

Title	イオンビームスパッタ法によるPb系強誘電体薄膜の形成およびその機能性デバイス応用に関する研究
Author(s)	神野, 伊策
Citation	大阪大学, 1998, 博士論文
Version Type	VoR
URL	https://doi.org/10.11501/3144193
rights	
Note	

Osaka University Knowledge Archive : OUKA

<https://ir.library.osaka-u.ac.jp/>

Osaka University

氏名	神野伊策
博士の専攻分野の名称	博士(工学)
学位記番号	第 13557 号
学位授与年月日	平成 10 年 2 月 25 日
学位授与の要件	学位規則第 4 条第 2 項該当
学位論文名	イオンビームスパッタ法による Pb 系強誘電体薄膜の形成およびその機能性デバイス応用に関する研究
論文審査委員	(主査) 教授 岡田 東一 (副査) 教授 尾浦憲治郎 教授 山本 幸佳

論文内容の要旨

本論文は、代表的な機能性セラミックス材料である Pb 系強誘電体をイオンビームスパッタ法により薄膜形成する技術を中心に、その高品質化、高機能化、低温合成、更に焦電性、圧電性に代表される機能性デバイスへの応用に関する研究をまとめたもので、以下の 7 章により構成されている。

第 1 章では、本研究の背景として強誘電体の特徴、特に PbTiO_3 に代表される Pb 系強誘電体の性質およびその応用について述べている。また薄膜化技術として、高真空中で高品質薄膜の低温形成が期待できるイオンビームスパッタ法について、その特徴およびスパッタ機構を明らかにし、Pb 系強誘電体薄膜の形成に適用する意義を述べており、本研究の目的とその重要性を明確にしている。

第 2 章では、耐放射線性赤外線センサ材料として注目されている PbTiO_3 、およびこれに La を添加した (Pb, La) TiO_3 (PLT) 材料について、超薄膜領域での結晶成長技術について述べている。多元イオンビームスパッタ法を用いて PLT 系薄膜を非常に結晶性良く原子層成長させる技術を確立し、膜厚が 1000 Å 以下の超薄膜においても優れた強誘電特性を有することを見いだしている。

第 3 章では、従来より高品質薄膜を形成することが困難であった Pb (Zr, Ti) O_3 (PZT) の薄膜化について述べている。非常に薄い PbTiO_3 もしくは (Pb, La) TiO_3 (PLT) のバッファ層を基板との界面に用いることにより、結晶性が大幅に改善されることを見出している。これにより、マイクロ圧電デバイスや強誘電体メモリを初めとする各種応用へ大きな進展を与えることができる。

第 4 章では、新しい誘電体材料開発手段として Pb 系強誘電体の超格子化を行い、 $[(\text{PbZrO}_3)_n/(\text{PbTiO}_3)_n]_m$ ($n=5$) で示される誘電体超格子薄膜の創製について述べている。積層周期が短いほど誘電率の増加が確認でき、更に強誘電性を有していることが明らかにされ、超格子化による物性制御の可能性を示す結果を得ている。

第 5 章では、イオンや光を用いた Pb 系強誘電体薄膜の低温合成技術を提案している。これまで 600°C 近い高温が必要であった Pb 系強誘電体薄膜の結晶成長について、エキシマレーザを用いた光アシスト法により室温雰囲気下で行うことが可能であることを実証している。この結果、強誘電体薄膜を用いたデバイス作製上の制約を大幅に緩和し、

新しい薄膜プロセスの指針を提示することができる。

第6章では、PLT 超薄膜を用いた焦電型赤外線センサの開発、およびc軸配向PZT薄膜を用いた圧電デバイスの開発について述べている。PLT およびPZT 薄膜の優れた焦電特性および圧電特性を見いだすとともに、Pb系強誘電体薄膜並びに電極・基板材料の微細加工技術を確立し、高機能マイクロデバイス開発についての実現性を示している。

第7章では、本研究によって得られたこれらの成果を総括し、将来展望について述べている。

論文審査の結果の要旨

電子機器の小型化・高機能化が進展するに伴い、機能性強誘電体薄膜を用いたマイクロデバイスの開発が強く求められている。優れた強誘電性を有する PbTiO_3 に代表されるPb系強誘電体の薄膜形成は、rfスパッタ法やCVD法などを中心に試みられているが、サブミクロンの膜厚領域での高品質・高機能性薄膜の作製は未だ困難であり、その物性も不明な点が多い。また、デバイス化に要求される低温形成技術や、薄膜の特長を生かした新材料開発、更に微細加工技術について、現状では多くの課題が残されている。

本研究では、これらの課題を克服するためにイオンビームスパッタ法を用いた薄膜形成プロセスを中心として、Pb系強誘電体材料についてその薄膜形成過程を解明するとともに高品質・高機能性を有した超薄膜形成、更にその低温合成に取り組み、焦電素子・圧電素子の作製に至る高機能性マイクロデバイス実現に向けた指針を与えるものである。本研究によって得られた結果を整理すると以下の通りである。

- (1) 多元イオンビームスパッタ法を用いて、焦電特性に優れたペロブスカイト型 PbTiO_3 、およびPbサイトをLaで置換した $(\text{Pb}, \text{La})\text{TiO}_3$ (PLT) 薄膜を基板温度約 400°C の低温で原子層成長させる技術を確立し、膜厚が 1000 \AA 以下でも優れた誘電特性を有していることを実証している。
- (2) これまで単結晶薄膜を得ることが困難であった $\text{Pb}(\text{Zr}, \text{Ti})\text{O}_3$ (PZT) 材料について、その薄膜成長過程を解明することにより超薄膜化する事を可能としている。Pt/MgO 基板上では完全にc軸配向させた単結晶単一配向PZT 薄膜を実現し、膜厚約 600 \AA においても良好な強誘電特性を有することを明らかにしている。更に、TiサイトをすべてZrで置換した反強誘電性 PbZrO_3 の薄膜化に成功し、薄膜においても反強誘電特性が維持されることを確認している。
- (3) 新機能性薄膜材料として期待される、 $[(\text{PbZrO}_3)_n/(\text{PbTiO}_3)_n]_m$ 誘電体超格子薄膜の形成技術を確立させている。X線回折による測定結果および計算結果から、形成した超格子薄膜は積層周期 $n=5$ ユニットセル、約 20 \AA の非常に短い積層周期においても設計通りの構造を有しており、更に PbZrO_3 層の上には PbTiO_3 層がa軸に配向していることを明らかにしている。電気特性の分析から、積層周期が短いほど誘電性・強誘電性の増加が確認でき、従来の固溶体材料とは異なる新しい材料開発法として期待できる。
- (4) XeCl エキシマレーザを基板に照射することにより、ヒータによる基板加熱を行うことなく室温雰囲気下でPb系強誘電体薄膜を成長させることを実現させている。この技術によって、これまで不可能であった有機高分子材料など熱に弱い材料を基板として用いることが可能なことから、デバイス応用における制約を大幅に緩和できる。
- (5) 高品質Pb系強誘電体薄膜を用いてマイクロ機能性デバイスの作製を行っている。多元イオンビームスパッタ法で形成したPLT 薄膜は、約 1000 \AA の膜厚においても焦電係数 $\gamma \sim 4.0 \times 10^{-8} \text{ C/cm}^2\text{K}$ の優れた焦電特性を有することを見出している。更に、圧電素子応用として完全にc軸配向したPZT 薄膜を用いて、片持ちおよび両持ち梁構造を有したマイクロ圧電素子の作製技術を確立させている。このマイクロ圧電素子を用いてPZT 薄膜の圧電特性を評価した結果、圧電定数 $d_{31} \sim 100 \times 10^{-12} \text{ m/V}$ の優れた圧電性を有していることを明らかにしている。

以上、本研究によってこれまで高品質化が困難であったPb系強誘電体薄膜を非常に薄い膜厚においても結晶性良

く成長させる技術を確立し、その優れた特性を引き出すことに成功している。この結果、これら Pb 系強誘電体薄膜を
焦電・圧電性を利用したマイクロデバイスとして応用するための基礎となる技術を確立し、各種電子機器用機能性デ
バイス実現に向けて大きな進展を与える事ができる。更に、Pb 系強誘電体は優れた耐放射線性を有することから原子
力産業用の安全監視センサ実現への展開も大いに期待できることから、原子力工学および電子工学の発展に寄与す
ることが大きい。よって本論文は博士論文として価値あるものとして認める。