



Title	ゾルゲル法によるPb(Zr, Ti)O <sub>3</sub> 強誘電体薄膜の作製とその物性に関する研究
Author(s)	牧, 一誠
Citation	大阪大学, 2004, 博士論文
Version Type	VoR
URL	<a href="https://hdl.handle.net/11094/2681">https://hdl.handle.net/11094/2681</a>
rights	
Note	

*The University of Osaka Institutional Knowledge Archive : OUKA*

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

The University of Osaka

氏 名	まき 牧 一 誠
博士の専攻分野の名称	博 士 (工 学)
学 位 記 番 号	第 19065 号
学 位 授 与 年 月 日	平成 16 年 11 月 24 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	ゾルゲル法による $\text{Pb}(\text{Zr}, \text{Ti})\text{O}_3$ 強誘電体薄膜の作製とその物性に関する研究
論 文 審 査 委 員	(主査) 教 授 掛下 知行 (副査) 教 授 山本 雅彦    教 授 森 博太郎    助教授 片山 巖

### 論 文 内 容 の 要 旨

本論文は、種々のゾルゲル液を用いて  $\text{Pb}(\text{Zr}, \text{Ti})\text{O}_3$  (PZT) 強誘電体薄膜を作製し、それらの組織ならびに誘電特性等について系統的に調査するとともに、得られた結果を基に優れた誘電特性を有する PZT 強誘電体デバイスの開発と展望について論じたものであり、以下の 8 章から構成されている。

第 1 章では、本研究の背景、目的および論文の構成について述べた。

第 2 章では、FeRAM (Ferroelectric Random Access Memory) を高集積化する際に問題となっているロゼッタ構造生成を阻止する方法について検討した。その結果、適切なゾルゲル液を用いることによりロゼッタ構造を阻止できることを明らかにし、この液を用いて作製した膜厚 200 nm の PZT 薄膜は、〈111〉配向し微細で均一な組織となることを見出した。

第 3 章では、FeRAM の駆動電圧の低減を図るために、PZT 膜の薄膜化について検討した。その結果、薄膜化に適したゾルゲル液を見出し、この液を用いることにより 1.5 V で駆動できる膜厚 60-120 nm の PZT 膜の作製に成功した。

第 4 章では、ディスプレイ用デバイスや論理回路を内蔵した FeRAM を実現する際に問題となっている PZT 薄膜の結晶化温度の低下方法について検討した。その結果、熱処理条件を改善することにより結晶化温度を下げられることを明らかにし、この改善した熱処理法により 400℃から 450℃の低温において良好な誘電特性を有する PZT 薄膜の作製に成功した。

第 5 章では、低温で結晶化させた PZT 膜の誘電特性をさらに向上させるために、誘電特性に及ぼす電極材料の影響について検討した。その結果、 $\text{SrRuO}_3$  電極を用いると誘電特性がより向上することを明らかにし、この電極を用いて 450℃で結晶化することにより、高い残留分極と  $10^{11}$  回の書き換えにも劣化しない優れた特性を有する PZT 膜の作製に成功した。

第 6 章では、アクチュエータ用膜として必要な厚さを持つ PZT 膜を効率よく作製する方法について検討した。その結果、適切なゾルゲル液を用いることにより臨界膜厚を厚くできることを明らかにし、この液を用いることにより 1 回の塗布で 0.9  $\mu\text{m}$  の厚さをもつクラックの無い PZT 単相膜を作製することに成功した。

第 7 章では、厚塗り用ゾルゲル液から得られた PZT 膜の誘電特性をさらに向上させるために、誘電特性に及ぼす PZT 膜の緻密化温度の影響について検討した。その結果、従来の温度よりも低い温度 (850℃) で緻密化することを

明らかにし、この温度で緻密化した PZT 膜は、それを施さない PZT 膜の場合と比べ、残留分極が 2 倍、抗電界が半分、比誘電率は 3.5 倍の優れた誘電特性を示した。

第 8 章では、本研究で得られた成果をまとめ総括とした。

## 論文審査の結果の要旨

本論文は、種々のゾルゲル液を用いて  $\text{Pb}(\text{Zr}, \text{Ti})\text{O}_3$  (PZT) 強誘電体薄膜を作製し、それらの組織ならびに誘電特性等について系統的に調査するとともに、得られた結果を基に優れた誘電特性を有する強誘電体メモリならびに圧電アクチュエータ用 PZT 強誘電体デバイスの開発と展望について論じたものである。得られた研究成果は以下の通りである。

(1) 強誘電体メモリを高集積化する際に問題となっているロゼッタ構造の生成を阻止する適切なゾルゲル液を見出している。この液を用いて作製した膜厚 200 nm の PZT 薄膜は、〈111〉配向し微細で均一な組織となるとの知見を得ている。

(2) 強誘電体メモリの駆動電圧の低減を図るために、PZT 膜の薄膜化について検討し、薄膜化に適したゾルゲル液を見出している。この液を用いることにより 1.5 V で駆動できる膜厚 60-120 nm の PZT 膜の作製に成功している。

(3) 強誘電体メモリ用 PZT 薄膜の結晶化温度の低下方法について検討し、熱処理条件を改善することにより結晶化温度を下げられるとの知見を得ている。この改善した熱処理法により 400°C から 450°C の低温で良好な誘電特性を有する PZT 薄膜の作製に成功している。

(4) 低温で結晶化させた強誘電体メモリ用 PZT 膜の誘電特性をさらに向上させるために、誘電特性に及ぼす電極材料の影響について検討し、 $\text{SrRuO}_3$  電極を用いると誘電特性がより向上するとの知見を得ている。

(5) 圧電アクチュエータ用の厚い膜厚をもつ PZT 膜を効率よく作製する方法について検討し、それに適したゾルゲル液を見出している。この液を用いることにより 1 回の塗布で 0.9  $\mu\text{m}$  の厚さをもつクラックの無い PZT 単相膜を作製することに成功している。

(6) 圧電アクチュエータ用 PZT 厚膜の誘電特性に及ぼす緻密化温度の影響について検討し、従来の熱処理温度よりも低い温度 (850°C) で緻密化することを見出している。この温度で緻密化した PZT 膜は、それを施さない PZT 膜の場合と比べ、残留分極が 2 倍、抗電界が半分、比誘電率は 3.5 倍の優れた誘電特性を示すとの知見を得ている。

以上のように、本論文は強誘電体メモリならびに圧電アクチュエータ用 PZT 膜をゾルゲル法により作製する際の問題点とその解決方法を明確にしており、得られた PZT 膜は、従来品を凌駕する優れた性能を発揮している。したがって、学術的にも実用的にも極めて重要な知見を多数含んでおり、材料工学の発展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。