

# 誘電体・強誘電体薄膜による新規情報電子デバイスの開発



研究室紹介

奥山 雅則\*

Development of New Types of Electronic Devices for Information Technology Using Dielectric Ferroelectric thin Films

Key Words : Dielectric thin Film, Ferroelectric thin Film, Electron Device, Memory, Sensor

## 1. はじめに

21世紀に突入し益々発展していく高度情報化社会を担うのが種々の機能を有する電子デバイスである。これらの電子デバイスは主に半導体シリコン集積回路であるが、これと機能性材料薄膜を組み合わせることにより、超高集積化、高性能化、多機能化を促進できる。例えば、超LSIの更なる高集積化を図るには低電圧駆動、低リーク電流のゲート絶縁膜が必要で高誘電率希土類金属酸化物薄膜が利用されようとしているし、逆に層間絶縁膜としてはCRによる遅延を少なくする低誘電率薄膜の開発が切望されている。また、強誘電体薄膜を用いれば、誘電ヒステリシスを利用したメモリ素子、焦電性を利用した赤外線センサ、圧電性を利用したセンサやアクチュエータ、電気光学効果を利用した光素子などがある。こういった興味ある誘電体や強誘電体薄膜を作製、物性そしてそのデバイス応用について研究を行っている。研究室の構成員は4名の教官(奥山雅則教授、野田実助教授、山下馨助手、金島岳助手)、秘書、研究員3名、後期課程2年次3名、1年次1名、前期課程2年次5名、1年次5名、4年生5名からなっている。また、国内外の研究機関とも研究交流を活発に行っている。以下に、具体的な研究内容について述べる。

て述べる。

## 2. 研究内容

研究内容を次世代電子デバイスのための誘電体膜と強誘電体膜に分けて以下に述べる。

### (1) 次世代半導体プロセス技術と誘電体薄膜

#### a) 高誘電率(High-k)ゲート絶縁膜

超LSIの集積度が進むにつれFETのゲート酸化膜( $\text{SiO}_2$ 膜)の膜厚は1nm程度と非常に薄いものが要求されるが、トンネル電流が非常に大きくなり使用できず、高誘電率ゲート絶縁膜が必須となってきた。 $\text{HfO}_2$ ,  $\text{ZrO}_2$ ,  $\text{PrO}_2$ 膜などの高誘電率膜をSi基板上にレーザアブレーション(PLD)法により数nm成長させ、C-V, I-V特性、TEM, SEM観察、XPS, XRDなどより評価し、ゲート絶縁膜としての有効性を調べている。

#### b) フォトフレクタンス分光法による 絶縁膜/Si構造の評価

絶縁膜/Si構造にレーザ光を照射したときSi表面ポテンシャルは減少し、その電界変化により反射率が変わりその変化分を測定するのがフォトフレクタンス分光法で、その解析から非接触・非破壊でSiの遷移エネルギーが得られる。これにより絶縁膜/Siおよび強誘電体膜/絶縁膜/Si構造の応力、表面ポテンシャルをもとめ、構造評価を行っている。

#### c) 放射光の軟X線を用いた電子材料の薄膜作製 とエッチング

西播磨の大型放射光施設Spring-8のアンジュレータからの高輝度軟X線は内殻電子を励起し物質を高励起するため、加工性が良くないとされているSiC、ダイアモンド、PTFE(テフロン)などでもよくエッチングする。ここでは特に $\text{CaF}_2$ ,  $\text{MgF}_2$ などの弗化合物のエッチングやアブレーションによる薄膜作製を



\* Masanori OKUYAMA  
1946年3月生  
1973年大阪大学基礎工学部電気工学科  
博士課程修了  
現在、大阪大学・基礎工学研究科・システム創成、教授、工学博士、固体電子工学  
TEL 06-6850-6330  
FAX 06-6850-6341  
E-Mail okuyama@ee.es.osaka-u.ac.jp

行い、電子デバイスへの利用を検討している。

## (2) 強誘電体薄膜の作製と誘電的性質の解明

a) ランダウ理論に基づいた格子モデルによる  
誘電分極反転機構の解明

分極を格子状に並べたモデルにおいてランダウ理論に基づいた解析を行い、分極分布の時間応答ならびにヒステリシスを求めている。この解析結果とPZT薄膜の分極ヒステリシスを比較検討することにより分極反転機構や分極の繰り返し反転による劣化“疲労”機構の解明を行っている。さらに原子間力顕微鏡を用いたミクロなヒステリシス分布から薄膜の分極不均一性とマクロな特性との相関性を明らかにしている。

b) ゾルーゲル法, MOD法と水熱アニール処理によるPZT, BaTiO<sub>3</sub>薄膜の低温作製

強誘電体薄膜メモリが高集積化、超微細化されるとき通常のプロセス用いられる600℃以上の高温では集積回路に損傷を与えてしまい大きな問題となる。そこでゾルーゲル法や有機金属分解(MOD)法で作製された非晶質PZT, BaTiO<sub>3</sub>薄膜をアルカリ溶液中に浸し、これを密閉容器に入れて140-200℃で加圧処理を行うことにより結晶化させ、強誘電体としている。分極ヒステリシスも得ることができ、製造プロセスへの実用化を検討している。

### c) レーザアブレーション法によるBi層状構造強誘電体超格子薄膜の低温作製と評価

Bi層状構造強誘電体(BLSF)は $\text{Bi}_2\text{O}_3$ 層間の擬ペロブスカイト層が挿入された構造を持つ。このペロブスカイト格子層数の異なる2種のBLSFを混合したターゲットをレーザアプレーションで製膜したとき、2種のペロブスカイト格子層が交互に現れる自然超格子となる。 $\text{Bi}_4\text{Ti}_3\text{O}_{12}$ - $\text{SrBi}_4\text{Ti}_4\text{O}_{15}$ の場合交互に繰り返す1:1の超格子となるが、 $\text{Bi}_4\text{Ti}_3\text{O}_{12}$ - $\text{Bi}_3\text{TiNbO}_9$ の場合1:2で繰り返す構造となる。この超格子膜において強誘電性は改善され残留分極が増大し、メモリ材料として期待されている。

#### d) レーザアブレーション法によるフェロイック BiFeO<sub>3</sub>薄膜の作製と評価

強磁性金属Feを含むBiFeO<sub>3</sub>は強誘電性と強磁性を合わせ持つフェロイック(Ferroic)物質として興味ある性質を示し、多値論理素子や高ダイナミックレンジセンサなどの応用デバイスが期待されている。雰囲気ガスを最適制御したレーザアブレーション法

により作製したBiFeO<sub>3</sub>薄膜は絶縁性が高く、さらに強誘電性が改善され残留分極は非常に大きい。強磁性もスピンのわずかな傾斜によって生ずる弱い強磁性を確認している。

e) 光電子分光法による SrBi<sub>2</sub>Ta<sub>2</sub>O<sub>9</sub> 薄膜の電子構造

強誘電体薄膜の絶縁性や強誘電体膜/絶縁膜/Si構造の容量保持特性において大きな影響を与えるのが、Schottky障壁高さであり、これに関係するFermi levelや電子親和度をXPSやUV-PYS(UV-Photo-Yield Spectroscopy)により調べている。Fermi levelはas-deposited SrBi<sub>2</sub>Ta<sub>2</sub>O<sub>9</sub>(SBT)filmに比べ酸素アニールしたSBT膜では減少し、これが正孔のSchottky障壁高さを高くしている。さらに種々の処理に対する電子構造変化を調べている。

### (3) 強誘電体薄膜を用いた機能性デバイス

図1に強誘電体薄膜の応用デバイスを示すか、その中から現在取り組んでいるものを説明する。

a) SBT膜を用いたMFIS構造の特性改善と  
強誘電体薄膜ゲートFET不揮発性メモリ

強誘電体薄膜ゲートFETメモリは非破壊読み出しが可能で、既開発のFETのソースに強誘電体膜コンデンサをつなげたIT1Cタイプより原理的に優れた究極のメモリとして期待されるが、記憶保持特性が良くない。ゲート部の強誘電体/絶縁体/半導体のバンドプロファイルの時間変化を理論解析し、リーク電流が重要であることを示した。絶縁膜を窒化処理したり、SBT膜の熱処理することにより改良を試みている。特にSBT膜のRTAにより保持時間が延び、外挿すると記憶寿命は1年となり実用化の目処をたてた。

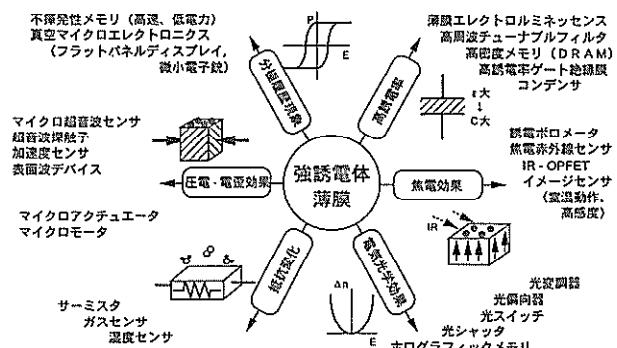


図1 強誘電体薄膜の諸現象と応用デバイス

b) 誘電ボロメータによる高感度赤外線センサ  
誘電率温度係数の大きい強誘電体薄膜をMEMSで作られたメンブレンとSi基板上に成長させ、プリッジとし両端に電圧を印加すると赤外線を検知するボロメータセンサとなる。材料として $BaTi_{1-x}Sn_xO_3$ ,  $PbSc_{0.5}Ta_{0.5}O_3$ を選び、前者を有機金属分解(MOD)法、後者をレーザアブレーション法により薄膜化した。両薄膜は優れたボロメータ特性を示し、特に $BaTi_{1-x}Sn_xO_3$ 膜は4%/°C以上の温度係数が得られ、優れた赤外線センサが期待される。

c) 超高周波チューナブル素子

携帯電話やデータ通信においてチューナブルフィルタやチューナーは不可欠な素子であるが、高周波化の要求に伴い、従来素子では問題が多い。 $Ba_{1-x}Sr_xTiO_3$ 薄膜をMOD法により作製しその誘電率の電界依存性が大きく、大きなTunabilityを有することが示され、実用化が期待されている。

d) 超音波アレイセンサによる立体画像計測

MEMSにより形成されたメンブレン上にPZT薄膜を成長した構造に超音波を当てるとき機械的に共振して圧電出力が得られる。これをアレイに並べた素子に反射超音波を検知させ、それらの応答に遅延をかけて足し合わせることにより感度を走査できる。この走査を行い、反射波の到着時間を計測することにより立体像を得ることができる。アレイの共振周波数のばらつきが積算応答に大きく影響を与えるこ

とからポーリングやインクジェットプリンタによる周波数調整を行い、再現性のよい立体像を得ることができた。

e) 微分スペクトルイメージングによる画像の特徴抽出

2枚の半透明膜からなるファブリーペロー干渉フィルターを撮像装置の前に置き、異なる干渉スペクトルを通して撮られた2枚の画像の差分を計算することにより、波長で微分したスペクトルのイメージを得ることができる。特徴的な画像例として可視光像では還元ヘモグロビンの画像化、赤外光像ではライターのガス流の可視化がある。さらに偏光やルミネッセンスを明瞭に見出す差分画像も容易に得られ、窓ガラスに映る像の弁別やお札の認証への応用が期待される。

### 3. おわりに

以上のように、次世代の機能性情報電子デバイス実現のため、誘電体、強誘電体、半導体などの電子材料薄膜の作製、評価からこれらを利用したデバイス試作と特性改善の一貫した研究を行っている。こうした研究から至るところで新規物質創成、物性の驚異的改善、デバイス実現のためのシーズが見出される。これらの多くの萌芽的研究の中から実用化に向けた共同研究開発が進めば喜ばしいと考えている。

この記事をお読みになり、著者の研究室の訪問見学をご希望の方は、当協会事務局へご連絡ください。

事務局で著者と日程を調整して、おしらせいたします。

申し込み期限：本誌発行から2か月後の月末日

申し込み先：生産技術振興協会 tel 06-6395-4895 E-mail [seisan@maple.ocn.ne.jp](mailto:seisan@maple.ocn.ne.jp)

必要事項：お名前、ご所属、希望日時(選択の幅をもたせてください)、複数人の場合はそれぞれのお名前、ご所属、代表者の連絡先著者の都合でご希望に沿えない場合もありますので、予めご了承ください。