

Improvement of fatigue properties in ferroelectric nonvolatile memory prepared by pulsed laser ablation

メタデータ	言語: jpn 出版者: 公開日: 2017-10-05 キーワード (Ja): キーワード (En): 作成者: Morimoto, Akiharu メールアドレス: 所属:
URL	http://hdl.handle.net/2297/47348

This work is licensed under a Creative Commons Attribution-NonCommercial-ShareAlike 3.0 International License.



レーザアブレーション法による
強誘電体不揮発メモリにおける
疲労特性の改善

課題番号：06650010

平成7年度科学研究補助金
(一般研究(C))
研究成果報告書

平成8年3月

研究代表者 森本 章治
(金沢大学工学部助教授)

研究実績の概要

レーザアブレーション法を用いた本研究の目的は、不揮発メモリの疲労特性の機構解明とその改善である。不揮発メモリとしては金属／強誘電体／金属（MFM）型メモリと金属／強誘電体／絶縁体／半導体（MFIS）FET型メモリがあるが、本研究では、いずれについても新しい電極、新しい絶縁体層を提案しメモリセルを構成した。また、一部高誘電率誘電体薄膜として注目されている $\text{Ba}_x\text{Sr}_{1-x}\text{TiO}_3$ についても研究を行った。

MFM型メモリでは 我々が $\text{Pb}(\text{Zr}_{1-x}\text{Ti}_x)\text{O}_3$ (PZT) 用電極として提案している Ni 合金を用いて PZT 不揮発メモリを構成し、疲労の周波数特性を調べた。その結果、疲労特性において大きな周波数依存性を有することが明かとなった。これは Ni 合金上の PZT は結晶性があまり良くなく、抗電界が大きくスイッチング速度が小さくなっているためと考えられる。また、この疲労は電極との界面から PZT 側へ均一に進行する疲労モデルで説明された。さらに、本メモリはスイッチング電荷量は小さいものの、周波数 50kHz において 10^{10} 回のスイッチング後も初期の電荷量を失わず高い疲労耐性を示した。結晶性と疲労特性の関係を明らかにするため配向性の異なる $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_x$ (YBCO) 電極上に PZT を形成し、疲労特性を調べた。その結果、疲労特性は PZT の結晶性よりも初期スイッチング電荷量の逆数と良い相関を示し、疲労特性を改善するにはスイッチング電荷量を低減すれば良いことが明かとなった。また、Ni 合金の代わりに、新しい電極として $\text{Ti}_{1-x}\text{Al}_x\text{N}$ (TAN) 電極を提案し、当電極上でペロブスカイト PZT を形成し P-E 履歴曲線から強誘電性を確認する事に成功した。

MFIS FET型メモリでは、絶縁体層として MgO バッファ層を用いて Si 基板上で PZT 薄膜の作製を試みた。その結果、5nm 程度の薄い MgO バッファ層上で高配向したペロブスカイト PZT を得ることができた。また、P-E 履歴曲線の測定で強誘電性を確認した。しかし、C-V 特性では良好なメモリ特性が得られず、MgO/Si 界面の劣化が示唆された。

SUMMARY OF RESEARCH RESULTS

For metal/ferroelectrics/metal (MFM) memory, ferroelectric lead-zirconate-titanate (Pb(Zr_{0.52}Ti_{0.48})O₃: PZT) thin-film capacitors were fabricated by ArF pulsed laser ablation (PLA) using Ni-alloy electrodes on oxidized (100) silicon. The fatigue test revealed that the increase in the frequency both for acceleration and measurement of switching pulse increases the life of polarization reversal while it decreases the switched charge density Q_{SW} . At 50 kHz, Q_{SW} keeps the initial value even after switching above 10^{10} cycles. The measurement frequency dependence of Q_{SW} suggests that a homogeneous fatigue takes place irrespective of fast and slow domains and additional layers of a low dielectric constant are probably formed in the ferroelectric-metal interface.

The effect of various electrodes on the ferroelectric properties of PZT films through the film structure is also presented. These experiments revealed that there is no simple correlation between the film structure and the fatigue resistance. The fatigue resistance is, however, found to be improved primarily by decreasing Q_{SW} , although the correlation shows some ambiguity. For examining the fatigue properties, titanium-aluminum-nitride (Ti-Al-N; TAN) electrode films were proposed for PZT thin-film capacitors. Capacitors with rather randomly oriented PZT films on the TAN/(100)Si did not show a ferroelectric hysteresis loop, but the capacitor with preferentially [100]-oriented PZT film on the TAN/(100)MgO did. This suggests that a TAN-electrode film was grown on (100)MgO with a high oxidation resistance at the high temperature employed for ferroelectric oxide preparation.

For metal ferroelectrics/insulator/semiconductors- (MFIS-) FET memory, PZT/MgO/(100)Si structure was proposed. The PZT film obtained was found to be highly oriented perovskite PZT film with a ferroelectric P-E hysteresis.

研究組織

研究代表者 森本章治 (金沢大学工学部助教授)
研究分担者 清水立生 (金沢大学工学部教授)
研究分担者 久米田稔 (金沢大学工学部教授)

研究経費

平成 6 年度	1, 700 千円
平成 7 年度	300 千円
計	2, 000 千円

研究発表

(1) 学会誌等(発表者名、テーマ名、学会誌名、巻号、年月日)

テ　ー　マ　名	学会誌名、巻、号、頁	発表年月	著者名
Laser Ablation Deposition of Oxide Films	Extended Abstract of 12th Yokohama 21st Century Forum on Fullerenes and Laser Processing	1996	T. Shimizu A. Morimoto
Preparation of Ti-Al-N Electrode Films by Pulsed Laser Ablation for Lead-Zirconate-Titanate Film Capacitors	Jpn. J. Appl. Phys. Vol. 35, No. 2B pp. L227-L230	1996. 2	A. Morimoto Y. Yamanaka T. Shimizu
Mechanism of Stoichiometric Deposition for Volatile Elements in Multimetal-Oxide Films Prepared by Pulsed Laser Ablation	Jpn. J. Appl. Phys. Vol. 35, No. 2B pp. L237-L240	1996. 2	A. Masuda K. Matsuda Y. Yonezawa A. Morimoto T. Shimizu
Preparation and Crystallographic Characterizations of Highly Oriented Pb(Zr _{0.52} Ti _{0.48})O ₃ Films and MgO Buffer Layers on (100)GaAs and (100)Si by Pulsed Laser Ablation	J. of Crystal Growth Vol. 158 pp. 84-88	1996. 1	A. Masuda Y. Yamanaka M. Tazoe T. Nakamura A. Morimoto T. Shimizu
Highly Oriented Pb(Zr, Ti)O ₃ Thin Films Prepared by Pulsed Laser Ablation on GaAs and Si Substrates with MgO Buffer Layer	Jpn. J. Appl. Phys. Vol. 34, No. 9B, pp. 5154-5157	1995. 9	A. Masuda Y. Yamanaka M. Tazoe Y. Yonezawa A. Morimoto T. Shimizu
Effect of Oxygen Pressure on (Ba _x Sr _{1-x})TiO ₃ Thin Films by Pulsed Laser Ablation	Jpn. J. Appl. Phys. Vol. 34, No. 9B, pp. 5150-5153	1995. 9	T. Nakamura Y. Yamanaka A. Morimoto T. Shimizu
Fatigue Behavior in Lead-Zirconate-Titanate Thin-Film Capacitors Prepared by Pulsed Laser Ablation on Ni-Alloy Electrodes	Jpn. J. Appl. Phys. Vol. 34, No. 8A, pp. 4108-4113	1995. 8	A. Morimoto Y. Yamanaka T. Shimizu

テ　ー　マ　名	学会誌名、巻、号、頁	発表年月	著者名
Electrical Properties of PZT Prepared by Pulsed Laser Ablation on Various Electrodes	Materials Research Society Symposium Proc., Vol. 361, pp. 551-556	1995. 8	A. Morimoto Y. Yamanaka T. Minamikawa T. Shimizu
レーザアブレーションによる光磁気記録用ビスマス置換希土類-鉄ガーネット薄膜の作製（解説）	応用物理 第64巻、第3号 pp. 220-225	1995. 3	森本章治 清水立生
Ferroelectric Properties of PZT Thin Films Deposited by Laser Ablation on Nickel Alloy Electrode for use with Silicon Substrate	Ferroelectrics, Vol. 157, pp. 381-386	1994	T. Ogawa H. Kidoh H. Yashima A. Morimoto T. Shimizu

(2) 口頭発表(発表者名、テーマ名、学会等名、年月日)

テ　マ　名	学　会　等　名	発表年月	発表者名
MgOバッファ層を用いてSi基板上へレーザアブレーション法により作製したPZT薄膜の電気特性	第56回応用物理学会学術講演会	1995.8	重野英樹 田添光俊 増田淳 森本章治 清水立生
レーザアブレーション法による(BaxSr _{1-x})TiO ₃ 薄膜作製時における酸素圧力の効果	第12回強誘電体応用会議	1995.5	中村孝則 山中康弘 森本章治 清水立生
レーザアブレーション法によるGaAsならびにSi上でのMgOバッファ層を用いた高配向PZT薄膜の作製	第12回強誘電体応用会議	1995.5	増田淳 山中康弘 田添光俊 米澤保人 森本章治 清水立生
パルスレーザアブレーション法によるPZT強誘電体薄膜の作製	第42回応用物理学関係連合講演会 「光励起プロセスの新展開」 -新しい光源とその応用-シンポジウム	1995.3	森本章治 清水立生
Ti-Al-N電極を用いたPZTキャパシタのレーザアブレーション法による作製	第42回応用物理学関係連合講演会	1995.3	森本章治 山中康弘 中村正治 清水立生
レーザアブレーション法によるGaAsならびにSi基板上でのMgOバッファ層を用いた高配向PZT薄膜の作製	第42回応用物理学関係連合講演会	1995.3	増田淳 山中康弘 田添光俊 森本章治 清水立生
レーザアブレーション法による(BaxSr _{1-x})TiO ₃ 薄膜作製における酸素ガス圧力の影響	第42回応用物理学関係連合講演会	1995.3	中村孝則 山中康弘 森本章治 清水立生

テ　ー　マ　名	学　会　等　名	発表年月	発表者名
Electrical Properties of PZT Prepared by Pulsed Laser Ablation on Various Electrodes	Materials Research Society Symposium	1994. 12	A. Morimoto Y. Yamanaka T. Minamikawa T. Shimizu
レーザアブレーションによるPZT薄膜作製における電極材料の影響（Ⅱ）	第55回応用物理学会学術講演会	1994, 9	山中康弘 南川俊治 森本章治 清水立生
レーザアブレーションによるPZT薄膜作製における電極材料の影響	第41回応用物理学関係連合講演会	1994, 3	山中康弘 田添光俊 南川俊治 森本章治 清水立生

(3) 出版物（著者名、書名、出版者名、年月日）

書名	出版者名	発表年月	著者名
Handbook of Thin Film Process Technology (Al.5 Laser Ablation 分担執筆)	Institute of Physics	1995.6	A. Morimoto T. Shimizu