



|              |  |
|--------------|--|
| Title        | STUDIES ON PLD GROWTH OF CONDUCTIVE OXIDE RuO <sub>2</sub> AND SrRuO <sub>3</sub> THIN FILMS AND CHARACTERIZATION OF ELECTRICAL PROPERTIES   |
| Author(s)    | 方, 暁東  |
| Citation     | 大阪大学, 2000, 博士論文   |
| Version Type |  |
| URL          | <a href="https://hdl.handle.net/11094/42185">https://hdl.handle.net/11094/42185</a>  |
| rights       |  |
| Note         | 著者からインターネット公開の許諾が得られていないため、論文の要旨のみを公開しています。全文のご利用をご希望の場合は、 <a href="https://www.library.osaka-u.ac.jp/thesis/#closed">＜a href="https://www.library.osaka-u.ac.jp/thesis/#closed"&gt;https://www.library.osaka-u.ac.jp/thesis/#closed</a> >大阪大学の博士論文について</a>をご参照ください。 |

*The University of Osaka Institutional Knowledge Archive : OUKA*

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

The University of Osaka

|               |  |
|---------------|--|
| 氏 名           | 方 曉 東  |
| 博士の専攻分野の名称    | 博 士 (工 学)  |
| 学 位 記 番 号     | 第 1 5 5 0 0 号  |
| 学 位 授 与 年 月 日 | 平成12年 3 月 24 日   |
| 学 位 授 与 の 要 件 | 学位規則第4条第1項該当<br>基礎工学研究科物理系専攻   |
| 学 位 論 文 名     | STUDIES ON PLD GROWTH OF CONDUCTIVE OXIDE $\text{RuO}_2$<br>AND $\text{SrRuO}_3$ THIN FILMS AND CHARACTERIZATION OF<br>ELECTRICAL PROPERTIES<br>(酸化物導電性薄膜 $\text{RuO}_2$ と $\text{SrRuO}_3$ の PLD 成長とその電気的特性<br>の解析に関する研究) |
| 論 文 審 査 委 員   | (主査)<br>教 授 小林 猛<br><br>(副査)<br>教 授 奥山 雅則    講 師 作田 健  |

### 論 文 内 容 の 要 旨

次世代のメモリーなどへの応用をねらった酸化物誘電体の研究が進んでいるが、それにあわせて、この誘電体に適した電極材料の研究も必要不可欠である。ルテニウム酸化物 ( $\text{RuO}_2$  および  $\text{SrRuO}_3$ ) 薄膜は化学的に安定で良い電気特性をもっているため、この電極材料として有望視されている。また、レーザーアブレーション成膜法は、酸素雰囲気中で酸化物薄膜を作製するのに適した方法であり、プロセス技術の進歩が望まれている。

本研究ではまず、超高速フレーミングストリークカメラをもちいて、レーザーアブレーション・プロセスのリアルタイム観測を行った。レーザーアブレーション・プラズマ中の各励起原子の発光波長に対応したフィルターを用いることによって、それぞれの励起原子の空間分布や運動エネルギーなどを解析し、レーザーアブレーションのメカニズムの解明を行った。本研究において初めて、フレーミングストリークカメラ画像から統計的な解析を行うという、レーザーアブレーション・プロセス研究の一つの良い方法を提示した。

次に、レーザーアブレーション成膜法を用いて成長した  $\text{RuO}_2$  薄膜の結晶性及び光学・電気特性の成膜温度依存性を調べた。 $\text{MgO}$  基板上に  $700^\circ\text{C}$  で成膜した薄膜は室温で  $39\mu\Omega\cdot\text{cm}$  というバルク材料に匹敵する導電率を得た。また  $\text{RuO}_2$  薄膜を下部電極とした  $\text{SrBiTiO}/\text{RuO}_2/\text{MgO}$  構造を製作し、Pt 電極上に形成したものより高い誘電率の  $\text{SrBiTiO}$  薄膜を得ることに成功した。

また、レーザーアブレーションによる  $\text{SrRuO}_3$  薄膜の低温成長を試み、電子デバイスへ応用可能な薄膜を  $400^\circ\text{C}$  という低温で作製することに成功した。 $\text{SrRuO}_3$  薄膜を低温で成長することは、 $\text{SrRuO}_3/\text{SrTiO}_3/\text{SrRuO}_3$  構造等のキャパシタにおいて  $\text{SrTiO}_3$  薄膜の誘電特性劣化を防止するためにも有利である。さらに、 $\text{Al}/\text{SrTiO}_3/\text{SrRuO}_3$  構造における  $\text{SrTiO}_3$  誘電特性と比較することにより、 $\text{SrRuO}_3$  の仕事関数も得ることができた。

### 論 文 審 査 の 結 果 の 要 旨

半導体メモリーチップの大集積化に伴い面積当容量の著しく大きなキャパシターの実現が望まれるようになった。さらに次世代強誘電メモリーへの期待が日毎に高まっている。これらの研究開発にとって酸化物導体薄膜は不可欠なものとなった。酸化物導体は活性領域（高分極薄膜、強誘電薄膜）と整合性の高い電極層の働きをする。審査論文では

$\text{RuO}_2$ 、 $\text{SrRuO}_3$  導電性薄膜を研究対象にとりあげて、パルス・レーザー・デポジッション (PLD) 法を使った薄膜成長機構に関する基礎研究、薄膜物性の研究、そして強誘電薄膜キャパシターの特性評価に関する系統的な研究をおこなっている。

PLD 法はまだ新しい技術のため、未知の内容が多く、薄膜成長機構の理解のためにも科学しなければならない要素が多数ある。論文では、まず、 $\text{RuO}_2$  の PLD 成長機構の研究で大きな成果を得ている。Ru および O 原子がレーザーアブレーションされて飛行するダイナミックスが論じられる。これまで PLD の中で原子はマックスウエル分布則に従わないとされてきた。申請者は超高速フレーミング・ストリークカメラを使い、さらにレンズの焦点深度を考慮した画像の解析をおこなうことにより PLD におけるアブレート粒子の輸送過程の解析方法が提案され、マックスウエル分布則にしたがっていることを初めて明かにした。従来の誤った考えを正したという意味で意義深い。また、ターゲットのアブレーション過程が熱モデルに従うことも実験的に証明した。

次世代エレクトロニクスへの展開を鑑みて酸化物導体薄膜の低温 PLD 成長に関する研究がおこなわれた。 $\text{RuO}_2$ 、 $\text{SrRuO}_3$  薄膜ともに  $400^\circ\text{C}$  を境に高温側では緩やかに結晶性が向上、低温側では急激に劣化することが判明した。ただし  $350^\circ\text{C}$  の低温まで RHEED には結晶秩序が確認された。成長温度と共にキャリア密度が増大して伝導率が向上した。移動度には変化が殆ど見られないことも興味ある結果である。なお、 $400^\circ\text{C}$  の PLD エピタキシは世界の低温成長の記録である。 $\text{SrRuO}_3/\text{STO}/\text{SrRuO}_3$  構成キャパシターの誘電率-電圧特性を  $\text{SrRuO}_3/\text{STO}/\text{Al}$  の特性と比較する新しい計測法を使い  $\text{SrRuO}_3$  の仕事関数を見積もることに成功した。

効果の実証として  $\text{SrBi}_4\text{Ti}_4\text{O}_{15}/\text{RuO}_2$  系の平行平板キャパシターを試作して満足のいく容量値をデモンストレートした。

以上の内容は  $\text{RuO}_2$ 、 $\text{SrRuO}_3$  導電性薄膜や PLD の科学技術に関する先駆的な研究成果であると同時に、酸化物エレクトロニクスの今後の進展に多大な貢献をするものであり、博士 (工学) の学位論文として価値のあるものと認める。