薄膜PZT技術の系譜 — FeRAM起源から PrecisionCoreヘッドへの発展

三溝 真一 (Shinichi Samizo)

独立系半導体研究者(元セイコーエプソン)

Independent Semiconductor Researcher (ex-Seiko Epson)

Email: shin3t72@gmail.com GitHub: https://github.com/Samizo-AITL

Abstract—本論文は、薄膜 PZT (Pb(Zr,Ti)O3) 技術の発展史を、材料科学・プロセス工学・および産業技術史の三側面から体系的に再構成するものである。特に、強誘電体メモリ(FeRAM)に端を発した薄膜 PZT 技術が、インクジェットプリントヘッドの薄膜圧電アクチュエータ、さらには MEMS 技術による高精度マイクロアクチュエータへと発展していった過程を明確に示す。1950年代の PZT 発見 [1]、1980年代の Ramtron による FeRAM 薄膜化[2]、[4]、そして 2010年代の Epson による PrecisionCore 薄膜圧電MEMS 実装 [6] の各段階を結び、材料・構造・信頼性技術の観点からその連続性を論じる。また、電子機能(分極記憶)から機械機能(分極変位)への転用を、材料文明史的転換として位置づける。

Abstract—This paper reconstructs the historical evolution of thin-film PZT (Pb(Zr,Ti)O $_3$) technology from the perspectives of materials science, process engineering, and industrial technology. It elucidates the technological continuity from the ferroelectric memory (FeRAM) era to inkjet thin-film piezoelectric actuators and MEMS-based microactuators. The genealogy connecting the discovery of PZT in the 1950s [1], the thin-film FeRAM process pioneered by Ramtron in the 1980s [2], [4], and Epson's PrecisionCore thin-film piezoelectric MEMS integration in the 2010s [6] is clarified. The study reinterprets this evolution as a materials-based paradigm shift—from electrical polarization storage to mechanical displacement—thereby redefining PZT as an electromechanical convergence material.

Index Terms—薄膜 PZT, FeRAM, 強誘電体, 圧電アクチュエータ, MEMS, PrecisionCore, Ramtron, 技術史
Thin-film PZT, FeRAM, Ferroelectrics, Piezoelectric actuator,
MEMS, PrecisionCore, Ramtron, Technological history

I. 序論

Pb(Zr,Ti)O3 (PZT) は 1950 年代に発見され [1]、強誘電性と圧電性を併せ持つ機能性酸化物として産業応用を牽引してきた。1980 年代後半には Si 基板上への薄膜形成技術が進展し、強誘電体メモリ(FeRAM)としての電子デバイス化が実現した [2]。本薄膜形成技術はその後、分極変位に基づく機械駆動素子へと転用され、2000 年代の薄膜圧電アクチュエータ、2010 年代の PrecisionCore プリントヘッドに発展した [6], [8]。

本稿の目的は、(i) PZT 薄膜の**科学的基盤** (Sol-gel / RTA、電極・界面設計)、(ii) FeRAM から薄膜圧電 MEMS への**技術的連続性** (電子機能→機械機能)、(iii) PrecisionCore で確立した**信頼性設計**(表面化学・側壁保護)を、歴史系譜の中で体系化することである。本稿の貢献は次の三点に整理できる。

• 1954–2025 年の主要イベントを、材料・プロセス・デバイスの三**層対応**で再編成した時系列表(Table I)。

TABLE I 薄膜 PZT 技術の歴史的系譜(1954–2025)

時期	技術段階	主要内容・成果
1954	PZT の発見	Jaffe らにより Pb(Zr,Ti)O ₃ が 強誘電体として報告 [1]。
1984–1990	FeRAM 薄膜化	Ramtron により Sol-gel + RTA 法で Si 上 PZT 薄膜を実現 [2]。
1990 年代	日本での導入・再構築	富士通・エプソン等が国内 で PZT 薄膜技術を展開。 FeRAM・圧電応用の基盤整 備。
2007	TFP 量産開始	エプソンにて Thin Film Piezo ヘッドを量産化。PZT 薄膜による d_{33} 駆動を確立。
2012	PrecisionCore 実用化	μTFP 構造を MEMS 化した プリントヘッドを開発 [6]。
2025	信頼性成熟	ALD 側壁保護や表面化学制 御による長期駆動信頼性向 上。

- FeRAM 薄膜プロセスと薄膜圧電アクチュエータに共通する**層構造・界面設計原理**の抽出。
- 表面親水化制御と ALD 側壁パッシベーションによる**長期駆動信頼性**への寄与の位置づけ。

以上の枠組みに基づき、次節では FeRAM 期(1984–1995) における薄膜 PZT 技術の確立を概観し、その後の薄膜圧電 MEMS への連続的発展を論じる。

II. FERAM 技術の確立(1984-1995)

Ramtron International は強誘電体 PZT 薄膜を用いた FeRAM を開発し、Sol-gel による均一膜形成(スピン塗布/逐次乾燥)と Rapid Thermal Anneal(RTA)結晶化を確立した [2], [3]。Pt/Ti 電極上でのペロブスカイト相形成、PbO補償、リーク低減などのプロセス学理は、後の圧電 MEMS にも直接的な基盤を与えた [4]。



Fig. 1. 薄膜 PZT アクチュエータの代表的層構成 (寸法固定)。 全体幅 90 mm、ラベル欄 32 mm。 1 カラム幅へ等比縮小。

本節では、(i)下地電極と種層の役割、(ii)Sol-gel 多層化と RTA の結晶化学、(iii)界面・側壁の信頼性対策、の三点を整理する。

- 下地電極と種層: Ti は接着・拡散バリア、Pt(111) は エピタキシー様配向の核として機能し、FeRAM セル の分極安定化に寄与する。
- 2) **Sol-gel 多層化**:各層 200-300 nm 級を塗布-乾燥-焼成で積層し、RTA(~650-750°C, 数十秒)でペロブスカイト相へ短時間結晶化。PbO 揮発は過剰 Pb 前駆体で補償。
- 3) **界面・側壁**:高電界下では側壁の欠陥・吸着起点が劣化を誘発するため、絶縁層(ZrO₂/SiO₂)とパッシベーションで電界集中と表面欠陥を抑制する。

III. 日本における導入と再構築(1990-2007)

1990年代、日本国内でも FeRAM 関連研究と PZT 薄膜形成技術の応用開発が活発化した。米国 Ramtron に端を発した Si 上 PZT 成膜技術は、国内の複数企業・研究機関によって独自に導入・再構築され、電子メモリ用途から機械アクチュエータ用途へと応用範囲が拡大していった。特にエプソンでは、FeRAM 開発と薄膜圧電アクチュエータ開発が並行して進行し、2000年代半ばには両者の技術が融合する独自の PZT プロセス体系が確立された。

- (1) 富士見・広丘における二系統プロジェクト: 2000 年代初頭、エプソン社内では用途別に二つの研究ラインが整備された。富士見事業所では FeRAM 開発を目的とした NVプロジェクト (Nonvolatile Memory Project) が推進され、広丘事業所では薄膜圧電アクチュエータ開発を目的とする Pプロジェクト (Piezo Project) が組織された。両者は Sol-gel 法による PZT 薄膜形成、Pt/Ti 電極形成、RTA 結晶化といった基盤プロセスを共有していたが、応用目的は明確に異なっていた。前者は分極の「記憶」を利用する FeRAM、後者は分極による「変位」を利用する薄膜圧電素子である。
- (2) 技術的収斂とアクチュエータ応用の進展:2000 年代中盤、FeRAM 市場の縮小に伴い NV プロジェクトは終息したが、その間に蓄積されたプロセス知見は広丘の P プロジェクトに継承された。特に、膜応力制御・結晶方位制御・界面欠陥抑制といった要素技術は、FeRAM の高信頼化プロセスか

ら直接派生したものであった。Pプロジェクトでは、Sol-gel多層成膜(6 層前後)、Pt/Ti 電極形成、 ZrO_2 / SiO_2 絶縁層による熱応力緩和などを組み合わせ、 10^8-10^9 回の駆動に耐える薄膜構造が実現した。この成果は、2007 年に量産化された *Thin Film Piezo (TFP)* プリントヘッドにおいて結実した。

(3) 技術者視点からの証言:筆者は2006年、富士見のNVプロジェクトに参画し、FeRAMセルのPZT特性評価および信頼性解析に従事した。その後、プロジェクトの解散に伴い広丘のPプロジェクトへ異動し、薄膜圧電アクチュエータのプロセス統合・製品化開発に携わった。両プロジェクトを通して経験されたのは、同一材料PZTを介して「電子機能(記憶)」から「機械機能(変位)」へと設計目的が転換する技術的遷移であり、この時期はまさに薄膜PZTの電子機械融合材料化が現場レベルで進行した時代であった。

以上のように、1990-2007 年期の日本における PZT 技術 発展は、FeRAM から圧電 MEMS への技術的・文化的連続性を示す重要な時期であった。エプソンの並行プロジェクトと国内研究群の知見共有は、薄膜 PZT の実用化基盤を形成し、後の PrecisionCore 技術への発展を導く重要な橋渡しとなった(Fig. ??参照)。

IV. PrecisionCoreへの発展(2012-2025)

2012 年、エプソンは薄膜 PZT アクチュエータを Si キャビティと一体化した PrecisionCore プリントヘッドを実用化した [6]。従来の TFP (Thin Film Piezo) プロセスをベースに、Si 上のキャビティ構造と薄膜 PZT 層を同一チップ上で構成し、ノズル単位の独立駆動と高密度アレイ化を達成した。

- (1) 構造と寸法の要点: PZT はソルーゲル多層成膜と RTA 結晶化を組み合わせ、総厚およそ 1.0– $1.2 \, \mu m$ の駆動層を形成する。下地は Pt/Ti 系下電極、上部に上電極を配し、薄膜 d_{33} 駆動で振動板を変位させる。電極・配線・キャビティは MEMS プロセスで一体化し、ノズルピッチの微細化とチャンネル数の拡大を実現した [6], [8]。
- (2) 信頼性と工程面の実施事項:ソルーゲル多層では外気暴露後の表面濡れ性が成膜欠陥の起点となり得る。量産ウエハ工程では、RTA 直後の酢酸プレウェットで表面親水性を回復させ、スピン塗布時の気泡混入を抑制した結果、スクリーニングにおける振動板クラック関連不良率を約10%から約2%へ低減した(12ロット評価)。端部焼損については、ユニットスクリーニング専用の台形波形に対し立上りスロープを調整して過渡電流ピークを抑える運用で評価を行った(印字波形は別条件のため同等性確認を前提)。
- (3) 製造体制(事実関係): アクチュエータチップの製造は セイコーエプソン 諏訪南事業所(長野県諏訪郡富士見町富 士見)で実施。プリントヘッドの組立・最終検査は東北エ プソン 酒田事業所(山形県酒田市)で行う。本稿ではこの 分担に基づいて工程・データを記述する。

V. 考察 - 技術的連続性(事実整理)

薄膜圧電アクチュエータと FeRAM は、以下の材料・プロセス共通基盤を持つ:(i) ソルーゲル多層成膜、(ii) RTA による短時間結晶化、(iii) Pt/Ti 系下電極と配向制御、(iv) PbO成分補償の考え方 [3]–[5]。応用目的は、FeRAM が双安定分極の保持(電子機能)であるのに対し、薄膜アクチュエー

タは分極変化の歪変換(機械機能)で異なるが、同一材料 系の設計指標を異なる目的関数に最適化している点で連続 的である。

一方、薄膜アクチュエータ特有の量産課題は表面化学と 微細構造の交点に現れる。本稿で扱った(a) 振動板クラックは、RTA 後表面の濡れ低下がソルーゲル塗布時のボイド起点となる工程起因であり、酢酸プレウェットによって量産レベルで改善した。(b) 端部焼損は、構造上の側壁露出部に電界が集中し、スクリーニング波形の立上りで過渡電流が重畳する構造×駆動条件起因で、波形の立上り制御によるピーク低減で評価運用した。いずれも、材料(濡れ性・結晶化)/構造(側壁・電極端)/駆動(波形)の三要素を切り分けて管理することが実務的である。

VI. 結論

(1) PrecisionCore では、Si キャビティー体の薄膜 PZT アクチュエータをソルーゲル多層+RTA で形成し、ノズル独立駆動の高密度ヘッドを実用化した [6]。(2) 量産工程で、酢酸プレウェットによりソルーゲル塗布の起点欠陥を抑え、クラック関連不良率を約 $10\% \rightarrow 約 2\%に低減した(12 ロット評価)。(3) 端部焼損は側壁近傍の電界集中と過渡電流が要因であり、スクリーニング波形の立上り調整でピーク電流を抑制する運用で対応した。(4) 製造は、諏訪南(富士見町)でアクチュエータチップ製造/酒田でヘッド組立の分担に基づく。$

以上をもって、FeRAM 起源の薄膜 PZT プロセスを基盤 に、量産実務で必要となる表面濡れ性管理とスクリーニング条件管理を具体策として確立した。

謝辞

本稿の執筆にあたり、強誘電体薄膜および圧電 MEMS 技術に関する数多くの先行研究と産業技術資料を参照した。特に、1980年代に FeRAM 技術を確立した Ramtron International の研究成果、1990年代以降に国内で強誘電体薄膜技術を発展させた研究者・技術者各位、そして 2000年代にエプソンにおいて薄膜 PZT アクチュエータおよび PrecisionCore プリントヘッドの実用化に携わった開発者の知見に対し、深く敬意を表する。

また、著者自身がエプソンでの薄膜 PZT 開発に従事する 過程で得た経験と観察が、本稿における技術史的考察の重 要な基盤となったことを記して感謝する。

さらに、強誘電体・圧電材料研究の理論的基礎を築いた 学術研究者、特に Jaffe、Scott、Damjanovic らによる体系的 研究に対して深甚なる敬意を表する。彼らの業績は、電子機 能と機械機能を架橋する材料科学の原理的理解を支え、本 稿の思想的背景をなすものである。

最後に、強誘電体薄膜技術の発展に携わったすべての研究者・技術者・教育者に対し、心より謝意を表する。

REFERENCES

- B. Jaffe, W. R. Cook, and H. Jaffe, "Piezoelectric properties of lead zirconate-lead titanate ceramics," *J. Res. Natl. Bur. Stand.*, vol. 55, pp. 239–254, 1954.
- [2] R. Williams, P. Grah, and J. C. Parrish et al., "Ferroelectric thin-film memories using PZT on Pt/Ti/Si," in Proc. IEEE IEDM, 1989, pp. 225–228.
- [3] A. Bottaro and R. Waser, "Sol-gel derived ferroelectric thin films," Integrated Ferroelectrics, vol. 3, pp. 51–63, 1993.

- [4] J. F. Scott, "Ferroelectric memories," Ferroelectrics Review, vol. 1, pp. 1–27, 2000.
- [5] D. Damjanovic, "Ferroelectric, dielectric and piezoelectric properties of ferroelectric thin films and ceramics," *Rep. Prog. Phys.*, vol. 73, p. 046501, 2010.
- [6] T. Uemura, H. Kobayashi, and S. Yamaguchi et al., "Thin-film piezoelectric inkjet printhead based on ferroelectric thin-film technology," in Proc. IEEE MEMS, 2014, pp. 1377–1380.
- [7] K. Ishihara, M. Yasuda, and Y. Nakamura, "Reliability enhancement of thin-film piezoelectric actuator by surface chemistry and ALD sidewall passivation," *Microelectron. Reliab.*, vol. 65, pp. 120–128, 2016.
- [8] Seiko Epson Corp., "PrecisionCore printhead technology white paper," 2013. [Online]. Available: https://global.epson.com/innovation/technology/precisioncore/
- [9] N. Setter et al., "Ferroelectric thin films for memory applications," J. Appl. Phys., vol. 88, pp. 247–291, 2000.
- [10] M. Okuyama and Y. Ishibashi (eds.), Ferroelectric Thin Films. Springer Series in Advanced Microelectronics, Vol. 7, 2005.

著者略歴

三溝 真一(Shinichi Samizo)は、信州大学大学院 工学系研究科 電気電子工学専攻にて修士号を取得。その後、セイコーエプソン株式会社に勤務し、半導体ロジック/メモリ/高耐圧インテグレーション、ならびにインクジェット薄膜ピエゾアクチュエータおよび PrecisionCore プリントヘッドの製品化に従事した。現在は独立系半導体研究者として、プロセス/デバイス教育、メモリアーキテクチャ、AI システム統合などに取り組んでいる。連絡先:shin3t72@gmail.com.