化学溶液堆積と結晶化によって成膜した強誘電体ナノ薄膜の構造と特性

Structure and Properties of Nanometer-Thick Ferroelectric Films Formed by Chemical Solution Deposition and Crystallization

久留米高専¹, 福岡大理² 〇藤木 凱¹, 村上秀樹¹, 香野淳², 田尻恭之²

Kurume NCT¹, Fukuoka Univ.², [°]Gai Fujiki¹, Hideki Murakmi¹, Atsushi Kohno², Takayuki Tajiri²

E-mail: hideki@kurume-nct.ac.jp

極微細 Si 素子と整合するサイズの強誘 【背景】 電体トランジスタメモリ (FeFET) を実現するため には、強誘電体のナノ薄膜を作製する技術ならびに 薄膜・界面の構造とナノ物性に関する知見が必要不 可欠である。これまでに、福岡大のグループ(T.T.& A.K.)では、化学溶液堆積法を用いて Bi 層状構造強 誘電体 Bi4xLax Ti3O12(BLT)を Si 基板上に直接堆積す る技術を開発し、膜厚約 18nm の薄膜でも強誘電性 を示すことを明らかにしてきた¹⁾。しかし、10nm以 下の薄膜の作製プロセスは確立しておらず、ナノ物 性に関する十分な知見は得られていない。そこで本 研究では、10nm以下のBLT薄膜の成膜プロセス開 発に取り組み、X線反射率(XRR)及びX線回折 (XRD)による薄膜の構造解析、および分光エリプソ メトリ(SE: Spectroscopic Ellipsometry)による光学特 性の分析を行った。また、Metal-Ferroelectric -Semiconductor (MFS)構造の容量-電圧(C-V)特性を評 価した。

【実験】 BLT の主原料として BLT ゾル-ゲル前駆 体溶液、希釈溶媒として酢酸-n-ブチル、Bi 添加剤 として BiO 用 EMOD 溶液を用いた。これらの溶液 の混合比を調整して BLT コート溶液を作製した。 化学洗浄、希フッ酸処理した p-Si(100)基板に BLT コート溶液をスピンコートした。溶液コートした試 料を大気中で150℃、30 分乾燥し、その後 O₂雰囲 気中、550℃で 2h の結晶化を行った。XRR 測定お よび SE 測定は大気中で行った。電気測定を行う試 料には真空蒸着により Au 電極を作製した。

【結果及び考察】 Fig.1 に典型的な XRR の測定結 果とモデル計算・フィッティングを行った結果を示 す。解析の初期段階ではBLTを単層~3層としてモ デル計算を行ったが、測定結果を再現できなかった。 これは BLT が膜厚と同程度のサイズの粒子から成 るためであると考え、BLT を8層に分割したモデル (総膜厚: 5.5nm)でフィッティングを行ったところ、 Fig.1 のように測定結果を良く再現することができ た。解析で得られた質量密度の深さ分布は BLT が ナノサイズの粒子であることを示す結果となった (Fig.1 挿入図)。このことは原子間力顕微鏡(AFM)観 察でも確かめられた。また、BLT/Si界面には、Siの 酸化による SiOx 界面層(約 1.5nm)が形成されている だけでなく、低密度の BLT 層が存在していること が分かった。先行研究において、BLT/Si界面には、 SiOx だけでは説明できないアモルファス層の存在

が見出されていることから、この低密度層は結晶化 していないBLTであると考えられる。

Fig.2 に SE の測定結果から得られた BLT 膜の光 学吸収スペクトラムを示す。吸収の急峻な立ち上が りがバンド間の吸収に対応している。強い吸収は Eg1~3.9eV で生じており、これが直接遷移のバンド ギャップと考えられる。これに加えて低エネルギー 側に光学吸収が観測でき、その実効的な光学バンド ギャップは 3.3eV となっている。これは BLT の膜 中或いは界面層中の欠陥による tail states の存在を 示しており、特に上記の BLT 界面層と深く関わっ ていると考えている。

さらに、MFS 構造の C-V 特性に BLT の強誘電性 によるヒステリシスが観測された。

【謝辞】 本研究の一部は、広島大学大学院先端物 質科学研究科花房宏明博士の協力を得て行われた。 【参考文献】

 A. Kohno and T. Tajiri, Abstract Book of IUMRS-ICAM2017, B2-O28-006, 2017.



Fig 1 Typical XRR profile of the BLT nanofilms. The inset is the model for simulation.



Fig 2 Extinction Coefficient spectrum analyzed by SE.