぞれの流体を示し $u_i, v_i, w_i, \delta\rho_i, \eta, p_i$ は微小変動項を示し、上添え字 0 は定常項を示す。微小項を省略すると、乱れを支配する方程式と境界条件式は以下のように求められる。

$$\rho_i^0 \frac{\partial u_i}{\partial t} + \rho_i^0 U_i^0 \frac{\partial u_i}{\partial x} + \rho_i^0 w_i \frac{\partial U_i^0}{\partial z} = -\frac{\partial p_i}{\partial x} \quad \dots \quad (1),$$

$$\rho_i^0 \frac{\partial v_i}{\partial t} + \rho_i^0 U_i^0 \frac{\partial v_i}{\partial x} = -\frac{\partial p_i}{\partial y} \quad \dots \quad (2),$$

$$\rho_i^0 \frac{\partial w_i}{\partial t} + \rho_i^0 U_i^0 \frac{\partial w_i}{\partial x} = -\frac{\partial p_i}{\partial z} - g\delta\rho_i \quad \dots \quad (3),$$

ナビエ・ストークス式は x 方向について

y 方向

z 方向

と定義できる。この流体の流れが発達した流れであると仮定すると連続の式は

$$\frac{\partial u_i}{\partial x} + \frac{\partial v_i}{\partial y} + \frac{\partial w_i}{\partial z} = 0 \quad \dots \quad (4),$$

と表すことができる。また圧縮性を示す式は、

$$\frac{\partial \delta\rho_i}{\partial t} + U_i \frac{\partial \delta\rho_i}{\partial x} = -w_i \frac{\partial \rho_i^0}{\partial z} \quad \dots \quad (5),$$

となる。2 流体界面における運動的境界条件は、

$$\frac{\partial \eta}{\partial t} + U_i \frac{\partial \eta}{\partial x} = -w_i \quad (\text{at } z=0) \quad \dots \quad (6),$$

また界面での法線方向の力のつりあい方程式は、上の(1)~(6)式より、

$$\lim_{\varepsilon \rightarrow 0} \int_{z=0-\eta}^{z=0+\eta} (\rho_i^0 \frac{\partial w_i}{\partial t} + \rho_i^0 U_i^0 \frac{\partial w_i}{\partial x} + \frac{\partial p_i}{\partial z} + g \delta \rho_i) dz = 0 \quad \dots \dots \dots (7),$$

と表せる。ただし g は重力加速度を示す。

(7)式を分解すると

$$\lim_{\varepsilon \rightarrow 0} \int_{-\eta}^{+\eta} \rho_i^0 \frac{\partial w_i}{\partial t} + \rho_i^0 U_i^0 \frac{\partial w_i}{\partial x} dz + \eta(\rho_1 - \rho_2)g + (P_1 - P_2) = 0 \quad \dots \dots \dots (8),$$

と変形でき、ここでアントナウの法則より、 σ を 2 種流体の界面張力の差を取ったものの絶対値を示すものとする、

$$P_2 - P_1 = -\sigma \frac{\partial^2 \eta}{\partial x^2} \quad \dots \dots \dots (9),$$

であるので (9)式を(8)式に用いると、

$$\lim_{\varepsilon \rightarrow 0} \int_{-\eta}^{+\eta} \rho_i^0 \frac{\partial w_i}{\partial t} + \rho_i^0 U_i^0 \frac{\partial w_i}{\partial x} dz + \eta(\rho_1 - \rho_2)g = -\sigma \frac{\partial^2 \eta}{\partial x^2} \quad \dots \dots \dots (10),$$

という式が得られる。よって 2 流体界面における法線方向の力のつりあい式は、

$$\lim_{\varepsilon \rightarrow 0} \int_{+\eta}^{-\eta} \rho_i^0 \frac{\partial w_i}{\partial t} + \rho_i^0 U_i^0 \frac{\partial w_i}{\partial x} dz + \eta(\rho_2 - \rho_1)g = \sigma \frac{\partial^2 \eta}{\partial x^2} \quad \dots \dots \dots (11),$$

と表されることが分かる。

流路壁 $z = h_1, -h_2$ において、 z 方向の流速は 0 であるので、

$$w_i \Big|_{z=h_1, -h_2} = 0 \quad \dots \dots \dots (12),$$

という境界条件を満たさなければならない。

(4)式より、この流れに対して速度ポテンシャルが定義できることが分かる。 ϕ_i を速度ポテンシャルとすると、(4)式は

$$\nabla^2 \phi_i = 0 \quad (i = 1, 2) \quad \dots \dots \dots (13),$$

とラプラスの方程式を満たす。

ϕ_i を一様項と微小変動項に分離して

$$\phi_i = U_i x + \tilde{\phi}_i = \phi_i' + \tilde{\phi}_i \quad \dots \dots \dots (14),$$

定常項を ϕ_i' 、変動項を $\tilde{\phi}_i$ と定義する。

また界面に生ずる微小振動を

$$\eta = \varepsilon \exp[(j(kx + \omega t))] \quad \dots \dots \dots (15),$$

とする。ただし微小振幅を ε 、振動の波数を k 、角振動数を ω と定義する。

定義した速度ポテンシャルを用いてこれまで定義してきた条件式を変形する。

速度ポテンシャルを(11)式において求められた 2 流体界面($z=0$)での境界条件へ代入すると、2 流体界面の圧力バランスは

$$\rho_2 \left(\frac{\partial \phi_2}{\partial t} + U_2 \frac{\partial \tilde{\phi}_2}{\partial x} \right) - \rho_1 \left(\frac{\partial \phi_1}{\partial t} + U_1 \frac{\partial \tilde{\phi}_1}{\partial x} \right) + \eta(\rho_2 - \rho_1)g = \sigma \frac{\partial^2 \eta}{\partial x^2} \quad \dots (16),$$

(at $z = 0$)

と表すことができる。

運動的境界条件式は(6)式より

$$\left. \frac{\partial \phi_1}{\partial z} \right|_{z=0} = \frac{\partial \eta}{\partial t} + U_1 \frac{\partial \eta}{\partial x} \quad \left. \frac{\partial \phi_2}{\partial z} \right|_{z=0} = \frac{\partial \eta}{\partial t} + U_2 \frac{\partial \eta}{\partial x} \quad \dots (17),$$

と書き換えられる。

また式(12)より流路壁において z 方向の流速は 0 でなくてはならないので、

$$\left. \frac{\partial \phi_1}{\partial z} \right|_{z=h_1} = 0 \quad \left. \frac{\partial \phi_2}{\partial z} \right|_{z=-h_2} = 0 \quad \dots (18), \text{ とい}$$

う式が成り立つ。

これらの境界条件を満たすためには、

$$\phi_1 = U_1 x + (A_1 \cosh(kz) + B_1 \sinh(kz))\varepsilon \exp[j(kx + \omega t)]$$

$$\phi_2 = U_2 x + (A_2 \cosh(kz) + B_2 \sinh(kz))\varepsilon \exp[j(kx + \omega t)] \quad \dots (19),$$

の形でなければならない。ただし A_i, B_i は未定係数。

(17)式より、未定係数 B_1, B_2 が求められて、

$$B_1 = \frac{j(\omega + kU_1)}{k}, \quad B_2 = \frac{j(\omega + kU_2)}{k} \quad \dots (20),$$

(20)式の値を(19)式に代入したものを(17)式に代入すると、

$$k(A_1 \sinh(kh_1) + B_1 \cosh(kh_1)) = 0$$

$$k(-A_2 \sinh(kh_2) + B_1 \cosh(kh_2)) = 0 \quad \dots (21), \text{ とい}$$

う条件を満たす必要があることが分かる。つまり、

$$A_1 = -\frac{j(\omega + kU_1) \cosh(kh_1)}{k \sinh(kh_1)}$$

$$, A_2 = \frac{j(\omega + kU_2) \cosh(kh_2)}{k \sinh(kh_2)} \quad \dots (22), \text{ とな}$$

り、速度ポテンシャルのすべての未定係数が求まった。

ケルビン・ヘルムホルツ不安定性理論

(16)式の条件に上で求められたポテンシャルを代入すると、

$$\frac{\rho_2 \cosh(kh_2)}{k \sinh(kh_2)} (\omega + kU_2)^2 + \frac{\rho_1 \cosh(kh_1)}{k \sinh(kh_1)} (\omega + kU_1)^2 - (\rho_2 - \rho_1)g = \sigma k^2 \quad \dots (23),$$

これが k と ω の分散関係式になる。ここで E, F を次のようにおいて

$$\rho_1 \frac{\cosh(kh_1)}{\sinh(kh_1)} = E, \quad \rho_2 \frac{\cosh(kh_2)}{\sinh(kh_2)} = F \quad \dots (24), \quad (23)$$

式を ω の2次式として整理すると

$$(E+F)\omega^2 + 2(EU_1 + FU_2)k\omega + k^2(EU_1^2 + FU_2^2) - (\rho_2 - \rho_1)gk - \sigma k^3 = 0 \quad \dots \cdot (25),$$

という式が得られる。これを ω に関して解いたときの解を

$$\omega = \alpha \pm \sqrt{\beta^2} \quad \dots \cdot (26),$$

とすると,

$$\beta^2 = [(EU_1 + FU_2)k]^2 + (E+F)[k^2(EU_1^2 + FU_2^2) - (\rho_2 - \rho_1)gk - \sigma k^3] \quad \dots \cdot (27),$$

である。 $\beta^2 > 0$ のとき界面は安定、 $\beta^2 = 0$ のとき界面は中立、 $\beta^2 < 0$ のとき界面は不安定となる。

不安定領域

実際の数値解析では Table 1 に示す 2 流体の場合について、Table 2 に示した U_1 と U_2 の流速比が 1,2,3,5,10 倍になるような組み合わせで計算した。また重力加速度 g は 9.8065m/s^2 とした。ただし、流路壁までの距離 $h_1=h_2=40\mu\text{m}$ とした。重力の効果を得るために質量の大きなものを上に側に配置した。

前節で解析した結果をもとにここで上げた数値を利用して計算した結果を $U_1 > U_2$ の場合を Fig.2-1, $U_1 < U_2$ の場合を Fig.2-2 に示す。いずれの場合も $0 < k < 234$ の範囲で振動は不安定領域に位置していることが分かる。 $U_1 > U_2$ の場合と $U_1 < U_2$ 場合の差はほとんど生じず、不安定増幅率を示す β^2 の絶対値は流速比が増すにつれて少しずつ増加するがこの流速比においてはほとんど変化がないことが分かる。

ケルビン・ヘルムホルツ不安定性理論では、流体を非粘性流体として計算を行っているためこのモデルで実際の現象をとらえるのは不十分といえるが、実際の現象ではこの理論から得ることのできた不安定領域の振動の中で最大増幅率を持つ波によって 2 流体は不安定になると考えられる。すなわち K・H 不安定性理論により求めた不安定極値において、求めた角振動数を、

$$\omega = \alpha - \beta j \quad \dots \cdot (28),$$

として、この値を微小振動の波の式(15)に代入すると

$$\eta = \varepsilon \exp i(kx + \omega t) = \varepsilon \exp i(kx + \alpha t) \times \exp(\beta t) \quad \dots \cdot (29),$$

と変形できる。一般的に振動の周波数 f は、

$$f = \frac{\omega}{2\pi} \quad \dots \cdot (30),$$

となるが、ここでは(29)式より

$$f = \frac{\alpha}{2\pi} \quad \dots \cdot (31),$$

を計算すればいいことが分かる。また、微小振動の波長 λ は

$$\lambda = \frac{2\pi}{k} \quad \dots \cdot (32),$$

と表すことができる。

不安定増幅率が極値を取るところでの波数, 不安定性増幅率, 振動数, 周波数, 波長を Table2 に示した。流速比が上昇するにつれ $U_1 > U_2$ の場合も $U_1 < U_2$ の場合も不安定周波数は減少していく。また不安定周波数は $U_1 > U_2$ の場合と $U_1 < U_2$ の場合とを比較するとやや $U_1 > U_2$ の方が小さな値になっているがあまり差はないことが Fig.2-3 より分かる。

重力の影響の発生しない $\rho_1 = \rho_2 = 998.2 \text{ kg/m}^3$ の場合に $U_1 = U_2 = 100 \mu\text{m/s}$ と $U_1 = 5U_2 = 500 \mu\text{m/s}$ の場合を比較した図を Fig2-4 に示す。速度差をつけなければ界面に発生した微小振動は発達せず, 積極的に速度差をつける必要があることが分かる。また, 極値での不安定性増幅率も非常に小さく 0.6×10^{-6} で波長 λ は 1.46 m , 振動数は 4.87 kHz , と質量差を利用したものの方が非常に効率がよいことを示している。

ここで示した流速で2液を流した際に, 解析より得られた振動数を持つ振動を界面に入れてやれば, もしくは得られた波長が発生する境界条件を与えれば界面の微小振動は発達していくと考えられる。

主な記号

h_i : 流路高さ
μ_i : 粘性定数
k : 波数
ω : 角周波数
f : 振動数
A, B_i : 任意定数
ε : 微小定数
ρ_i : 密度
σ : 界面張力の差 ($\sigma = \sigma_1 - \sigma_2 $)
g : 重力加速度
t : 時間
ϕ_i : 流体のポテンシャル
ϕ' : 流体のポテンシャル (定常項)
$\tilde{\phi}_i$: 流体のポテンシャル (変動項)
U_i : x 方向の流速 (定常項)
u_i : 速度の微小変動項
V_i : y 方向の流速 (定常項)
v_i : 速度の微小変動項
W_i : z 方向の流速 (定常項)
w_i : 速度の微小変動項
P_i : 圧力
η : 界面における微小振動
添え字
1: 流体1(上側)
2: 流体2(下側)
x : x 方向
y : y 方向
z : z 方向
j : 虚数

4.3 装置の製作と動作測定結果

装置の構造及び製作プロセス

前節のケルビン・ヘルムホルツ不安定性理論解析より得られた振動数を持つ微小振動を流体界面に与える構造として Fig.3 に示すマイクロミキサーを考案した。上部電極として作成したメンブレンを振動することにより 流体界面に微小振動を与えるものである。メンブレンを振動させる方法として静電駆動型マイクロアクチュエーターの駆動原理を応用した。また、前節の解析により得られた波長は約 3.78cm であるので、マイクロミキサーの全長を 4cm とした。

μ TAS における流路幅は非常に狭くメンブレンの長さを取る事に関して非常に不利である。メンブレン長さが取れないということはすなわち変形ストロークが取れないということにつながる。そこで Fig.4 に示す形状を作ることで、ストロークを得ることを目指した。また、本研究では静電気力を用いてメンブレンを振動させるため、大きなストロークを取ることができない。そこで多段にメンブレンを配置することによって混合能力を向上させた。

試験片各部の寸法は、1 段目メンブレンの寸法、長さ 3mm、幅 40 μ m、厚さ 2 μ m であり、ポリイミドの厚さは 20 μ m、SiO₂は 0.1 μ m である。つまり 1 段目のメンブレンは下部電極より 20 μ m 上方に位置している。またメンブレンは流路に垂直についているのではなく、メンブレン長さを得るために 71° の角度をつけて製作した。2 段目のポリイミドも厚さ 20 μ m ある。その上に 2 段目のメンブレンが位置している。メンブレンの寸法は Fig.4 に示す通りである。2 段目メンブレンは下部電極より 40 μ m 上方に位置している。基板としてガラスを用い、マイクロメンブレンとしては 2 μ m の Al スパッタ膜を用いた。

Fig.5 に試験片作成プロセスと各プロセスにおける条件を示す。下部電極となる ITO を成膜したガラス基板上に絶縁膜として SiO₂をスパッタリング装置 (アネルバ製 L-210s-FH ,RF Power 125w, Ar gas pressure 3.8 \times 10⁻¹Pa, Sputtering time 300min.) で 0.1 μ m 成膜し、その上に 20 μ m ポリイミドをスピコート (1st 5s 500rpm, 2nd 30s 1300rpm)した。温風乾燥機を用いてポリイミドを固化 (60°C, 80min.) させたのち、高温真空炉を用いて温度を上げ熱処理した (400°C, 120min., 1.0 \times 10⁻³Pa)。次にポリイミド上に下段の電極となる 2.0 μ m の Al 薄膜をスパッタリングにより成膜した (RF Power 70W, 60min, Ar gas pressure 3.8 \times 10⁻¹Pa)。ポジ型レジストの S1813 を用い、Fig.6-1 に示すマスクによりパターニングを行い、50 : 5 : 1 のリン酸・硝酸・酢酸混合液で 30 分間 Al をエッチングした後、1 段目と同様にその上に 20 μ m ポリイミドをスピコート (1st 10s 500rpm , 2nd 30s 1300rpm)した。温風乾燥機を用いてポリイミドを固化 (60°C, 80min.) させたのち、高温真空炉を用いて温度を上げ熱処理した (400°C, 120min., 10⁻³Pa)。次にポリイミド上に上段の電極となる Al をスパッタリング (RF Power 70W, 60min, Ar gas pressure 3.8 \times 10⁻¹Pa) により 2 μ m 成膜した。再び S1813 を用い、Fig.6-2 に示すパターニングを行い、Al をエッチングした後、反応性イオンエッチング法 (RIE : Reactive Ion Etching) によりポリイミドのエッチングを行った。(RF Power : 1st 120W 15min, 2nd 50W 35min, Process pressure : 50Pa, Etching Gas O₂/CF₄ 7sccm/72sccm) Fig.7-1 にミキサーの全体写真をとブリッジ部拡大写真を示す。

また流路の上部カバーはシリコンゴムを用いてつくる。まず、ガラス基盤に

レジスト SU-8 をスピコートし(1st 5s 500rpm, 2nd 40s 1300rpm thickness 40 μ m), 5min 65 $^{\circ}$ C, 15min 95 $^{\circ}$ C Hot plate で焼く. その後 300mW/cm² 露光し, 再び 120 s 65 $^{\circ}$ C, 240 s 95 $^{\circ}$ C Hot plate で焼く. その後 SU-8 DEVELOPER で現像し, イソプロパノールで洗浄する. 出来上がった SU-8 型にシリコンゴムを流し込み, それを 80 $^{\circ}$ C で 60min 焼き流路の上部カバーを製作した. Fig.7-2 にシリコンゴムをのせたミキサーの写真を示す.

以上のプロセスで得られた流路(下側)と流路カバー(上側)を接合し, メンブレンを振動させながら(1kHz \sim 0.05Hz, \pm 100V), マイクロシリンジポンプ(kd scientific 社製 IC3210)を用いてエタノール流した(10 μ l/hour, 28.8 μ l/hour, 288 μ l/hour, 1000 μ l/hour).

マイクロミキサーの動作測定結果及び考察

メンブレンの振動の様子は Fig.8 で示す測定系で計測した. なお 1.5kHz \sim 200 kHz の振動数のときは Laser Doppler Vibration Indicator で計測を行い, それ以下の周波数の場合は, Laser Displacement Meter で計測を行った.

まず大気中でメンブレンの動作特性を測定した.

はじめに電圧を付加したときの上段メンブレンの変形について言及する.

解析より求めた, 微小振動が発達する可能性のある振動周波数の範囲を中心に 0.01Hz \sim 400Hz, \pm 100V の交流を付加した場合のメンブレンの最大変位点での振幅計測を行った. 66Hz \pm 100V の正弦波状の交流を付加したときのメンブレンの変形形状を Fig.9-1 に示す. 変形量を Fig.9-2 のグラフに示す. このときメンブレンは最大で 44 μ m 振幅を示した. 上段メンブレンは複雑な構造を有しており, 変形は中心の middle 部だけでなく side 部分も変形していた. そのためメンブレンは正弦波状に変形せず複雑な変形形状を示した. また, 周波数と最大変位点の振幅の関係を示すグラフを Fig.10 に示す. 0.01Hz から 1Hz までは, 最大変位点の振幅量は増加し 1Hz を超えると振幅は安定する. 300Hz を超えると振動は不安定になり, 350Hz を超えると振動しなくなる. しかし 600Hz を超えると再び振動子はじめ, 1.63kHz で共振点をむかえる. 共振点においてはきれいな正弦波状の振動をした.

同様に下段のメンブレンについても 0.01Hz \sim 400Hz, \pm 100V 正弦波状の交流を付加した場合のメンブレンの最大変位点での変位計測を行った. 66Hz, \pm 100V の正弦波状の交流を付加したときのメンブレンの変形形状を Fig.11-1 に示す. そのときのメンブレンの変形量を Fig.11-2 のグラフに示す. このときメンブレンは最大で 0.25 μ m の振幅を示した. 周波数と最大変位点の振幅の関係を示すグラフを Fig.12 に示す. 下段のメンブレンもどの周波数に対しても安定的に変位したが, 振幅は非常に小さく, いずれも 1 μ m 以下の振幅しか得られなかった.

以上の結果より上段のメンブレンは静電気力が下段のものよりも小さいにもかかわらず, 変形量は大きくなることが分かった.

この二つのメンブレンを組み合わせることで, 広い周波数域に対して対応が可

能であるといえる。

・液中におけるメンブレンの変形

流速 0m/s のアルコール中において、電極間に $\pm 100\text{V}$ の正弦波状の交流をかけ周波数を $0.01\text{Hz} \sim 100\text{Hz}$ に変化させ測定を行った。その測定より得られた周波数と振幅の関係を示すグラフを Fig.13 に示す。測定位置は、Fig.10 に示した middle 中心である。大気中と比べると振幅が減少していることが分かる。また、 1Hz を超えるとメンブレンの変位はほとんど検出されなかった。

次に流速をつけたエタノール中での変位測定を行った。エタノールの流速制御はマイクロシリンジポンプ(kd scientific 社製 IC3210)を用い、流速は解析で用いた $1\mu\text{m/s}$, $2\mu\text{m/s}$, $3\mu\text{m/s}$, $5\mu\text{m/s}$ の条件で流し測定を行った。電極間に $\pm 100\text{V}$ の正弦波状の交流をかけた状態で周波数を $0.01\text{Hz} \sim 100\text{Hz}$ の周波数に対して $\pm 100\text{V}$ の交流電圧を付加し測定した。しかし電極表面、 SiO_2 層の欠陥より気泡が発生し、静電気力による変位か気泡による変位か確認がとれなかった。

気泡の発生、振幅の減少は Fig.14 に示すように流体が通電してしまい上部電極の電位と下部電極上にスパッタした SiO_2 層の上の電位が等電位になってしまったため生じたと考えられる。今後は電極表面を完全に絶縁するか、アクチュエータとして圧電素子を用いて 2 液を異なった主流速度で制御した状態で流体界面に振動を付与し、測定することが必要であると考えられる。

4.4 結言

本研究では、2 流体界面に振動子を配置し、振動子を振動させることで界面に微小振動を与え、その発生した微小振動を発達させることで流体を混合するというマイクロミキサーを考案した。振動子には静電駆動型マイクロアクチュエーターの原理を応用して、上部電極兼振動子のメンブレンが駆動するマイクロミキサーを製作した。

微小振動の発達する条件を与えるケルビン・ヘルムホルツ不安定性理論解析により振動が不安定に発達する不安定領域を計算することができた。不安定領域のうち、不安定性が最大増幅率を持つ振動が現実の現象において現れると考えられる。対象としている領域において流体の流速比の変化と不安定性増幅率の関連性は、2 流体の質量差から生じる重力の影響と比べると小さいが、質量差の少ない流体を混合する場合には理論解析から得られる結果は非常に有効であることが分かった。

しかし、本研究で製作した装置では流体を流すと絶縁性の低さのために電位差を十分に与えられなかったため、流体の抵抗力の方が静電気力よりも大きくなり、流体に変位を十分に与えられないことが明らかになった。

本研究では流速を持たない流体中のみでメンブレンを振動させることができたが、今後は流速を持つ流体中においてもメンブレンを振動させることのできる試験片の幅や、メンブレン形状、極板間距離等の条件を変化させた場合や、振動子の駆動力として、磁力を利用したものや、圧電素子を利用したもので試作した場合においても測定し最適な形状、最適な駆動方法を考案する必要がある。

る.

Table 1. Conditions of fluid

密度 ρ (kg/m³) 表面張力 σ (N/m)

流体 1 998.2 0.0728

REFERENCES

- 1) David J., Passive mixing in microchannels : Fabrication and flow eperiments, Mec. Ind, 2001 2 pp.343-348
- 2) Jens Branebjerg, Fast mixing by lamination, IEEE 1996, pp.441-446.
- 3) R. Miyake, T.S.J. Lammerink, M. Elwenspoek, J.H.J. Fluitman, Micromixer with fast diffusion, MEMS'97, Florida, 1993, pp.248-253.
- 4) T. Gerlach, H. Wurmus, Working principle and performance of the dynamic micropump, Sens. Actuators. A 50 (1995) 135-140.
- 5) Zhen Yang, Shohei Matsumoto, Hiroshi Goto, Mikio Matsumoto, Ryutaro Maeda, Ultrasonic micromixer for microfluidic systems, Sens. Actuators. A 93 (2001) 266-272
- 6) Haim H. Bau, Jihua Zhong, Mingqiang Yi, A minute magneto hydro dynamic (MHD) mixer, Sens and Actuators. B 79 (2001)207-215
- 7) Takakage Arai, Hiroyuki Hashimoto, 液体噴流の気液界面の挙動 (並行気流中に噴出する液膜の不安定) 日本機械学会論文集 (B編) 51 巻 463 号 (昭 60-3) pp.856-865
- 8) Hiroyuki Hashimoto, Seiichi Sudo, 縦振動するく型容器内の 2 層液体の挙動 日本機械学会論文集 (B編) 51 巻 461 号 (昭 60-1) pp.51-59

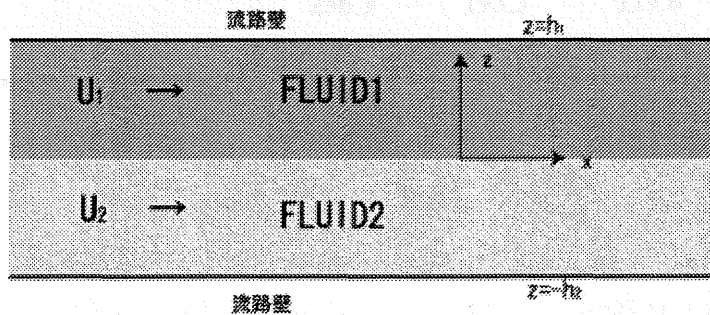


Fig.1 Flow model

Table 1 Conditions of fluid

	密度 ρ (kg/m ³)	表面張力 σ (kg/s ²)
流体 1	998.2	0.0728
流体 2	922.9	0.0593

Table 2 Velocity and frequency at peak

番号	1	2	3	5	10
U1(mm/s)	0.1	0.2	0.3	0.5	1
U2(mm/s)	0.1	0.1	0.1	0.1	0.1
波数	166	166	166	166	167
周波数 (Hz)	378.7	249.7	185.7	123.3	66.36
β^2	-0.210	-0.211	-0.211	-0.212	-0.217
波長(m)	3.78×10^{-2}	3.79×10^{-2}	3.78×10^{-2}	3.79×10^{-2}	3.76×10^{-2}
番号		0.5	0.33	0.2	0.1
U1(m/s)		0.1	0.1	0.1	0.1
U2(m/s)		0.2	0.3	0.5	1
波数 k		166	166	166	167
β^2		-0.211	-0.211	-0.212	-0.217
周波数 (Hz)		256.3	193.5	129.6	70.76
波長(m)		3.79×10^{-2}	3.79×10^{-2}	3.78×10^{-2}	3.76×10^{-2}

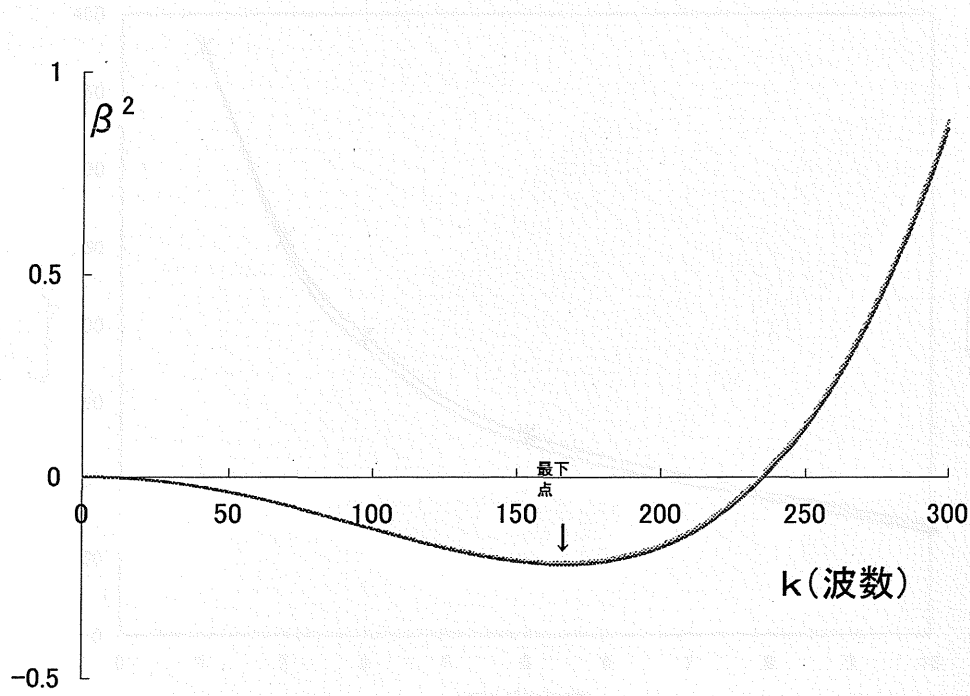


Fig.2-1 Instability at $U_1 > U_2$

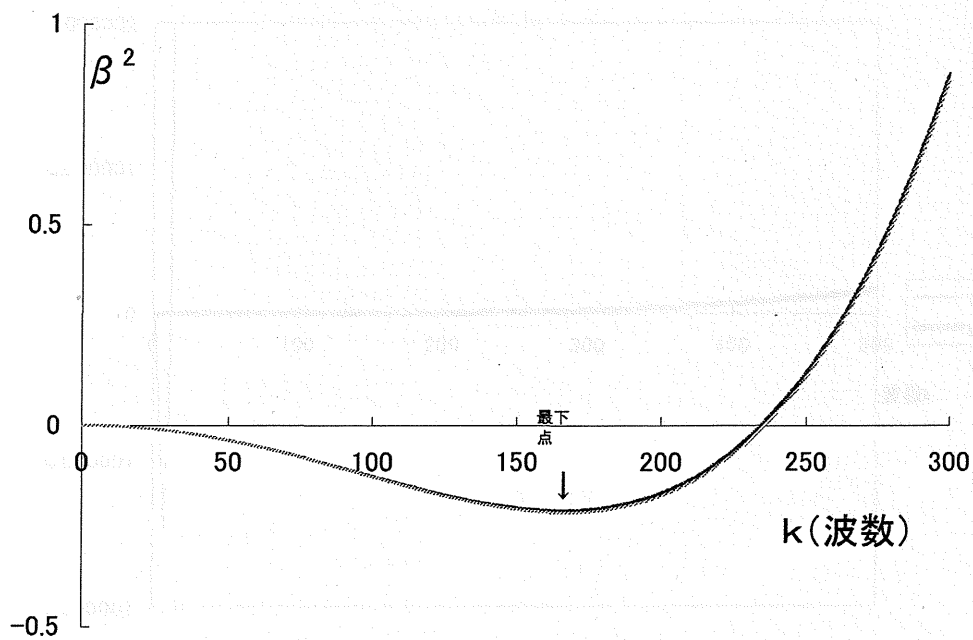


Fig.2-2 Instability at $U_1 < U_2$

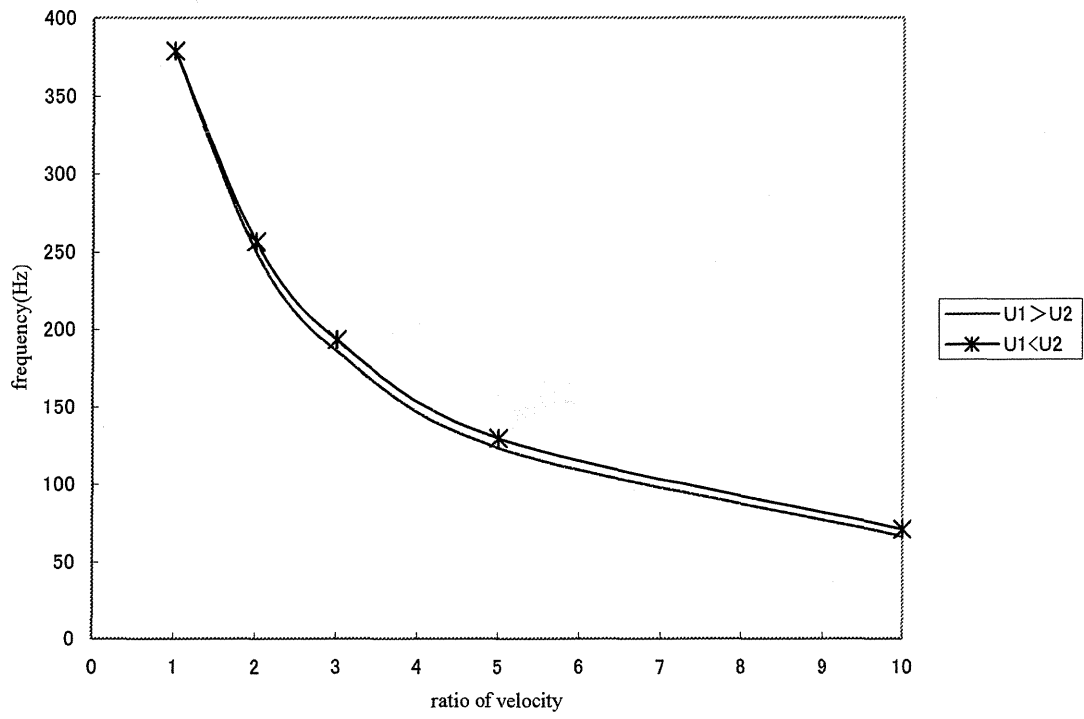


Fig.2-3 Graph velocity and frequency

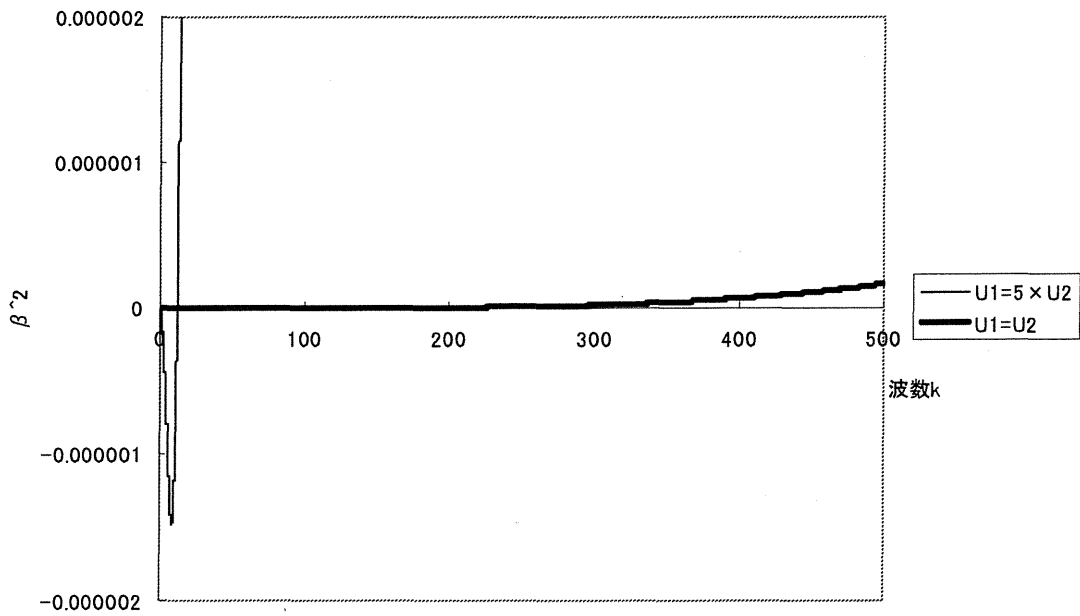


Fig. 2-4 Graph without gravity 's effect

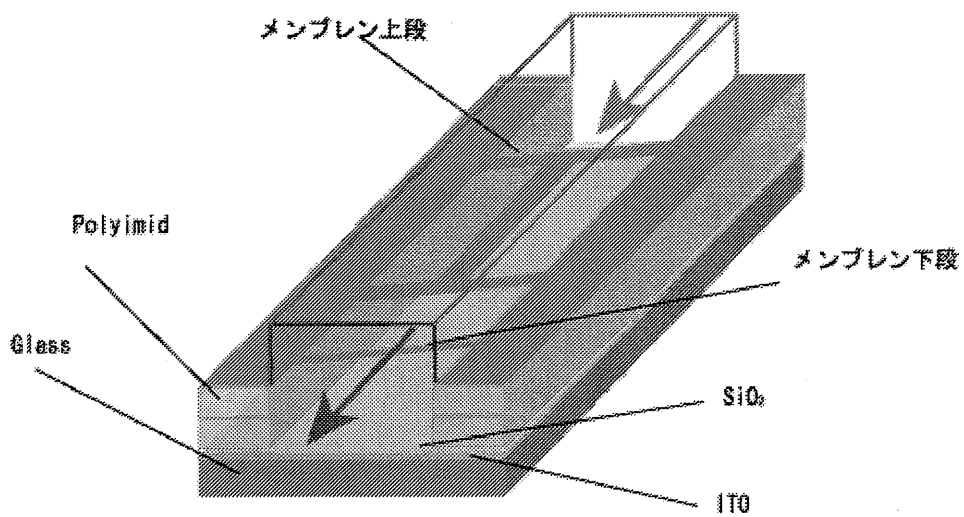


Fig.3 Micro mixing membrane

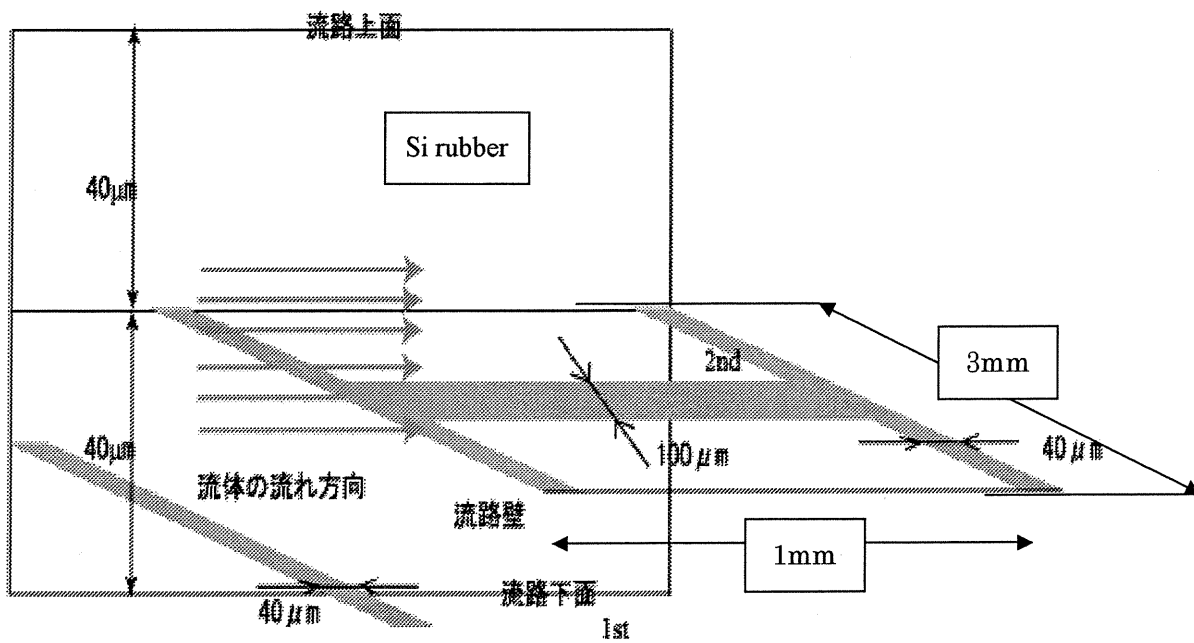


Fig.4 Upper membrane

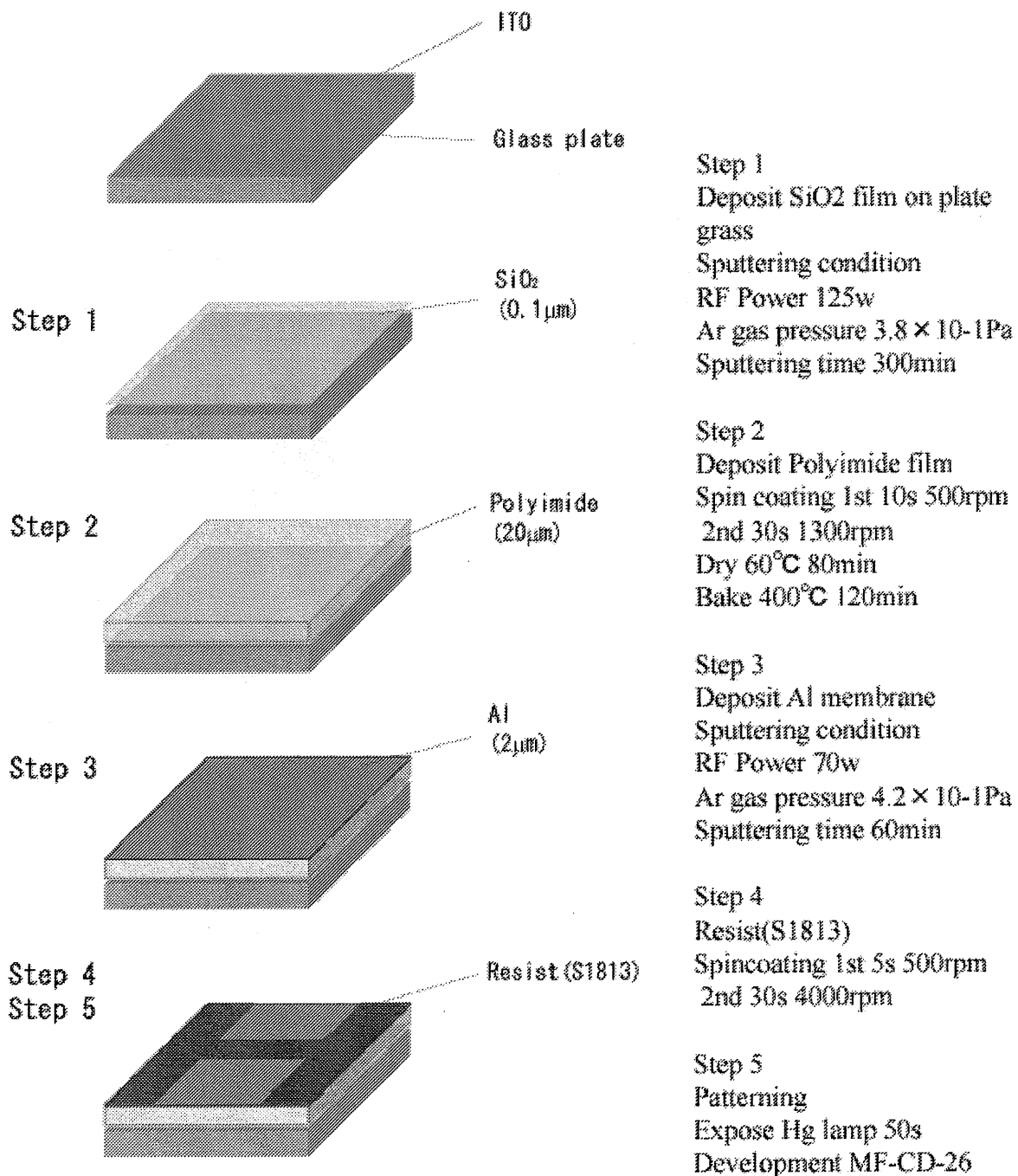
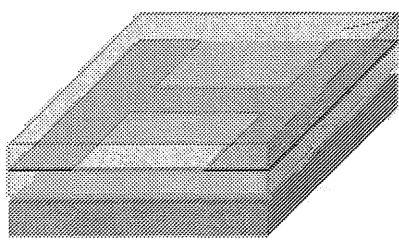


Fig5-1 Process and conditions for fabricating sample

Step 7

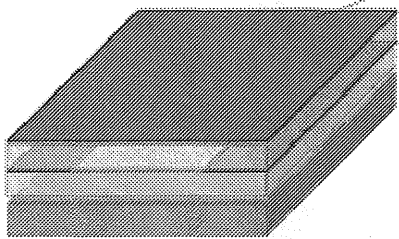


Polyimide
(20 μ m)

Step 7

Deposit Polyimide film
Spin coating 1st 10s 500rpm
2nd 30s 1300rpm
Dry 60 $^{\circ}$ C 80min
Bake 400 $^{\circ}$ C 120min

Step 8

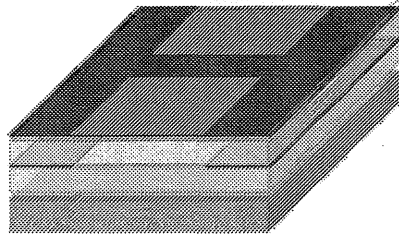


Al
(2 μ m)

Step 8

Deposit Al membrane
Sputtering condition
RF Power 70w
Ar gas pressure 4.2×10^{-1} Pa
Sputtering time 60min

Step 9
Step 10



Resist (S1813)

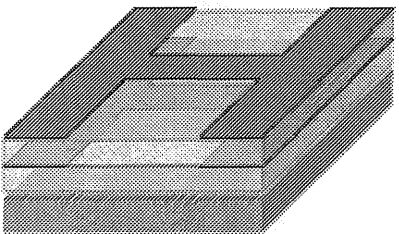
Step 9

Resist(S1813)
Spincoating 1st 5s 500rpm
2nd 30s 4000rpm

Step 10

Patterning
Expose Hg lamp 50s
Development MF-CD-26

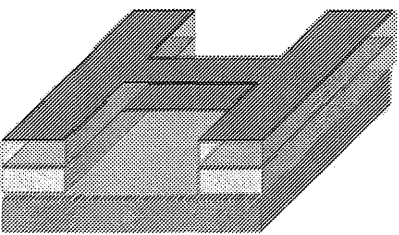
Step 11



Step 11

Etch Al by phosphoric acid,
nitric acid and acetic acid
(50:5:1)
30min

Step 12



Step 12

Etch Polyimide by RIE
Etching gas: O₂, CF₄
72/7 sccm
Process Pressure 50Pa
RF Power 120W 15min
50W 35min

Fig5-2 Process and conditions for fabricating sample

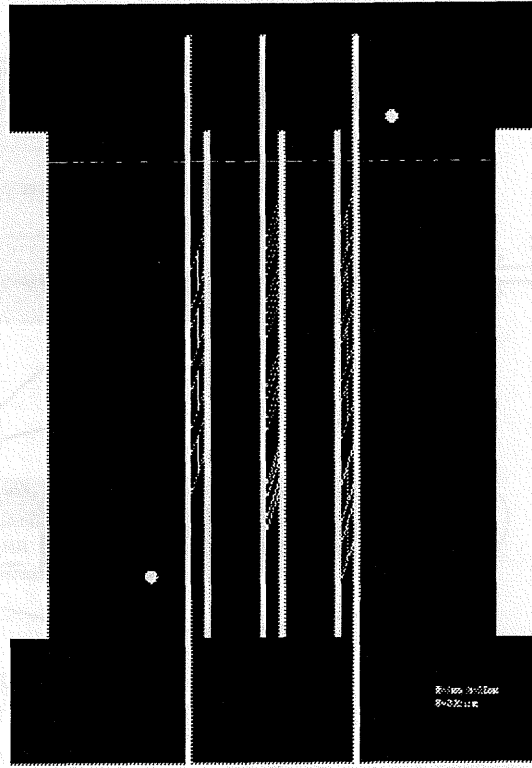


Fig6-1 1st mask

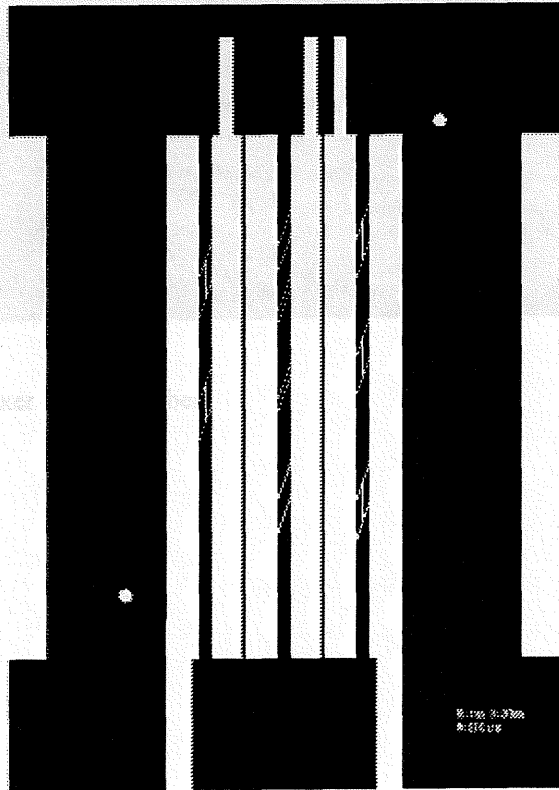


Fig6-2 2nd mask

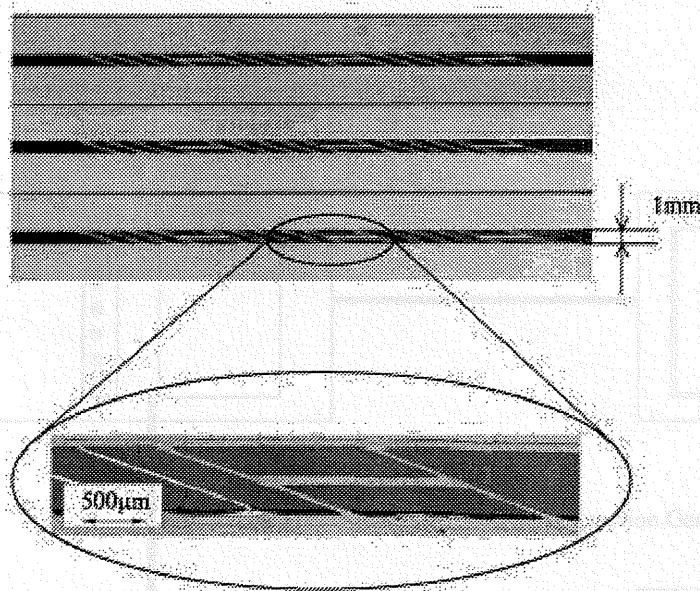


Fig. 7-1 Fabricated micro mixing membrane



Fig.7-2 Fabricated micro mixer with Si rubber.

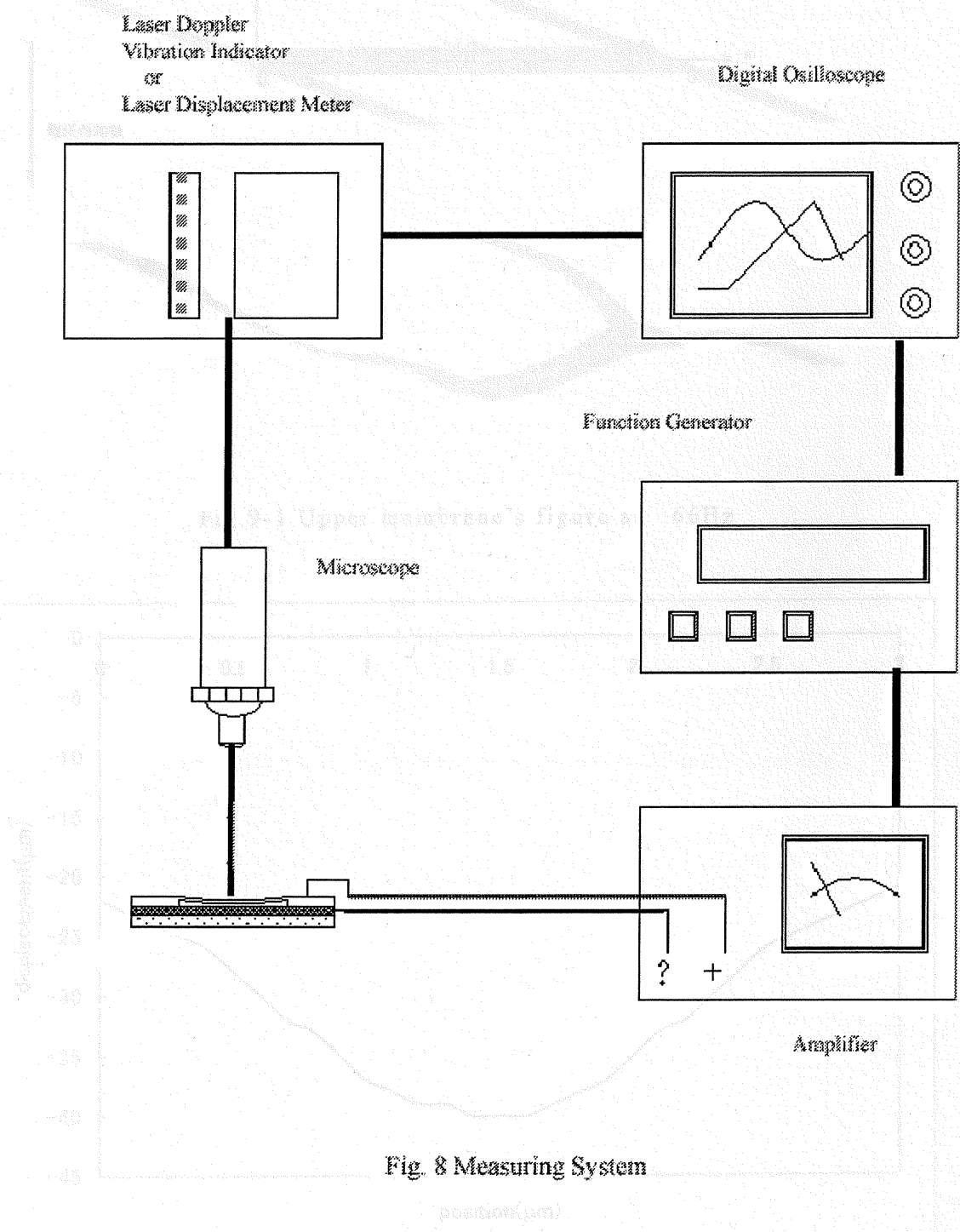


Fig. 8 Measuring System

Fig. 9-2 Upper membrane's displacement at 66Hz.

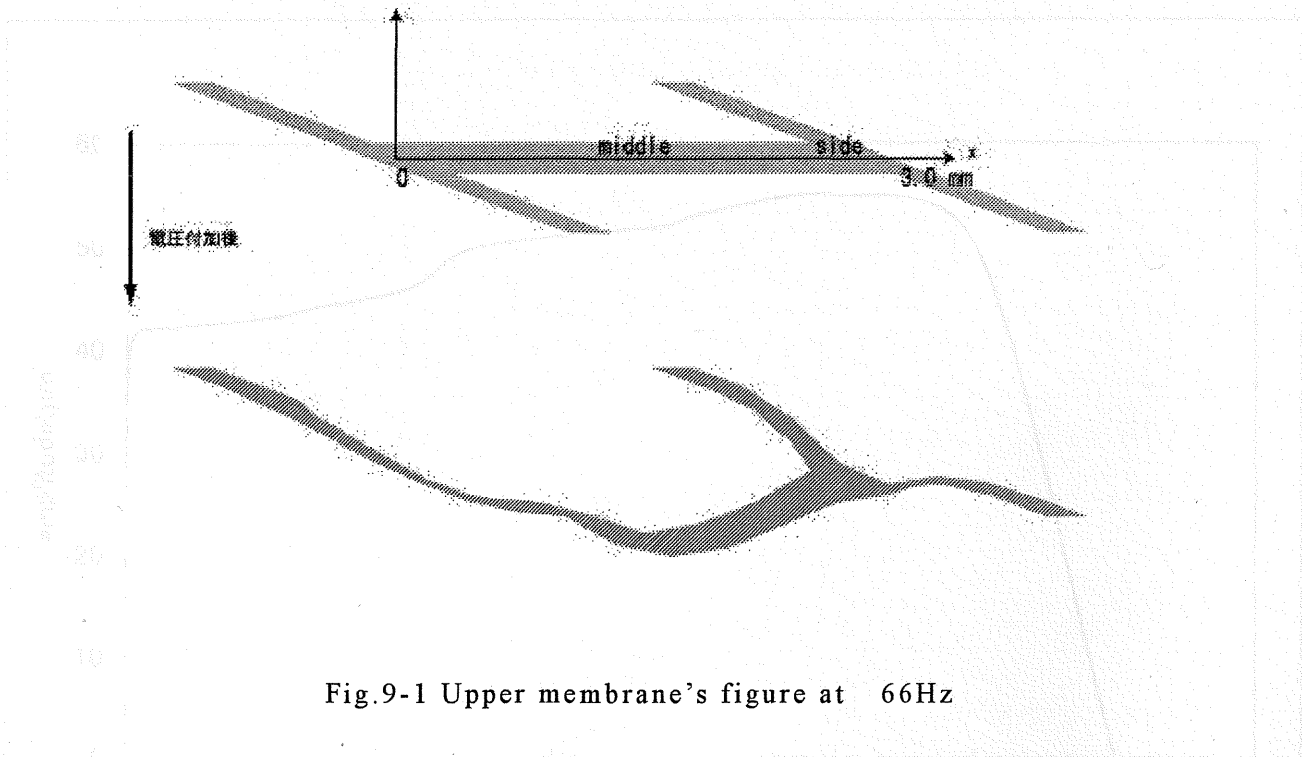


Fig.9-1 Upper membrane's figure at 66Hz

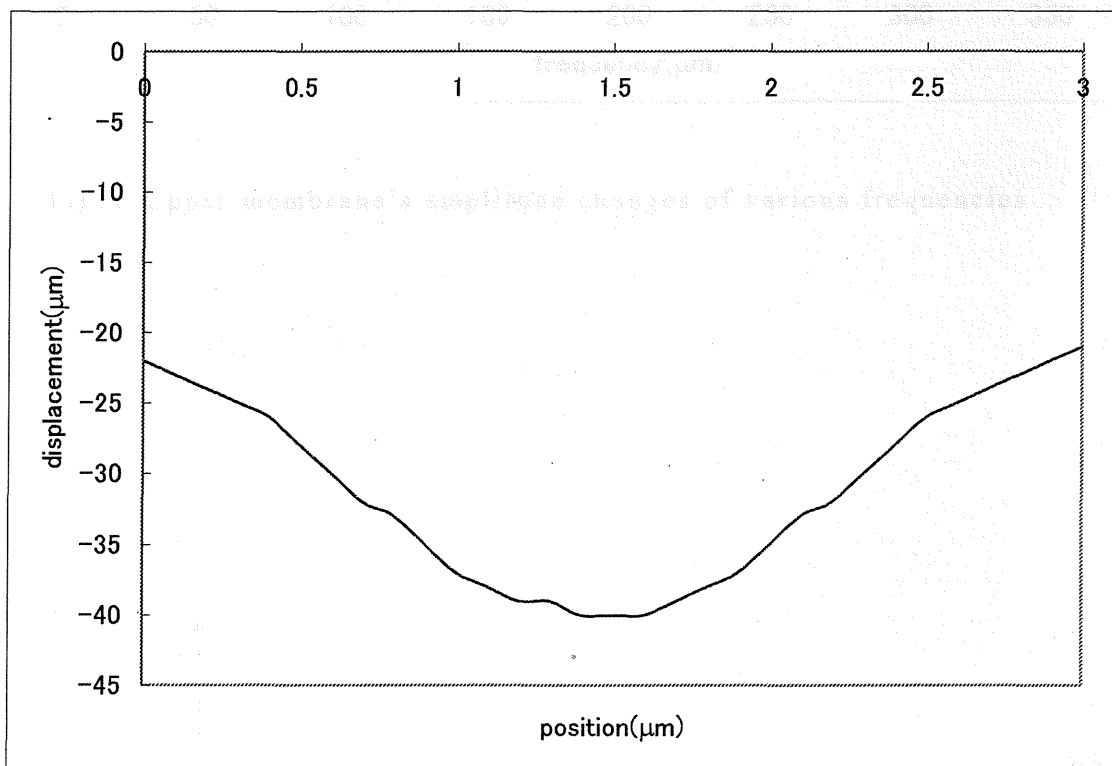


Fig.9-2 Upper membrane's displacement at 66Hz

Fig. 11-1 Lower membrane's displacement at 60Hz

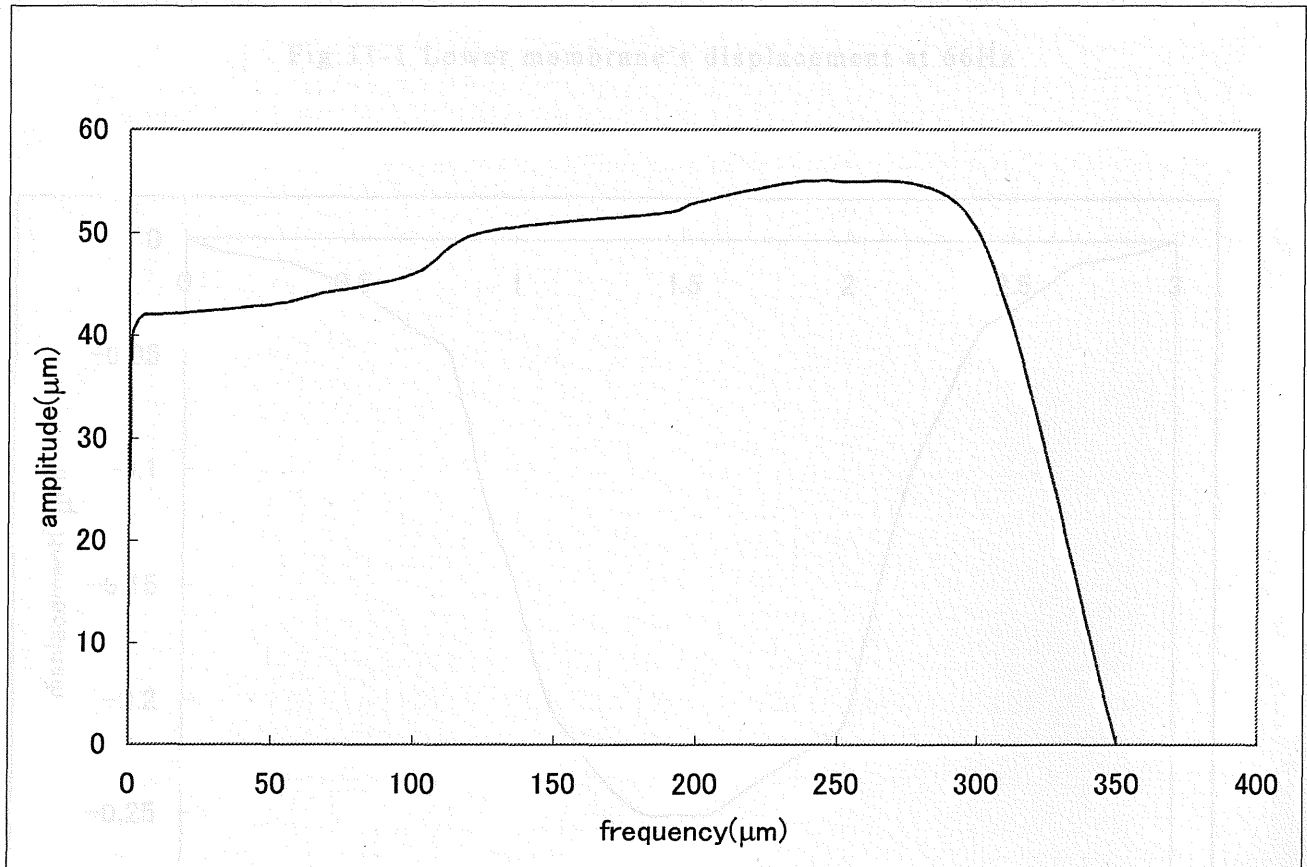


Fig10 Upper membrane's amplitude changes of various frequencies

Fig. 11-2 Lower membrane's displacement at 60Hz

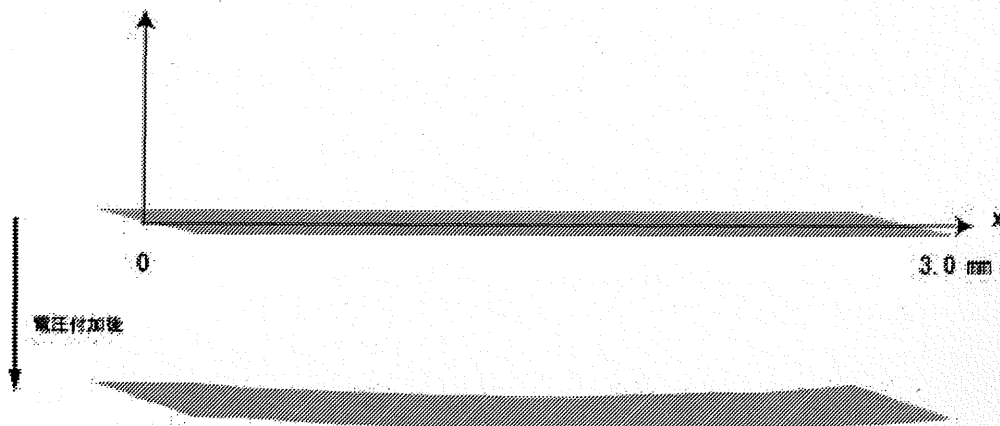


Fig.11-1 Lower membrane's displacement at 66Hz

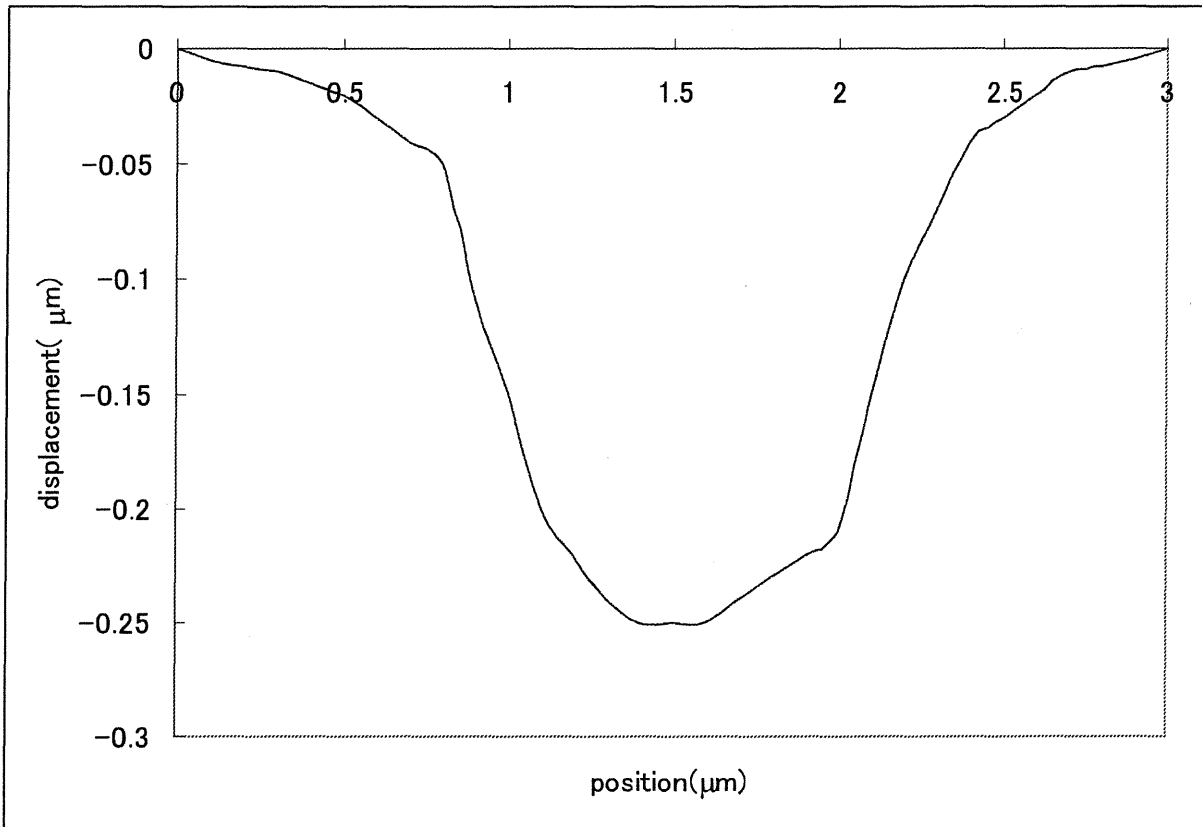


Fig.11-2 Lower membrane's displacement at 66Hz

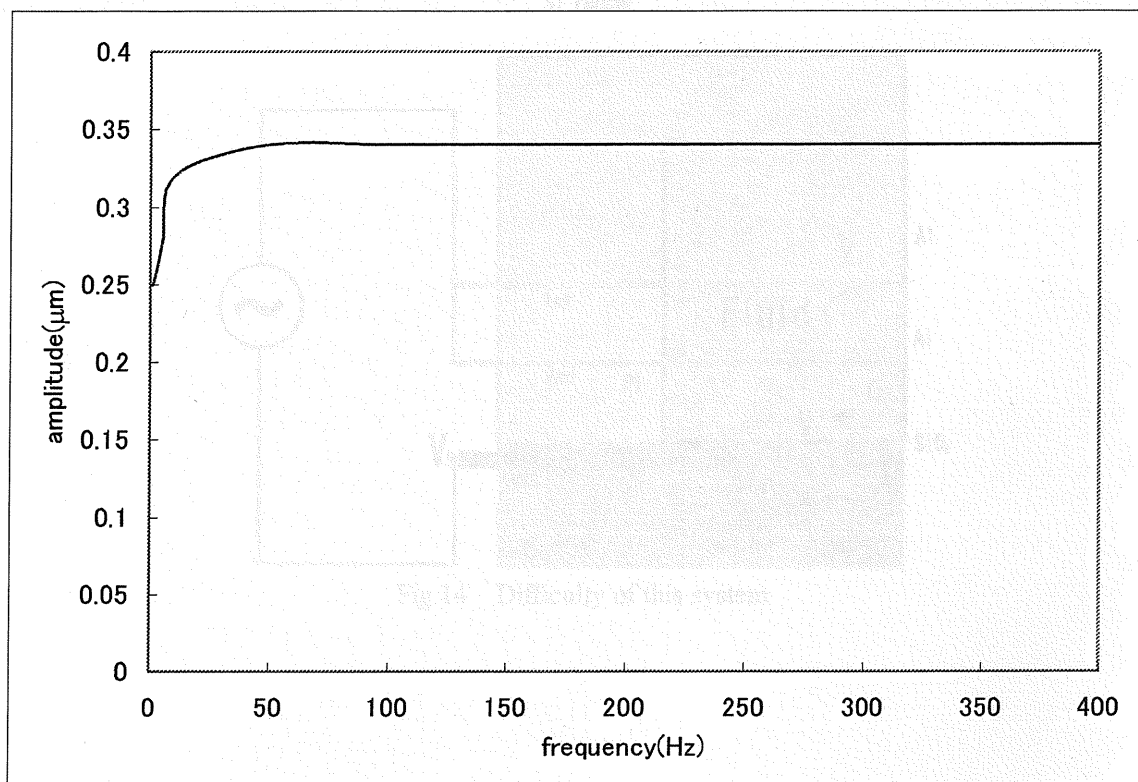


Fig.12 Lower membrane's amplitude changes of various frequencies

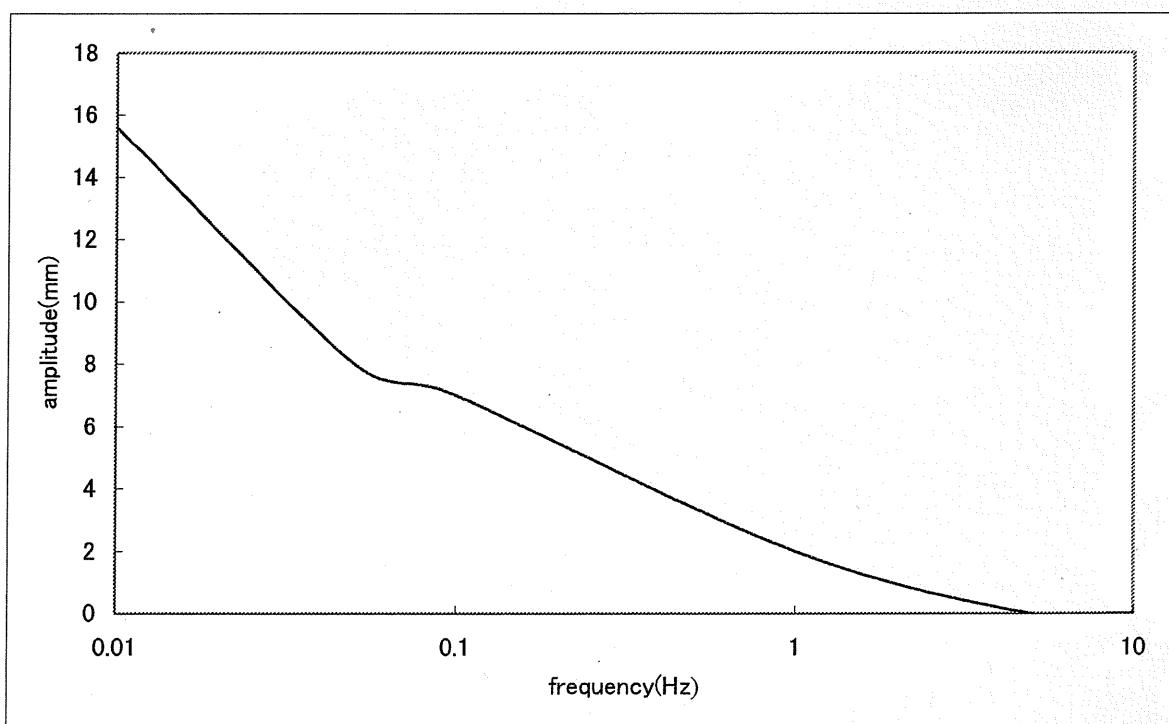


Fig.13 Upper membrane's amplitude in ethanol

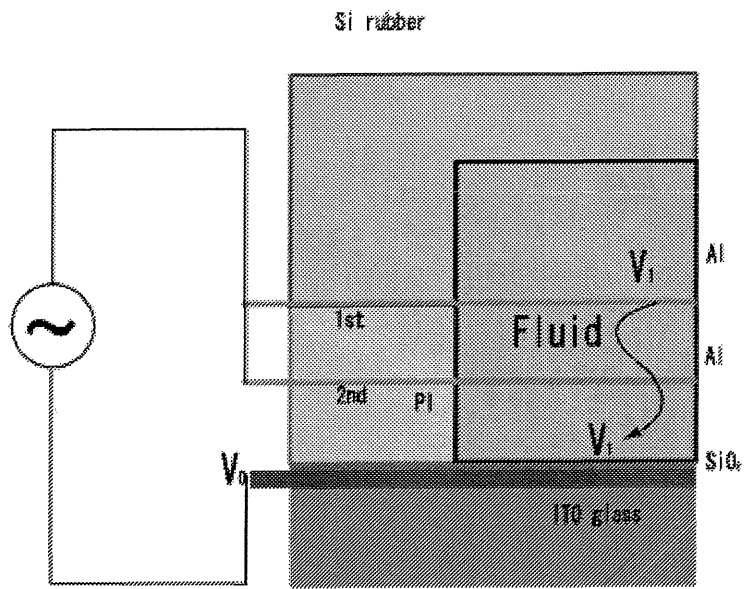


Fig.14 Difficulty of this system