

論文内容の要旨

博士論文題目 Study on Improvement of Fatigue Behavior of Ferroelectric
Pb(Zr, Ti)O₃ Thin Films Using PbZrO₃ Buffer Layers
(PbZrO₃ バッファ層を用いた Pb(Zr,Ti)O₃ 強誘電体薄膜の
耐疲労特性の改善に関する研究)

氏 名 Ebru MENSUR ALKOY

(論文内容の要旨)

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などにおいて、市場のニーズに答えることができない。そのため近年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、強誘電体には分極反転を繰り返すと分極が低下してしまう疲労特性という問題があり書込み回数の制限などから FeRAM 普及の妨げになっている。

そこで本論文では FeRAM で広く用いられている Pb(Ti, Zr)O₃ (PZT) 薄膜についてその耐疲労特性の向上を図り、疲労発生メカニズムを明らかにすることを目的としている。

第1章では、FeRAM の現状と課題について述べたあと、疲労特性について現在明らかにされている現象やメカニズムについて述べた。

第2章では、課題解決のための方針、すなわち強誘電体と電極間に PbZrO₃ (PZ) バッファ層導入による耐疲労特性改善、を明らかにした。

第3章ではゾル・ゲル法による PZT 薄膜の形成について、白金(Pt)電極上への最適な成膜条件の探索を行ない、疲労特性改善探索に使用し得る高い (111) 配向性を有する PZT 薄膜形成プロセス技術を確立した。

第4章では、バッファ層として使用する PZ についてゾル・ゲル法を用いて作製し、最適成膜条件において (111) 配向が得られることを見出した。

第5章では、スパッタ法による PZ の作製について述べ、成膜条件の最適化により微細グレイン構造を有する定比の PZ 薄膜が得られることを明らかにした。

第6章では、バッファ層とゾル・ゲル法で作製した PZT を組合せた多層構造を作製し、疲労特性の改善について検討を行なった結果、スパッタで作製した

PZ バッファ層導入により耐疲労特性が改善されることを見出した。一方、ゾル・ゲル法で作製した PZ バッファ層ならびに PbTiO_3 (PT) バッファ層では耐疲労特性の大きな改善が見られないことを明らかにした。

またこれらの実験結果をもとに、バッファ層導入による疲労特性改善の効果について、耐疲労特性改善モデルを用いて考察した。

第 7 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。

以上のように、本論文では、FeRAM の解決課題の一つである耐疲労特性の改善について、詳細な検討を行なうことにより実験的に改善を実現するとともに、その改善原因についてモデルを用いて考察しており、耐疲労特性の新たな改善手法を提案している。

(論文審査結果の要旨)

IT 化社会の発展に伴い電源を切ってもメモリ内容が消えないという特徴を持つ不揮発性メモリの需要は年々増加しているが、現在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など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、近年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、強誘電体には分極反転を繰り返すと分極が低下してしまう疲労現象という問題があり、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の耐疲労特性改善のため、現在広く FeRAM に用いられている Pb(Ti, Zr)O₃ (PZT) 薄膜について耐疲労特性改善手法を確立し、疲労発生メカニズムを明らかにすることを目的としている。

本論文では、まず、FeRAM の現状と課題について述べたあと、現在提案されている疲労発生メカニズムのうち強誘電体/電極界面に起因するものに着目し、強誘電体と電極間に PbZrO₃ (PZ) バッファ層を導入することにより耐疲労特性を改善する方針を明らかにした。

次に、ゾル・ゲル法による PZT 薄膜の形成について、白金(Pt)電極上への最適な成膜条件の探索を行った。その結果、過剰鉛 (Pb) 量や下地となる Pt 電極の配向性、ならびにアニール条件が PZT の結晶配向性ならびに電気特性に大きな影響を与えることを明らかにした。その結果、疲労特性改善探索に使用し得る高い (111) 配向性を有する PZT 薄膜形成プロセス技術を確立した。

次に、バッファ層として使用する PZ についてゾル・ゲル法やスパッタ法を用いて探索した。ゾル・ゲル法による PZ 成膜では Pb 組成や溶液のドライ温度が結晶配向性に大きな影響を与えることを見出し、15%の Pb 過剰溶液を用い 250°C で溶液ドライを行なうことで (111) 配向が得られることを見出している。一方、スパッタ法では成膜条件の最適化により、微細グレイン構造を有する定比の PZ 薄膜が得られることを明らかにした。またあわせて、ゾル・ゲル法による PbTiO₃ (PT) バッファ層作成条件についても最適化を行なった。

次に、上記で得られた PZ ならびに PZT を組合せた多層構造を作製し、疲労特性の改善について検討した。ゾル・ゲル法で得られた PZ をバッファ層に用いた場合、膜内の微構造の不均一性などにより特性改善が見られなかったのに対し、スパッタ法によって作製した PZ バッファ層では疲労特性が改善され、とりわけ 10nm 程度の超薄膜 PZ バッファが耐疲労特性の向上に有効であることを明らかにした。また PT をバッファ層に用いた場合、耐疲労特性の改善が見られないことを見出した。これらの実験結果をもとに、バッファ層導入による疲労特性改善の効果について、耐疲労特性改善モデルを用いて考察した。

以上のように、本論文では、FeRAM の解決課題の一つである耐疲労特性の改善について詳細な検討を行ない、耐疲労特性の大幅な向上を実現するとともに新たな改善メカニズムを提案しており、応用上ならびに理論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。