

Title	ECRプラズマスパッタリングによる高品質SrTiO <sub>3</sub> 薄膜の低温合成
Author(s)	馬場, 創
Citation	大阪大学, 2001, 博士論文
Version Type	VoR
URL	<a href="https://hdl.handle.net/11094/2488">https://hdl.handle.net/11094/2488</a>
rights	
Note	

*Osaka University Knowledge Archive : OUKA*

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

Osaka University

氏名	馬場 創
博士の専攻分野の名称	博士(工学)
学位記番号	第 16570 号
学位授与年月日	平成13年11月28日
学位授与の要件	学位規則第4条第1項該当 工学研究科マテリアル応用工学専攻
学位論文名	ECR プラズマスパッタリングによる高品質 SrTiO <sub>3</sub> 薄膜の低温合成
論文審査委員	(主査) 教授 三宅 正司  (副査) 教授 野城 清    教授 松尾 伸也    教授 山本 雅彦 教授 森 博太郎

### 論文内容の要旨

次世代の Dynamic Random Access Memory (DRAM) や Monolithic Microwave Integrated Circuits (MMICs) のキャパシタ材料として、ペロブスカイト型酸化物薄膜を用いることは非常に有効であり、数々の研究が行われている。しかし、従来のプロセスでは合成に900K以上の成膜中の基板加熱および成膜後の後熱処理が必要不可欠であり、熱による素子のダメージや相互拡散層の形成を抑制することは困難であった。

そこで本研究では、低いガス圧で高励起・高密度プラズマを容易に形成することができる新しく開発されたミラー閉じ込め型電子サイクロトロン共鳴 (ECR) プラズマスパッタリング装置を用いて、結晶性チタン酸ストロンチウム (SrTiO<sub>3</sub>) 薄膜の従来より低温での合成を試みるとともに、プラズマ特性と膜特性の関係を明らかにした。さらには後熱処理プロセスとして、従来のような外部加熱方式ではない電磁波照射を用いたプロセスを提案し、その有効性も明らかにした。各章の内容は以下の通りである。

第1章では、序論として本研究の背景と研究目的について述べた。

第2章では、開発されたミラー閉じ込め型 ECR プラズマスパッタリング装置の内容ならびに SrTiO<sub>3</sub> 薄膜の分析、評価方法について述べた。

第3章では、ミラー閉じ込め型 ECR プラズマスパッタリングのプラズマ特性を調べた。その結果、通常の発散型 ECR プラズマスパッタリング法に比べて電子温度がより高く、基板近傍のプラズマ密度が1桁ほど高くなって、より高励起・高密度のプラズマが得られた。また、成膜時の基板温度も450K以下に抑えられることを示した。

第4章では、ミラー閉じ込め型 ECR プラズマスパッタリング法を用いて Si 基板ならびに Pt 多層膜基板上に、Ar 雰囲気あるいは Ar/O<sub>2</sub> 混合雰囲気プラズマ中で SrTiO<sub>3</sub> 薄膜を合成した。そして450K以下の基板温度で、Pt 多層膜基板上に Ar/O<sub>2</sub> 混合雰囲気中で成膜した場合、成膜したままの状態でも十分結晶化されることを示した。さらに、SrTiO<sub>3</sub> 薄膜の結晶化には、基板へのイオン照射を抑制する方が効果的であることを示した。

第5章では、Si 基板上に Ar 雰囲気中で SrTiO<sub>3</sub> 薄膜を成膜した後、電気炉による後熱処理を行った。その結果、これまでの研究より200K以上低い後熱処理温度で結晶化できることを示した。また、後熱処理プロセスとして28GHzのミリ波照射を利用した場合には、これまでの研究より300K以上低い温度で結晶化できた。さらにキャパシタを構成した Pt 多層膜基板上の SrTiO<sub>3</sub> 薄膜に対する電気測定の結果、ミリ波照射による573Kでの後熱処理により、SrTiO<sub>3</sub> の単結晶の値に近い250~270という大きな比誘電率が得られることを示した。

### 論文審査の結果の要旨

次世代の Dynamic Random Access Memory (DRAM) や Monolithic Microwave Integrated Circuits (MMICs) のキャパシタ材料として有効な、チタン酸ストロンチウム ( $\text{SrTiO}_3$ ) 薄膜を低温で合成するプロセスが非常に重要になっている。本論文では、新しく開発された低いガス圧力で高励起・高密度プラズマを容易に形成することができるミラー閉じ込め型電子サイクロトロン共鳴 (ECR) プラズマスパッタリング装置を用いて、結晶性  $\text{SrTiO}_3$  薄膜の従来より低温での合成を試みるとともに、プラズマ特性と膜特性の関係を明らかにしている。さらには膜の後熱処理プロセスとして、従来のような外部加熱方式ではない電磁波照射を用いる方法を提案し、その有効性も明らかにしている。

本論文の成果を要約すると次の通りである。

- (1) ミラー閉じ込め型 ECR プラズマスパッタリング法において、イオンフラックスとスパッタ粒子フラックスは独立に制御できるパラメータであることを明らかにしている。
- (2) Ar プラズマ中で  $\text{SrTiO}_3$  薄膜を Si 基板上に成膜したとき、膜は非晶質であるが、これを電気炉により後熱処理すると、従来より 200K 以上も低い温度で結晶化できることを明らかにしている。
- (3) Ar/ $\text{O}_2$  混合プラズマ中で Pt 多層膜基板上に成膜したとき、この  $\text{SrTiO}_3$  薄膜は基板温度 450K 以下で十分に結晶化できることを明らかにしている。
- (4) 薄膜の結晶化のための後熱処理プロセスとして採用したミリ波照射は極めて有効であり、結晶化温度の低温化のみならず、電気特性改善に対しても大きな役割を果たすことができることを明らかにしている。
- (5) Ar/ $\text{O}_2$  混合プラズマ中で Pt 多層膜基板上に成膜した  $\text{SrTiO}_3$  薄膜に対して、ミリ波照射による 573K という低温での後熱処理を施すことで、バルク値並みの比誘電率を得ることができることを明らかにしている。
- (6) 以上の結果から、ミラー閉じ込め型 ECR プラズマスパッタリング法による成膜プロセス、ならびに電磁波照射によるポストアニーリングプロセスを利用することは、 $\text{SrTiO}_3$  薄膜の低温合成を可能にし、その他の材料の低温合成にも非常に有効なプロセスであるという結論を得ている。

以上の通り、本研究はミラー閉じ込め型 ECR プラズマスパッタリングによる高品質  $\text{SrTiO}_3$  薄膜の低温成膜を、材料工学とプロセス学の両方の立場から系統的に明らかにすると共に、成膜後の熱処理に関しても従来にない電磁波を用いたプロセスを提案し、これら 2 つの斬新なプロセスを利用することで、実用に供される上で必要な優れた膜特性が得られることを実証している。またこのような新しい知見は  $\text{SrTiO}_3$  のみならず、他の種々のペロブスカイト型薄膜の低温合成にも応用でき、工学的に寄与するところが大きい。よって本論文は博士論文として価値あるものと認める。