

Development of Nitride Thin Film and Micro Devices for Piezoelectric Vibration Energy Harvesters

著者	NGUYEN HOANG HUNG
number	62
学位授与機関	Tohoku University
学位授与番号	工博第5441号
URL	http://hdl.handle.net/10097/00124761

氏名	グエン ホン フン NGUYEN HOANG HUNG
授与学位	博士 (工学)
学位授与年月日	平成30年3月27日
学位授与の根拠法規	学位規則第4条第1項
研究科, 専攻の名称	東北大学大学院工学研究科 (博士課程) ナノメカニクス専攻
学位論文題目	Development of Nitride Thin Film and Micro Devices for Piezoelectric Vibration Energy Harvesters (圧電型振動エネルギーハーベスタに用いる窒化物薄膜およびマイクロデバイスの開発)
指導教員	東北大学教授 桑野 博喜
論文審査委員	主査 東北大学教授 羽根 一博 東北大学教授 小野 崇人 東北大学教授 田中 秀治 東北大学准教授 大口 裕之

論文内容要旨

Energy harvesters that scavenge electricity from ambient energy resources have attracted a great deal of attention as promising on-site power source for wireless sensor nodes, which will construct “*sensors communication society*” that can be indispensable infrastructure of the Internet of Things (IoT). In response to the growing social demand for IoT, extensive research has been done so far, and various types of energy harvesters have been developed. Among them, piezoelectric-based vibration energy harvesters (VEHs) have been considered as one of the most practical devices for their excellent features: high power density, high potential of size reduction, and long lifetime.

The most important constituents determining performance of the vibration energy harvesters are piezoelectric materials, often provided in the form of thin films. Lead zirconate titanate (PZT) has been the most widely used one for VEHs due to its superior piezoelectric coefficient ($d_{31} \sim 150 - 200$ pm/V). However, its high dielectric constant ($\epsilon_r \sim 1000$) restricts figure of merit (FoM) for power generation since the FoM is inversely proportional to ϵ_r . In addition, PZT contains a large amount of toxic lead (Pb) that should be avoided in commercial devices. For these reasons, lead-free piezoelectric materials with higher FoM than PZT are strongly desired.

This study aims to 1) develop lead-free piezoelectric materials with higher FoM than PZT and 2) realize micro-VEHs showing the highest power generation capability among VEHs so far developed. Furthermore, in response to rapidly growing social demand to high-performance VEHs, high-throughput combinatorial approach is adopted.

In chapter 2, I conducted high-throughput investigation of lead-free MgHf co-doped AlN ((MgHf)_xAl_{1-x}N) thin films that is one of the most promising piezoelectric materials showing high piezoelectric coefficient. At the beginning of this research, I

focused on finding growth conditions to obtain high crystallinity AlN films using an ion beam sputtering. The conditions studied here were substrate temperature, existence of bottom electrodes, and sputtering power. Then, effect of the MgHf doping on the piezoelectric coefficient of $(\text{MgHf})_x\text{Al}_{1-x}\text{N}$ films was rapidly and systematically studied using combinatorial approach. Concentration of MgHf was continuously changed and extended up to $x = 0.44$. A monotonic increase in longitudinal piezoelectric coefficient (d_{33}) with the dopant concentration was observed and $(\text{MgHf})_{0.44}\text{Al}_{0.56}\text{N}$ exhibited the highest value 13.7 pm/V, which is 3.5-fold higher than that of the pure AlN films.

In Chapter 3, I implemented high-throughput investigation of the FoM for MgHf co-doped AlN films. For this purpose, 10 cantilever-shaped micro measurement devices ($0.2 \times 1.5 \times 0.05 \text{ mm}^3$) with $(\text{MgHf})_x\text{Al}_{1-x}\text{N}$ films (thickness = 700 nm) were fabricated along composition gradient of the $(\text{MgHf})_x\text{Al}_{1-x}\text{N}$ composition spread film. The measurements found that the transverse piezoelectric coefficient (d_{31}) and ε_r increased with increase in the dopant concentration; d_{31} from 2.3 pm/V to 6.8 pm/V and ε_r from 10.3 to 13.5. As a result, FoM increased significantly from 6.5 GPa for $x = 0$ to 31.5 GPa for $x = 0.44$.

In Chapter 4, I evaluated output performance of energy harvesters with $(\text{MgHf})_x\text{Al}_{1-x}\text{N}$ films. The energy harvesters were fabricated in the same way as the cantilever-shaped devices discussed above. The output power increased with increase in the dopant concentration (thus with FoM) and the maximum value of 3.74 μW was obtained for $x = 0.44$ at the resonance frequency of 2422 Hz and the input acceleration of 0.9 g. Corresponding normalized power density (NPD) of 18.4 $\text{mW}\cdot\text{cm}^{-3}\cdot\text{g}^{-2}$ was the highest value among thus far developed piezoelectric VEHs. This is the first time NPD of a lead-free material based VEH can exceed the highest value provided by PZT-based devices.

In Chapter 4, I challenged to further improve performance of the $(\text{MgHf})_x\text{Al}_{1-x}\text{N}$ -based VEHs by adding a Si/W proof-mass to the $(\text{MgHf})_x\text{Al}_{1-x}\text{N}/\text{Si}$ beam. For $x = 0.44$, the NPD reached to 61.9 $\text{mW}\cdot\text{cm}^{-3}\cdot\text{g}^{-2}$ and resonant frequency decreased to 908 Hz. The NPD value was 30-fold than that of the pure AlN-based VEHs and even 6-fold than that of the best PZT-based VEHs.

In summary, we have developed highly efficient piezoelectric $(\text{MgHf})_x\text{Al}_{1-x}\text{N}$ thin films that can replace PZT and improve performance of the piezoelectric VEHs. Moreover, this study established a novel way to apply high-throughput combinatorial approach to piezoelectric materials discovery and devices fabrication/evaluation. Our breakthrough achievements on $(\text{MgHf})_x\text{Al}_{1-x}\text{N}$ -based VEHs has opened the way for sensor nodes powered by micro VEHs, which will finally lead to the sensors communication society.

論文審査結果の要旨

圧電効果を利用して環境中の振動から電気を取り出す圧電型振動エネルギーハーベスタは、IoT などの高度なネットワーク社会の発展に不可欠なセンサノードと呼ばれるセンシング機能を持った小型集積化デバイスに必須の自立型電源として期待される発電機である。この発電機を実用化するにあたり、従来使用されるチタン酸ジルコン酸鉛(PZT)に変わる、有毒な鉛を含まず、なおかつ PZT を超える発電性能を持つ、高性能非鉛圧電材料の開発が強く求められている。本研究では、非鉛圧電材料中で最大級の振動発電性能を示す AlN に対して、圧電定数増大効果が知られる金属ドーブを実施し、PZT を凌駕する発電性能を有する非鉛圧電材料の開発を行っている。加えて、この非鉛圧電材料を加工して、単位体積および単位加速度当たりの出力密度が、PZT を用いた従来素子のそれを大幅に更新する世界最高の性能でかつ、集積化デバイスへ直接応用可能な小型の圧電型振動エネルギーハーベスタ開発も行っている。また、組成の異なる試料を一括合成・評価し、さらにその試料を用いた素子を一括開発・評価するという高効率研究手法を、振動エネルギーハーベスタ開発分野において初めて適用し、確立している。本論文は、これらの研究成果をまとめたものであり、全編5章からなる。

第1章は緒論であり、本研究の背景、目的および構成について述べている。

第2章では、独自に開発した薄膜成長装置を用いて AlN 薄膜合成条件を探索したのち、従来に無い振動発電性能を示す非鉛圧電材料を高効率で開発するために、一枚の基板上で AlN への金属ドーブ濃度が連続的に変化する組成傾斜薄膜の作製を行っている。ドーブする金属は、AlN への置換が可能な Mg と Hf であり、これらを高濃度に共添加することで、AlN の振動発電性能を飛躍的に向上しようとしている。得られた薄膜に対する組成評価によって、狙い通りに、一枚の基板上の異なる位置に Mg-Hf 共添加濃度が異なる薄膜が堆積されたことを確認している。また従来報告されていた濃度の約3倍にも相当する 44 at% までの大量 Mg-Hf 共添加に成功したことを示している。さらに、結晶学的評価によって、全てのドーブ濃度において圧電性の発現に必要な一軸配向性薄膜が得られていることや、高濃度ドーブ領域で圧電定数を決定する c 軸格子定数が過去最大級の伸びを示すことを明らかにしている。これらの結果は、高濃度ドーブ領域において、優れた振動発電性能を示す AlN 系非鉛圧電材料が実現する可能性が高いことを示しており、材料学上の重要な成果である。

第3章では、三種類の物理定数である圧電定数、誘電定数、弾性定数を実測して、Mg-Hf 共添加 AlN 薄膜の異なるドーブ濃度に対する振動発電性能指数を決定し、PZT の約3倍の発電性能を有する画期的な高性能非鉛圧電材料の開発に成功したことを実証している。また、これまで AlN への金属ドーブでは専ら圧電定数の増大に焦点が置かれていたのに対して、本研究では、誘電定数および弾性定数まで含めて評価することで、振動発電性能指数のドーブ濃度に対する系統的な変化を世界で初めて明らかにしている。以上は、非鉛圧電材料の実用化への道を切り拓くだけでなく、振動発電用の圧電材料開発に指針を与える有用な成果である。

第4章では、Mg-Hf 共添加 AlN 薄膜を加工して作製した小型の圧電型振動発電素子によって、これまでの圧電型振動エネルギーハーベスタ中で最大であった、PZT を用いた従来素子の最大出力密度に比べて、約6倍増大することに成功している。これによって、Mg-Hf 共添加 AlN が PZT の有力な代替材料となり得ることを示しただけでなく、10年以上に渡って更新できなかった出力密度を大幅に増大した、圧電エネルギーハーベスタ開発史上の転機となり得る重要な成果である。

第5章は結論である。

以上要するに本論文は、AlN への金属ドーブによって振動発電用の高性能圧電材料を開発し、さらにはその新材料を利用して世界で最高の出力密度の小型圧電型振動エネルギーハーベスタを実現したもので、ナノメカニクスおよび情報ナノシステム工学の発展に貢献するところが少なくない。

よって、本論文は博士(工学)の学位論文として合格と認める。