

## 論文内容の要旨

博士論文題目 次世代強誘電体薄膜メモリ応用に向けた強誘電体  
Pb(Zr,Ti)O<sub>3</sub> 薄膜の液体供給 MOCVD 成膜に関する研究

氏 名 王谷 洋平

### (論文内容の要旨)

IT 化社会の進展に伴い不揮発性メモリに対する要望が高まっているが、現在不揮発性メモリとして広く用いられているフラッシュメモリでは低消費電力化や動作速度の高速化が困難である。この解決のために強誘電体の分極反転を利用して記憶を行なう強誘電体メモリ[FeRAM]の実用化が進められているが、現状では FeRAM の大容量化が未達であり広く普及するまでには至っていない。

そこで本論文では、強誘電体 Pb(Zr,Ti)O<sub>3</sub> (PZT) 薄膜の液体供給 MOCVD 成膜に関する検討を行い、次世代大容量 FeRAM 実現に必須な高段差被覆性と強誘電体薄膜プロセス低温化を両立するとともに、原料のカクテル化を実現した成膜技術を構築することを目的とした。

第 1 章では、不揮発性メモリの現状と要求される要素について述べた上で、その要求に応えるために必要な強誘電体薄膜作製技術に要求される要素について述べた。

第 2 章では、液体供給 MOCVD 法の原理的利点を示した上で、本研究で用いた液体供給 MOCVD 装置の特徴を中心に装置構成について解説した。また、使用した白金下部電極膜の仕様や評価方法、作製した強誘電体 PZT 薄膜の評価方法について述べた。

第 3 章では、大容量化に不可欠な段差被覆性と良好な電気特性を実現できる PZT 薄膜の高 111 配向化の両立を目指した取り組みを行なった。はじめに PZT 薄膜の堆積温度と段差被覆性の関係を示し、段差被覆性における低温堆積の必要性を明らかにするとともに、低温堆積時における Ti の取り込み不足の問題について新規 Ti 原料の導入による解決策について述べた。一方、高 111 配向化については下地となる白金下部電極の熱処理時の挙動について詳細な検討を行い、PZT 薄膜堆積時における PbPt<sub>x</sub> 形成が 111 配向に重要な役割を果たすことを明らかにした。これらにより、高段差被覆性と高 111 配向性を両立し得る条件を見出し、近い将来予想される FeRAM 大容量化に対応可能なプロセス技術を確立した。

第 4 章では、FeRAM の量産段階において安定生産・コスト削減の上で不可欠

となると予想されるカクテル原料を用いた強誘電体薄膜の堆積に関し詳述した。 $\beta$ -ジケトン化合物を組み合わせたカクテル原料では、基板温度 500°C、ポストアニール温度 600°C の条件で良好な強誘電特性を示す PZT 薄膜を得た。一方、全原料をアルコキシド化したカクテル原料の場合では、基板温度 450°C、ポストアニール温度 600°C とすることにより良好な強誘電特性を確認し、原料のアルコキシド化によるプロセス温度低温化の可能性を示した。

第 5 章では、得られた成果をまとめ本論文の結論とすると共に、今後の課題と展望について述べた。

本論文は液体供給 MOCVD 成膜による PZT 成膜プロセスの高性能化を探索したものであり、次世代 FeRAM 実現のための有用な知見を与えるものである。

氏名	王谷 洋平
----	-------

### (論文審査結果の要旨)

IT 化社会の進展に伴い不揮発性メモリに対する要求が高まっているが、現在不揮発性メモリとして広く用いられているフラッシュメモリやEEPROMでは低消費電力化や動作速度の高速化のニーズに答えることができない。この問題の解決のため強誘電体の分極反転を利用して記憶を行なう強誘電体メモリ[FeRAM]の実用化が進められているが、現状ではFeRAMの大容量化が実現されてないため普及には至っていない。

そこで本論文では強誘電体PZT薄膜の液体供給MOCVD成膜に関する検討を行い、次世代FeRAM実現に必須な強誘電体成膜プロセスの確立を目的としている。

本論文では、まず、液体供給MOCVD法の原理的利点を示した上で、本研究で用いた液体供給MOCVD装置の特徴を解説した。また、大容量FeRAM実現のためには強誘電体PZT薄膜の高段差被覆性と高111配向化の両立が必須であること、ならびに大量生産時においてMOCVD原料のカクテル化が必要であることについて述べた。

次に、大容量化に不可欠な段差被覆性と良好な電気特性を実現できるPZT薄膜の高111配向化を両立する取り組みについて述べた。最初にPZT薄膜の堆積温度と段差被覆性の関係を示し、段差被覆性における低温堆積の必要性を明らかにするとともに、低温堆積時におけるTiの取り込み不足の問題について新規Ti原料の導入による解決策を示した。一方、高111配向化については、下地となる白金(Pt)下部電極の熱処理時の挙動について詳細な検討を行い、PZT薄膜堆積時におけるPbPt<sub>x</sub>形成が高111配向化に重要な役割を果たすことを明らかにした。これらにより高段差被覆性と高111配向性を両立し得る条件を見出し、近い将来予想されるFeRAM大容量化に対応可能なプロセス技術を確認した。

次に、FeRAMの量産段階において安定生産・コスト削減の上で不可欠となると予想されるMOCVD原料のカクテル化に対する取り組みについて述べた。β-ジケトン化合物を組み合わせたカクテル原料では、基板温度500℃、ポストアニール温度600℃の条件で良好な強誘電特性を示すPZT薄膜を得た。一方、全原料をアルコキシド化したカクテル原料の場合には、基板温度500℃、ポストアニール温度600℃とすることにより良好な強誘電特性を確認し、原料のアルコキシド化によるプロセス温度の低温化の可能性を示した。

以上のように、本論文では、強誘電体PZT薄膜の液体供給MOCVD成膜に関して、次世代FeRAMの大容量化に不可欠な高段差被覆性と高111配向化の両立、ならびに大量生産に適した原料のカクテル化についてその挙動について詳細な検討を行っており、応用上大変有益な成果を得ている。よって、本論文は博士(工学)の学位論文として価値あるものと認められる。