

機関番号：13301

研究種目：若手研究（B）

研究期間：2009～2010

課題番号：21760233

研究課題名（和文） 極限環境動作を目指した強誘電体不揮発性メモリデバイスの開発

研究課題名（英文） Development of advanced ferroelectric random access memory devices in more extensive region

研究代表者

川江 健 (KAWAE TAKESHI)

金沢大学・電子情報学系・講師

研究者番号：30401897

研究成果の概要（和文）：

極限環境動作を目指した新規強誘電体不揮発性メモリデバイスの実現を目指し、ワイドギャップ半導体ダイヤモンド上に高キュリー温度非鉛強誘電体 BiFeO₃(BFO)を堆積した積層構造の作製と特性評価を行った。ボロン添加した導電性ダイヤモンド層上に BFO が結晶化可能である事および良好な強誘電性を示す事が確認された。また、同構造試料の高温特性を検証したところ、最大 200℃まで安定的に動作可能である事が確認された。

以上の結果より、本研究課題が掲げる BFO/ダイヤモンド積層構造を用いた極限環境動作型強誘電体メモリデバイスの実現に向けて、当該構造の形成プロセスの確立および今後の展開に対する有用性が立証されたものと言える。

研究成果の概要（英文）：

As an integration of Pb-free ferroelectrics with wide-gap semiconductors, (Pr, Mn)-codoped BiFeO₃ (BPFM)/B-doped diamond layered structure was fabricated on a diamond substrate. B-doped diamond films were homoepitaxially grown on diamond substrate using microwave plasma-enhanced chemical vapor deposition. Then, BPFM thin films were deposited on the B-doped diamond layer by pulsed laser deposition. BPFM thin films were polycrystalline with random orientations on the B-doped diamond layer. Fabricated heterostructure showed saturated P-E hysteresis curves with $2P_r$: 90 μ C/cm² and $2E_c$: 740kV/cm for maximum electric field of 900kV/cm at room temperature. P-E hysteresis curves without influences of leakage current were observed even when the measurement temperature was increased to 200 °C.

交付決定額

(金額単位：円)

	直接経費	間接経費	合計
2009年度	2,300,000	690,000	2,990,000
2010年度	1,200,000	360,000	1,560,000
総計	3,500,000	1,050,000	4,550,000

研究分野：工学

科研費の分科・細目：電気電子工学・電子・電気材料工学

キーワード：強誘電体不揮発性メモリ、非鉛強誘電体、ワイドギャップ半導体

1. 研究開始当初の背景

代表的な不揮発性メモリとして強誘電体の自発分極特性を用いた FeRAM が知られ、

IC タグの爆発的な普及と共に各種流通業・交通機関における応用範囲が益々広がっている。一方、昨今の国際的な宇宙開発・研究の

激化、食品偽装問題対処や医療分野への応用といった学術・産業における FeRAM の活動範囲がより過酷な環境 (200℃以上の高温や放射線存在下等) に早晚移行していく事が予想される。

FeRAM は DRAM のキャパシタを強誘電体に置き換えた 1Tr-1C 構造から成る。しかしながら、強誘電体の自発分極は放射線耐性を有するものの、現在の FeRAM に使用される材料は強誘電体・半導体共に上記のような高温を含めた動作環境を前提としたものではなく、優れた物性値を持つ材料を組み合わせた極限環境下で動作可能な新規 FeRAM デバイスの開発は急務であると言える。

当該分野の閉塞的な現状の打破と将来の発展を目指し、本研究では高温動作を克服した極限環境における FeRAM 特性が期待される材料として、非鉛強誘電体 BiFeO₃ (高キュリー温度:830℃) とダイヤモンド半導体 (高耐圧:10MV/cm・高熱伝導率:20W/cmK に由来した高温動作) を提案する。さらに両材料のデバイス応用に関連した研究・開発に従事してきた経験を活かし、世界に先駆けた両材料の融合による新規 FeRAM デバイスの開発に取り組む。

2. 研究の目的

本研究では、(1) 非鉛強誘電体 BiFeO₃ および導電性ダイヤモンドの積層膜構造によるキャパシタデバイスの作製、(2) 基礎デバイス構造を用いた高温環境動作 FeRAM の実現に向けた基本動作の確認および基礎物性に関する評価・検証に取り組む事を目的とする。

3. 研究の方法

マイクロ波プラズマ CVD 装置を用いて、原料ガスをメタン、不純物添加ガスをトリメチルボロンとして水素プラズマ中でダイヤモンド単結晶基板上にダイヤモンド薄膜を作製した。その後、ボロン添加ダイヤモンド薄膜をホモエピ成長させた試料に対し、パルスレーザー堆積 (PLD) 法による BiFeO₃ 薄膜の作製を行った。なお、PLD 用ターゲットはリーク電流抑制を目的に Pr と Mn を同時置換した BiFeO₃(BPFM)の酸化物混合粉末ターゲットを用いた。

BPFM/ボロン添加ダイヤモンド積層構造上に上部電極を形成し、電気特性評価用キャパシタデバイスを作製した。このキャパシタデバイスを用いて試料の電気特性を評価した。また、実際のデバイス利用を考慮し、室温～250℃の温度領域におけるリーク電流・強誘電特性の評価を行った。

4. 研究成果

(100)ダイヤモンド単結晶基板上での積層構造試料の作製と評価

作製された試料の XRD パターンを図 1 に示す。BPFM(110)及び(111)ピークが観測され、バッファ層の導入を行わずにボロン添加ダイヤモンド上でBPFMが結晶化可能である事が確認出来る。

同試料の分極-電界 (P-E) 特性において、明瞭な強誘電性が確認された (図 2)。また、同構造の電気特性に関して、ボロン添加ダイヤモンド層の不純物添加量により動作温度に大きな差異が生じる事を確認した。この原因として、ボロン添加ダイヤモンド層の導電性がBPFM薄膜に対する実効的な印加電界を変位させる事に由来するものと考えられる。

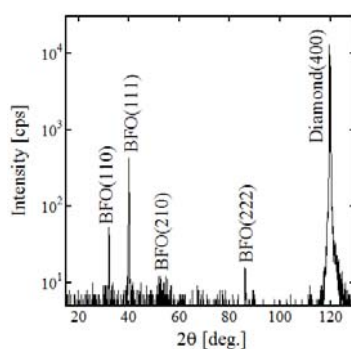


図 1 試料の XRD パターン

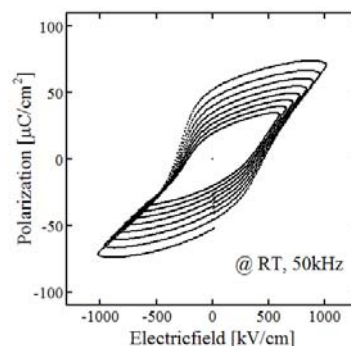


図 2 試料の P-E 特性

(111)ダイヤモンド単結晶基板上での積層構造試料の作製と評価

ボロン添加ダイヤモンド層の導電性および表面平坦性向上を目的とし、ボロン取り込み効率に優れる(111)ダイヤモンド基板上に当該構造を形成し、特性評価を行った。試料の XRD から、(100)基板上の試料と同様、ランダム配向 BPFM の結晶化が確認された (図 3)。

また、P-E 特性に関して室温で明瞭な強誘電性ヒステリシス(900 kV/cm印加時における抗電界 E_c : 370kV/cm、残留分極 P_r : 45 $\mu\text{C}/\text{cm}^2$) が観測された事から (図 3)、室温～250℃の温度範囲における特性評価を行った。図 4 に

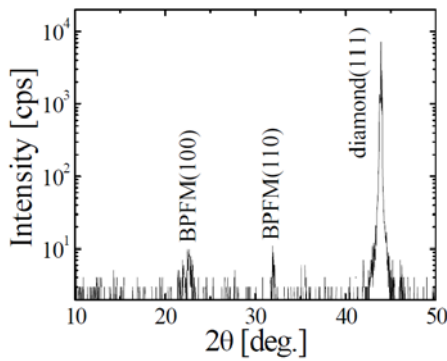


図3 試料の XRD パターン

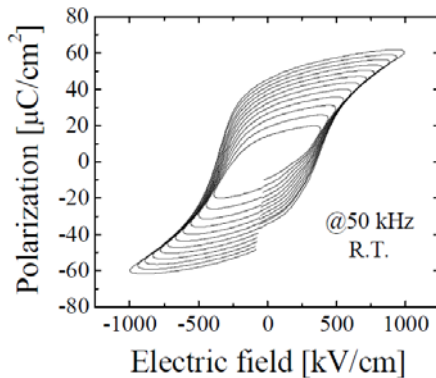


図4 試料の P-E 特性

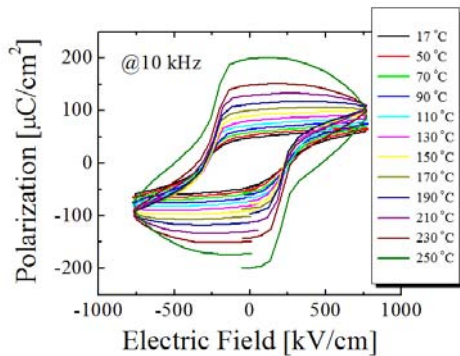


図5 P-E 特性の温度依存性

P-E 特性の温度依存性を示す。温度上昇に伴い P_r は増加、 E_c が減少する傾向が確認され、約 200°C までにリーク電流の影響は殆ど観測されなかった。一方で、高温域における強誘電性の向上に関して、温度増加に伴うリーク電流の影響による見かけ上の分極値増加も懸念される事から、残留分極値およびリーク電流の温度依存性を検証した。

図5に試料の最大分極値 P_m の温度依存性を示す。 P_m は室温から緩やかに上昇した後、約 200°C で急激に上昇している事が分かる。観測された P_m の活性化エネルギーを算出したところ、それぞれの温度域において 58.9meV (室温~180°C)、450.9meV (235~250°C) となった。

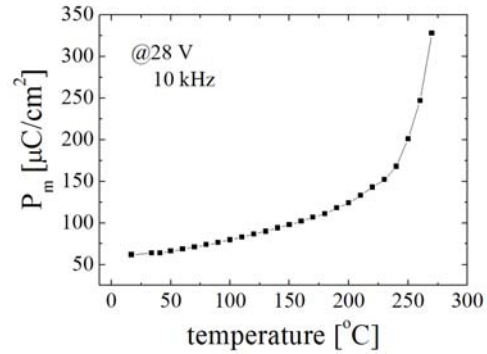


図6 P_m 値の温度依存性

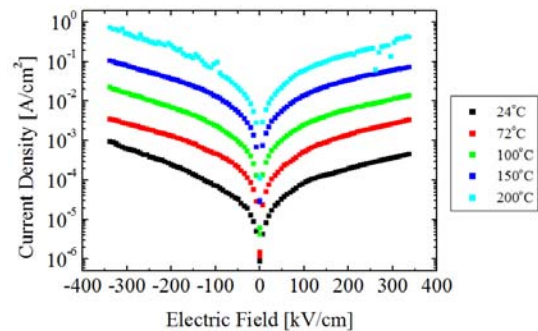


図7 J-E 特性の温度依存性

また、図6に示す J-E 特性の温度依存性からリーク電流の活性化エネルギーを算出したところ、印加電界により差異はあるものの、全電界域において 440~470meV であった。以上の事より、200°C 以上における P_m の急激な増加は、ほぼ同一の活性化エネルギーが算出されたリーク電流に由来するものと推察される。一方、200°C 未満で観測された P_m の増加は、リーク電流に比べて大幅に小さなエネルギーである事より、BPFM の分極ドメインの反転動作に対するピン止め中心のポテンシャルであると考えられる。

まとめ

以上の結果より、本研究課題が掲げる BFO/ダイヤモンド積層構造を用いた高温動作型 FeRAM 用メモリセル創成に対し、良好な結晶性と強誘電性を有する BFO をダイヤモンド上に形成可能である事に加え、同構造の約 200°C までにおける安定動作を実現した。

今後の課題として、今回確認された上限温度 200°C を上回る高温域での安定動作に向けた取り組みが求められる。これを実現する為、分極反転に要する活性化エネルギーの低減を基軸とした材料開発や界面形状の最適化に加え、更なるリーク電流抑制策の模索が必須と言える。

5. 主な発表論文等

(研究代表者、研究分担者及び連携研究者には下線)

[雑誌論文] (計 1 件)

① T. Kawae, Y. Hori, T. Nakajima, H. Kawasaki, N. Tokuda, S. Okamura, Y. Takano, and A. Morimoto

Structure and Electrical Properties of (Pr, Mn)-codoped BiFeO₃/B-doped Diamond Layered Structure

Electrochemical and Solid-State Letters 14 (2011) G31

査読有

[学会発表] (計 3 件)

① T. Kawae, Y. Hori, T. Nakajima, H. Kawasaki, N. Tokuda, S. Okamura, Y. Takano, and A. Morimoto

Structural and electrical properties of (Pr, Mn)-codoped BiFeO₃/B-doped diamond heterostructure

Accepted to 9th International Meeting of the Pacific Rim Ceramic Societies conference (PACRIM9)

2011.7.16, Cairns Convention Centre, (Australia Cairns)

②川崎寛樹、芳里有司、川江 健、中嶋宇史、徳田規夫、高野義彦、岡村総一郎、森本章治
BiFeO₃/(111)diamond 積層構造の作製と強誘電特性評価

第 58 回 応用物理学関係連合講演会

2011 年 3 月 24 日、東日本大震災のため発表資料の DVD 配布により発表成立

③芳里有司、川崎健太郎、川江 健、高野義彦、森本章治

BiFeO₃/ボロン添加ダイヤモンド積層膜の作製と評価

第 71 回 応用物理学学会学術講演会

2010 年 9 月 15 日、長崎大学 (長崎県)

[その他]

「高性能メモリーに新素材」

北國新聞 (2011 年 4 月 21 日付 掲載)

6. 研究組織

(1) 研究代表者

川江 健 (KAWAE TAKESHI)

金沢大学・電子情報学系・講師

研究者番号：30401897

(2) 研究分担者

該当なし

(3) 連携研究者

該当なし