

氏 名	新居(沖野)裕文
学位(専攻分野)	博 士 (工 学)
学 位 記 番 号	工 博 第 2119 号
学位授与の日付	平成 14 年 3 月 25 日
学位授与の要件	学 位 規 則 第 4 条 第 1 項 該 当
研究科・専攻	工 学 研 究 科 電 子 物 性 工 学 専 攻
学位論文題目	強誘電体 PZT の MOCVD 薄膜における電気的特性に関する研究

論文調査委員	(主 査) 教授 松 重 和 美	教授 松 波 弘 之	教授 鈴 木 実
--------	---------------------	------------	----------

論 文 内 容 の 要 旨

本論文は、高機能集積回路デバイスにおけるキーマテリアルである強誘電体ジルコン酸チタン酸鉛 (PZT) 薄膜について、様々な応用の場面で問題となりうる漏洩電流、分極反転疲労、応力による特性劣化といった問題を取り上げ、測定方法・評価技術を検討してそれらの現象に対するモデルと強誘電体薄膜デバイスの設計指針について提案することを目的とした一連の研究成果をまとめたもので、7 章から構成されている。

第 1 章は序論であり、本論文の背景、目的および構成について述べている。

第 2 章では、本論文で作製・評価した PZT 薄膜キャパシタの作製方法およびその電極構造について述べている。本論文では、目的に応じ、応用上重要な積層電極構造と物性を考察する上で有利な点をもつ楕形電極構造という二種類の電極構造を使い分けている。それぞれの電極構造の特徴を述べ、さらに楕形電極構造に関しては電極間の電界強度が一定と見なせる条件を有限要素法による計算から明らかにしている。

第 3 章では、楕形電極構造および積層電極構造をもつ Pt/PZT/Pt キャパシタの電流 - 電圧特性とその電流輸送機構に対する考察について述べている。まず、PZT 薄膜の電気伝導特性を複雑にしている要因を排除した系である楕形試料の電流 - 電圧特性から、楕形試料の電流輸送は PZT 内でのドリフトを考慮したショットキー放出電流モデルを用いて説明できることを述べている。さらに、この楕形試料の電流 - 電圧特性を積層試料の特性と比較することで、積層試料では、電極界面近傍に低誘電率層が存在し、電流注入界面での電界強度が増大していることを議論している。この考察から、電流 - 電圧特性を改善するために、電極界面近傍における強誘電体薄膜の誘電率を制御することを提案している。

第 4 章では、Pt/PZT/Pt キャパシタの熱刺激電流特性から、薄膜内のトラップ電荷が分極反転疲労現象において果す役割について考察した結果を述べている。実験結果として、分極反転処理によるスイッチング電荷量の減少と PZT 薄膜キャパシタ内のトラップ電荷の密度との間に明確な相関を見いだしている。さらに、熱刺激電流特性の膜厚依存性に対する考察から、分極反転疲労の進行とともに徐々に増加し界面近傍に偏在するトラップ電荷と、疲労がある程度進行した後急激に増加し PZT 薄膜全体にひろがっているトラップ電荷との二種類があると論じている。この議論から、強誘電体の分極反転疲労現象が(1)電極界面付近への欠陥蓄積による強誘電ドメインの核生成・成長抑止、(2)電極近傍の低誘電率劣化層が原因でおこる PZT への電荷注入および PZT の部分分極状態によるバルク的ドメインピニング、という二段階を経ると結論付けている。さらにそこから、分極反転疲労を防ぐために最も重要なことは、電極界面への欠陥の蓄積を緩和し電極界面近傍における低誘電率劣化層の形成を防ぐことであると述べている。

第 5 章では、全反射 X 線回折法と楕形電極構造を用いて、MgO (100) 単結晶基板上にエピタキシャル成長させた PZT 薄膜の膜厚による正方晶歪みの変化と電気的特性の相関に関して議論している。楕形電極構造を用いることで、エピタキシャル成長を制御しやすい単結晶基板(強誘電体薄膜の場合、ほとんどは絶縁性酸化物)上に直接成長させた強誘電体薄膜の電気的特性測定が可能となる。膜厚の減少とともに PZT 薄膜の正方晶歪みは 1 に近づき(結晶構造が立方晶に近づき)、

それに伴い誘電率の減少とキュリー点の低下、キュリー点近傍の誘電率ピークの鈍化が見い出された。この実験結果を、PZT (100) と MgO (100) の格子不整合による内部応力の観点から議論している。

第6章では、鉛直および面内圧電応答顕微鏡を用いた強誘電体材料のドメイン構造観察について、その研究成果を述べている。この装置をドメイン構造が複雑な薄膜材料に対して用いる準備として、典型的なドメイン構造を持ち、既知の従来法からそれを確認できる強誘電体単結晶（チタン酸鉛）の観察を行なっている。チタン酸鉛単結晶の自然成長面において観察される4種のドメイン構造を従来法（強弾性分域での傾斜角測定およびエッチングによる表面修飾）と本手法を用いて詳細に観察し、両観察結果が矛盾しないことを確認している。さらに、従来法では確認が不可能であった、面内に分極成分をもつaドメインの分極方向を知ることができることが示されている。

第7章、本論文のまとめを述べ、さらに今後の研究課題を示している。

論文審査の結果の要旨

本論文は、電子デバイスの高機能化に必須の強誘電体薄膜材料として有機金属化学気相成長法（Metalorganic chemical vapor deposition: MOCVD）法により作製したジルコン酸チタン酸鉛（PZT）薄膜を対象に、その電気的諸特性に関する考察を様々な特性評価を通じて行った研究成果をまとめたものであり、得られた研究成果の概要は次のように要約される。

- (1) 楕円電極構造を利用して Pt/PZT/Pt 薄膜キャパシタの電流 - 電圧特性の測定を行い、その特性が PZT 内でのドリフトを考慮したショットキー放出モデルを用いて説明できることを示した。
- (2) 電流 - 電圧特性から算出される PZT 薄膜の動的誘電率により、キャリア注入界面における電界強度についての知見が得られることを明らかにした。さらに、PZT 薄膜キャパシタの電流 - 電圧特性を改善するためには、電極/強誘電体界面の誘電率を制御することが重要であることを示した。
- (3) 熱刺激電流法による強誘電体薄膜中のトラップ電荷測定を試み、分極反転疲労処理によるスイッチング電荷量の減少と PZT 薄膜キャパシタ内のトラップ電荷密度との間に明確な相関があることを示すとともに強誘電体の分極反転疲労現象が、(a)電極界面付近への欠陥蓄積による強誘電ドメインの核生成・成長抑止、(b)PZT 薄膜への電流注入により引き起こされるという二段階を経るモデルを提案した。
- (4) エピタキシャル成長させた PZT 薄膜の結晶状態とその誘電的および強誘電的特性を、エネルギー分散型全反射 X 線回折法および楕円電極を用いた手法で評価し、膜厚と内部応力の緩和および誘電諸特性に深い相関があることを明らかにした。

以上、要するに、本論文は、強誘電体薄膜デバイス開発の上で問題となる漏洩電流、分極反転疲労、および応力による特性劣化現象に対して、観測結果を説明できる発現機構モデルと強誘電体薄膜デバイスの高機能化設計指針を提案したものであり、大きな成果であると考えられる。

よって、本論文は博士（工学）の論文として価値があるものと認める。また、平成14年1月25日、論文内容とそれに関連した事項について試問を行った結果、合格と認めた。