

文章编号 1004-924X(2014)02-0346-05

基于 ZnO 压电薄膜的柔性声表面波器件

周 剑¹, 何兴理¹, 金 浩^{1*}, 王德苗¹, 骆季奎^{1,2}

(1. 浙江大学 信息与电子工程学系, 浙江 杭州 310027;

2. 英国博尔顿大学 可再生能源和环境技术研究所, 博尔顿 BL35AB)

摘要:提出并制备了基于聚酰亚胺柔性衬底的声表面波(SAW)器件。在柔性聚酰亚胺衬底上低温反应磁控溅射沉积了 ZnO 压电薄膜;采用 X 射线衍射仪,扫描电子显微镜,原子力显微镜等设备对 ZnO 薄膜进行了检测,结果表明:ZnO 薄膜晶粒呈柱状生长并且(002)择优取向,膜粗糙度小于 9 nm,适合制作压电器件。在柔性衬底上制备了基于 ZnO 压电薄膜的 SAW 器件,该器件表现出良好的谐振性能。采用矢量网络分析仪检测器件的传输曲线,实验结果与仿真结果具有很好的 consistency。随着波长减小,谐振频率和相速度增加,当 ZnO 厚度为 4 μm ,波长为 8 μm 时,器件的谐振频率为 268 MHz,相速度为 2 144m/s,机电耦合系数为 1.1 %;当 ZnO 厚度增加时,此叠层结构的声表面器件的叠层声速也增加。

关键词:柔性衬底;ZnO 薄膜;压电薄膜;声表面波器件

中图分类号:TN65;TN384 **文献标识码:**A **doi:**10.3788/OPE.20142202.0346

Flexible ZnO thin film SAW device on polyimide substrate

ZHOU Jian¹, HE Xing-li¹, JIN Hao^{1,*}, WANG De-miao¹, LUO Ji-kui^{1,2}

(1. *Department of Information Science & Electronic Engineering, Zhejiang University, Hangzhou 310027, China;*

2. *Institute of Renewable Energy & Environment Technology, Bolton University, Bolton BL3 5AB U. K)*

** Corresponding author, E-mail: hjin@zju.edu.cn*

Abstract: Surface Acoustic Wave (SAW) devices on flexible polyimide substrates were developed. The ZnO piezoelectric layers were deposited on a flexible polyimide substrate by low temperature reactive magnetron sputtering, then the layers were characterized by the X-ray Diffraction (XRD), Scanning Electron Microscope (SEM), and the Atomic Force Microscope. The results show that ZnO layers with columnar structures have (002) crystal orientation and lower layer roughness (less than 9 nm), and they are suitable for fabrication of piezoelectric devices. The SAW device based on the ZnO piezoelectric layers were fabricated on a flexible polyimide substrate, and it could offer excellent resonance characteristics. A vector network analyzer was used to detect the transmission curve, and results show that the resonance frequency and phase velocity increase with decreasing wavelength, and the experimental results are in good agreement with the simulated results. When the thickness and wavelength of the ZnO layer are 4 μm and 8 μm , respectively, the device has its resonant frequency of 268 MHz, acoustic phase velocity of 2 144 m/s and the electromechanical coupling coefficient of 1.1 %. Moreover, the acoustic velocity in the ZnO layer also increases with the increase of the ZnO

收稿日期:2013-09-20;修订日期:2013-11-03.

基金项目:浙江省教育厅资助项目(No. Y200805433)

thickness.

Key words: flexible substrate; ZnO thin film; piezoelectric film; Surface Acoustic Wave(SAW) device

1 引 言

柔性电子器件以其独特的柔软性、延展性、重量轻以及和弯曲表面完美贴合等优势,在信息、能源、医疗、国防等领域具有广泛的应用前景^[1-5]。其应用范围涵盖了柔性电子显示器、有机发光二极管、柔性印刷射频识别等^[6-7]。柔性微机电系统(MEMEs)的研究也有了初步的成果,包括压电促动器,压电气压传感器等^[8-9]。

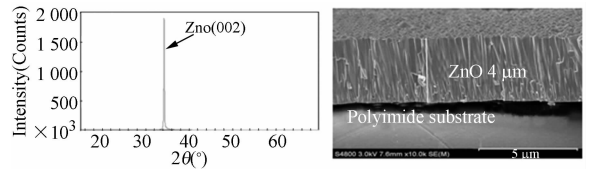
近年来,作为 MEMEs 器件之一的声表面波(Surface Aconstic Wave, SAW) 器件被用来制造微型泵、混合器、液珠定位器、微型加热器、粒子分离器等微系统,在生命科学、生物分析和药物开发等领域具有广泛的应用前景^[10-12]。传统的 SAW 器件一般是在压电晶体(如铌酸锂)上制备的,或者是在硬质衬底如硅片和玻璃上沉积一层压电 ZnO 或者 AlN 薄膜,然后制备成 SAW 器件。然而,至目前为止,还没有出现在柔性衬底上制备 SAW 器件的报道。为了制备基于压电声波器件的柔性传感器和柔性片上实验室等柔性电子系统,在柔性衬底上制备 SAW 器件显得尤为重要。本文提出和制备了基于 ZnO 压电薄膜型的柔性 SAW 器件,器件表现出良好的谐振特性,在柔性传感、柔性微流体、柔性片上实验室展现出良好的应用前景。

2 实验、检测和表征

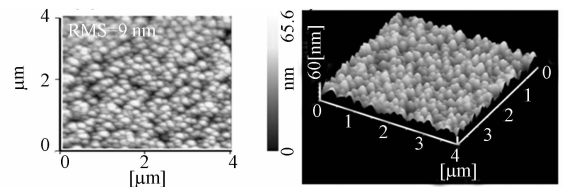
2.1 ZnO 压电薄膜的制备和表征

由于聚酰亚胺(PI)具有良好的电学、机械特性以及耐高温($-260\sim 400\text{ }^{\circ}\text{C}$)特性,因此选用杜邦公司 PI 衬底(100 H,厚度为 $100\text{ }\mu\text{m}$)。采用实验室自制的磁控溅射仪在柔性 PI 衬底上直流反应磁控溅射沉积 ZnO 压电薄膜。采用 99.999% 的 Zn 靶和 99.999% 的 O_2 反应磁控溅射沉积 ZnO 压电薄膜,溅射气压为 2 Pa,功率为 200 W, Ar 流量为 $100\text{ cm}^3/\text{min}$, O_2 流量为 $50\text{ cm}^3/\text{min}$, 偏压为 -75 V ,衬底温度为 $100\text{ }^{\circ}\text{C}$ 。采用荷兰 PANalytical 公司的 X 射线衍射仪(XRD)分析

ZnO 压电薄膜的晶粒结构,日立 S-4800 扫描电子显微镜(SEM)分析和观测 ZnO 压电薄膜的断面形貌,精工 SPI-3800 原子力显微镜(AFM)分析 ZnO 压电薄膜的表面粗糙度和观测薄膜的表面形貌。图 1 所示为在柔性衬底上沉积的 $4\text{ }\mu\text{m}$ 厚度 ZnO 压电薄膜的晶粒结构状态。图 1(a)为 XRD 图谱,图谱清晰表明 ZnO 薄膜(002)择优取向生长。ZnO(002)衍射峰的半高宽为 0.152° ,表现出良好的晶粒结构。图 1(b)为 ZnO 薄膜的断面 SEM 图,从图可以看出 ZnO 薄膜呈现出柱状生长,柱状结构垂直于衬底,表现出良好的(002)择优生长,和其他科研工作者在硅衬底上沉积的 ZnO 压电薄膜质量相当^[13]。图 1(c)和(d)为 ZnO 压电薄膜的表面形貌和表面粗糙度,测量的表面面积为 $4\text{ }\mu\text{m}\times 4\text{ }\mu\text{m}$,平均表面粗糙度只有 9 nm,和其他科研工作者在硬质硅衬底上获得的薄膜质量相当^[14-16],可以用来制备 SAW 器件。



(a) XRD 图谱 (b) ZnO 薄膜的断面 SEM 图
(a) XRD pattern (b) Cross-sectional view by SEM



(c) ZnO 压电薄膜表面形貌 (d) ZnO 压电薄膜表面粗糙度
(c) Surface topography by AFM (d) Surface roughness by AFM

图 1 ZnO 压电薄膜的晶粒结构状态图

Fig. 1 Crystal structures of ZnO thin film deposited on polyimide substrate

2.2 SAW 器件的制备和表征

SAW 器件的制备均采用传统的超紫外光刻工艺和剥离工艺。采用磁控溅射沉积 100 nm 的 Al 作为叉指电极换能器,叉指电极为 20 对,叉指换能器的输入和输出端间距为 20 倍波长。图 2

为 SAW 器件的示意图,图 2(a)为柔性 SAW 器件的结构示意图,图 2(b)为 SAW 器件的俯视图,图 2(c)和(d)为制备的柔性 SAW 器件图片,表现出良好的可弯曲性和柔软性。采用安捷伦 E5071C 矢量网络分析仪测量 SAW 器件的 S 参数。

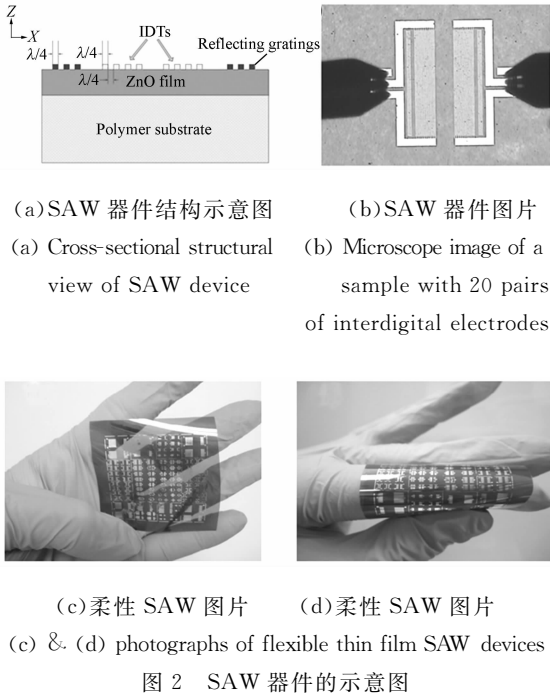


Fig. 2 Flexible thin film Al/ZnO/polyimide SAW devices

3 器件结果和分析

为研究波长对柔性 ZnO/PI SAW 器件的影响,将 ZnO 厚度固定为 $4 \mu\text{m}$,SAW 器件的波长分别为 $8, 16$ 和 $32 \mu\text{m}$ 。SAW 器件的传输特性和反射特性曲线如图 3 所示。当波长分别为 $8, 16, 32 \mu\text{m}$ 时,SAW 器件的谐振频率分别为 $268, 0, 101.5$ 和 34.4 MHz 。SAW 器件的谐振频率随着波长的减小而增大,同时信号幅度也随着波长的减小而增大,当波长为 $8 \mu\text{m}$ 时,幅度为 18 dB 。结果表明在柔性衬底上沉积的 ZnO 表现出良好的压电性能,制备的柔性 SAW 器件性能优良。

SAW 器件的瑞利波相速度 v_p 可以由波长和谐振频率算出, $v_p = \lambda f_0$, 因此制备的柔性 SAW 器件的在波长分别为 $8, 16$ 和 $32 \mu\text{m}$ 时对应的层状结构 SAW 器件的瑞利波相速度为 $2144, 1624$ 和 1100.8 m/s 。结果表明随着波长的增大

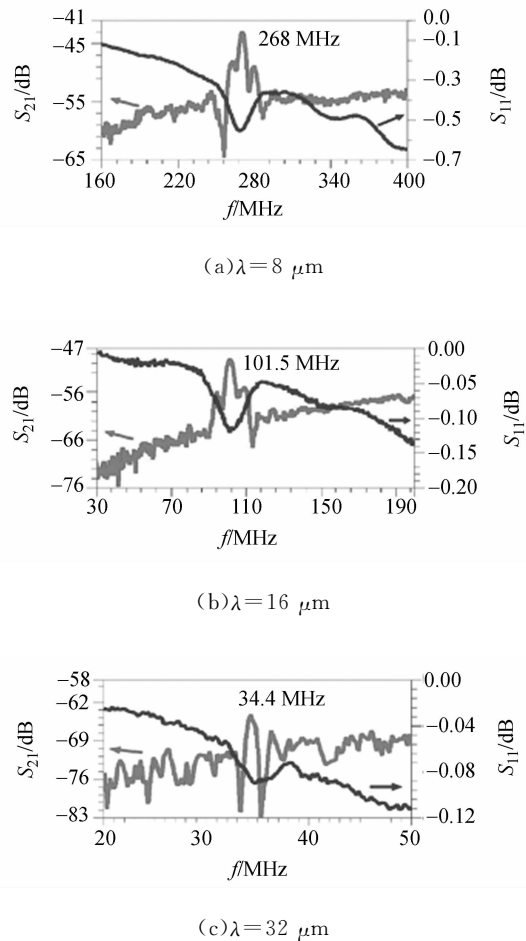


图 3 柔性 Al/ZnO/PI SAW 器件在 ZnO 厚度为 $4 \mu\text{m}$, 波长分别为 $8, 16$ 和 $32 \mu\text{m}$ 时的频率响应特性

Fig. 3 Frequency responses of flexible Al/ZnO/polyimide SAW devices with a ZnO thin film thickness of $4 \mu\text{m}$ at different wavelengths

ZnO/PI 叠层结构的瑞利波声速逐渐减小,结果如图 4 所示。

图 4 所示为 comsol 有限元仿真分析 ZnO/PI 叠层结构的瑞利波声速和实验得到的瑞利波声速的对比图,实验结果和仿真结果符合得很好。对于层状结构的 SAW 器件,由于 SAW 器件的波长远大于压电薄膜的厚度,所以声波将渗入到 PI 衬底中,表明压电薄膜和 PI 衬底同时影响 SAW 器件的瑞利波声速。对于理想的压电 ZnO 薄膜,瑞利波速为 2650 m/s ^[17]。实际上对于固体的瑞利波波速由以下公式^[18]决定:

$$v_p = 0.93 \sqrt{E/2(1+\sigma)\rho}, \quad (1)$$

其中: E 为固体材料的杨氏模量, σ 为材料的泊松

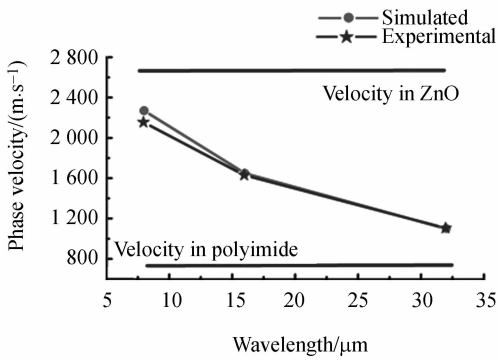


图 4 Al/ZnO/PI 柔性 SAW 器件的实验和仿真对比
Fig. 4 Experimented and simulated results of phase velocities of flexible Al/ZnO/polyimide SAW devices

比, ρ 为材料的密度。对于实验中采用的聚酰亚胺的衬底, 杨氏模量为 2.5 GPa, 泊松比为 0.34, 密度为 $1.42 \times 10^3 \text{ kg/m}^3$ (the datasheet of Dupont Kapton® 100H)。计算出聚下亚胺的瑞利波波速为 754 m/s, 比 ZnO 压电薄膜的瑞利波波速 (2 650 m/s) 小很多。当 SAW 器件的波长降低时, 更多的声能量将渗入在 ZnO 压电薄膜中, 导致更高的叠层瑞利波波速和更好的传输特性曲线。当波长为 $8 \mu\text{m}$ 时, 为 ZnO 薄膜厚度的 2 倍, 获得了瑞利波波速为 2 144 m/s 的叠层结构的柔性 SAW 器件, 叠层结构的瑞利波波速已经达到理想 ZnO 压电薄膜瑞利波波速的 80%, 证明在柔性 PI 上沉积的 ZnO 压电薄膜具有良好的结晶质量和优良压电性能。根据 SAW 器件换能器的等效电路, 机电耦合系数公式为:

$$K^2 = \pi G_m(f_0) / 4NB_s(f_0), \quad (2)$$

其中: N 为叉指数, $G_m(f_0)$ 和 $B_s(f_0)$ 为在谐振点 f_0 的动态电导和静态电纳。当 SAW 器件的波长为 $8 \mu\text{m}$, ZnO 厚度为 $4 \mu\text{m}$ 时, 获得了高的机电耦合系数 1.1%。

为了研究压电薄膜厚度对 SAW 性能的影响, 在柔性 PI 衬底上沉积了 1.2, 1.7, 2.3 和 $4 \mu\text{m}$ 的 ZnO 压电薄膜, 薄膜的厚度由沉积时间来控制决定, 厚度值由台阶仪测量, 固定 SAW 器件的波长为 $16 \mu\text{m}$ 。图 5 所示为柔性 SAW 器件随着 ZnO 压电薄膜厚度变化的频率响应。ZnO 薄

膜厚度从 1.2 增加到 $4 \mu\text{m}$, SAW 器件的谐振频率逐渐增加, 分别为 52.9, 58.6, 68.5 和 101.5 MHz。由谐振频率计算出叠层结构的瑞利波波速分别为 846.4, 937.6, 1 096.0, 1 624.0 m/s, 可知瑞利波波速随着厚度的增加逐渐增大。这是因为当波长一定时, 随着厚度的增加, 更多的声能量渗入在 ZnO 压电薄膜中, 导致叠层结构的声速增加, 由此很好地证明了压电效应是由 ZnO 压电薄膜而不是由柔性衬底引起的。

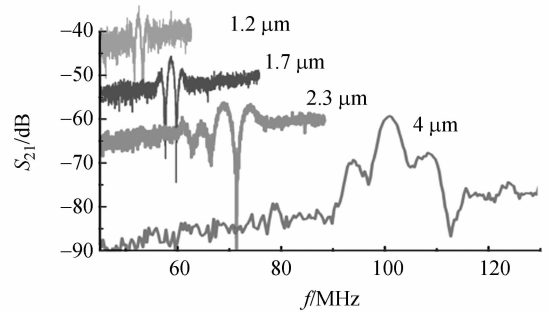


图 5 ZnO 厚度对柔性 SAW 性能的影响

Fig. 5 Influence of ZnO thickness on flexible SAW device

4 结 论

本文在柔性聚酰亚胺衬底上低温反应磁控溅射沉积了 ZnO 压电薄膜, 采用 X 射线衍射、扫描电镜、原子力分析检测手段表明沉积的 ZnO 压电薄膜呈现出优良的 (002) 择优取向, 晶粒呈柱状生长, 且垂直于衬底, 薄膜表面粗糙度低。在柔性衬底上制备了基于 ZnO 压电薄膜型的 SAW 器件, 制备的 SAW 器件表现出良好的谐振性能。当 ZnO 压电薄膜厚度固定为 $4 \mu\text{m}$ 时, 随着波长的减小, SAW 器件的谐振频率和瑞利波波速都增大。当固定 SAW 器件的波长为 $16 \mu\text{m}$ 时, 随着 ZnO 压电薄膜的厚度的增加, 谐振频率和声速都增加。在 ZnO 压电薄膜厚度为 $4 \mu\text{m}$, 波长为 $8 \mu\text{m}$ 时, 获得了谐振频率为 268 MHz, 瑞利波波速为 2 144 m/s, 机电耦合系数为 1.1% 的 SAW 器件。在柔性传感、柔性微流体、柔性片上实验室展现了出良好的应用前景。

参考文献:

- [1] ROGERS J A, SOMEYA T, HUANG YG. Materials and mechanics for stretchable electronics[J]. *Science*, 2010,327:1603-1607.
- [2] LUNGENSCHMIED C, DENNLER G, NEUGEBAUER H, *et al.*. Flexible, long-lived, large-area, organic solar cells[J]. *Energy Mater. Cells*, 2007, 91: 379-384.
- [3] GREEF A DE, LAMBERT P, DELCHAMBRE A, Towards flexible medical instruments: Review of flexible fluidic actuators[J]. *Precis. Eng.*, 2009, 33:311-321.
- [4] KREBS F C, GEVORGYAN S A, GHOLAMKHAASS B, *et al.*. A round robin study of flexible large-area roll-to-roll processed polymer solar cell modules[J]. *Energy Mater. Cells*, 2009, 93:1968-1977.
- [5] SUN L, QIN G, HUANG H, *et al.*. Flexible high-frequency microwave inductors and capacitors integrated on a polyethylene terephthalate substrate [J]. *Appl. Phys. Lett.*, 2010, 96: 013503-013509.
- [6] PARK S I, XIONG Y J, KIM R H, *et al.*. Printed assemblies of inorganic light-emitting diodes for deformable and semitransparent displays [J]. *Science*, 2009,325(5943):977-981.
- [7] SIRE C, ARDIACA F, LEPELLIET S, *et al.*. Flexible gigahertz transistors derived from solution-based single-layer graphene [J]. *Nano Lett.*, 2012, 12(3) : 1184-1188.
- [8] LEMKE T, BIANCUZZI G, FETH H, *et al.*. Fabrication of normally-closed bidirectional micropumps in silicon - polymer technology featuring photopatternable silicone valve lips [J]. *Sens. Actuator A-Phys.*, 2011,168 (1):213-222.
- [9] AKIYAMA M, MOROFUJI Y, KAMOHARA T, *et al.*. Flexible piezoelectric pressure sensors using oriented aluminum nitride thin films prepared on polyethylene terephthalate films [J]. *J. Appl. Phys.*, 2006,100 (11):114318-114318-5.
- [10] FU Y Q, LUO J K, DU X Y, *et al.*. Recent developments on ZnO films for acoustic wave based bio-sensing and microfluidic applications: a review [J]. *Sens. Actuator B-Chem.*, 2010,143(2):606-619.
- [11] FU Y Q, GARCIA-GANCEDO L, PANG H, *et al.*. Microfluidics based on ZnO/nanocrystalline diamond surface acoustic wave devices [J]. *A. Biomicrofluidics*, 2012, 6 (2) : 024105- 024105-11.
- [12] LUO J K, FU Y Q, ASHLEY G, *et al.*. Integrated ZnO film based acoustic wave microfluidics and biosensors [J]. *Adv. Sci. Technol.*, 2011, 67:49-58.
- [13] IEVTUSHENKO A I, KARPYNIA V A, LAZORENKO V I, *et al.*. High quality ZnO films deposited by radio-frequency magnetron sputtering using layer by layer growth method [J]. *Thin Solid Films*, 2010,518(16):4529-4532.
- [14] WEI C L, CHEN Y C, CHENG C C, *et al.*. Highly sensitive ultraviolet detector using a ZnO/Si layered SAW oscillator[J]. *Thin Solid Films*, 2010,518 (11):3059-3062.
- [15] WATER W, CHU S Y. Physical and structural properties of ZnO sputtered films [J]. *Mater. Lett.*, 2002,55:67-72.
- [16] ASMAR R, FERBLANTIER G, MAILLY F, *et al.*. Effect of annealing on the electrical and optical properties of electron beam evaporated ZnO thin films [J]. *Thin Solid Films*, 2005,473:49-53.
- [17] KALANTAR-ZADEH K, CHEN Y Y, *et al.*. A novel Love mode SAW sensor with ZnO layer operating in gas and liquid media [J]. *IEEE Ultrasonics Symposium*, 2001,1:353-356.
- [18] MORGAN D P. *Surface-wave Devices for Signal Processing* [M]. Elsevier: New York, 1985.

作者简介:



周 剑(1988—),男,湖南长沙人,博士研究生,主要从事柔性 MEMEs 器件的研究。E-mail: 11031028@zju.edu.cn

通信作者:



金 浩(1979—)男,浙江绍兴人,浙江大学信电系副教授 主要从事射频微波通信系统、电路与器件;薄膜电子学的研究 hjin.zj@gmail.com