

科学研究費助成事業 研究成果報告書

平成 28 年 6 月 1 日現在

機関番号：24403

研究種目：基盤研究(A) (一般)

研究期間：2012～2014

課題番号：24246049

研究課題名(和文) 強誘電体を用いた巨大分極接合界面のサイエンスとそのパワーエレクトロニクス応用

研究課題名(英文) Science of the hetero-junction having huge polarization and the application for the power devices

研究代表者

藤村 紀文 (Fujimura, Norifumi)

大阪府立大学・工学(系)研究科(研究院)・教授

研究者番号：50199361

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 36,300,000円

研究成果の概要(和文)：強誘電体の巨大な分極をパワー-MOSFETに応用するための検討を行った。強誘電体として、残留分極80microC/cm²以上、d33圧電定数90pm/Vを有する薄膜を得る技術を確立し、大気圧プラズマを用いて低ドナー濃度のGa₂O₃やZnOパワー半導体を作成することに成功した。BiFeO₃、P(VDF-Te(Tr)FE)]、YMnO₃を用いて応力場・ひずみ場・電位分布・分極分布・キャリア分布などが誘電特性、電子状態に及ぼす影響を詳細に検討した。強誘電体の自発分極によって、移動度が向上する、バンドオフセットなしでキャリア閉じ込めが見出され、本分野の大きな発展に帰する成果を得ることが出来た。

研究成果の概要(英文)：BiFeO₃ films with the spontaneous polarization of above 80microC and the piezoelectric coefficient of 90pm/V have been successfully developed. The Ga₂O₃ (10e16/cm²) and ZnO (10e14/cm²) with low donor density were obtained by newly developed atmospheric pressure plasma Chemical Vapor Deposition system as well. It is recognized that the system also works for reducing the trap density at a power MOS interface. The effects of the stress, strain and electric fields and the distribution of polarization and carrier on the dielectric properties and electronic structure of power MOS interfaces using BiFeO₃, P(VDF-Te(Tr)FE)] and YMnO₃ gate dielectrics. The unique phenomena such as an increase of mobility and carrier confinement without band offset by the strong carrier confinement of ferroelectric polarization have been recognized that should contribute the unprecedented development of power devices.

研究分野：酸化物エレクトロニクス

キーワード：強誘電体 パワーデバイス MOSFET 極性半導体

1. 研究開始当初の背景

パワーデバイスのエネルギー利用の効率化において、モーター制御や家電製品に利用されているインバータやコンバータのような変換効率の高いスイッチング電力変換回路の利用が必須となっている。例えば、「モーターのエネルギー効率を1%向上させることによって原子力発電所1基分に相当するエネルギーを節約することができる」と言われており、インバータやコンバータの利用範囲の拡大は極めて重要な社会課題と言える。図1にこの様な用途に利用されるパワー半導体素子の規

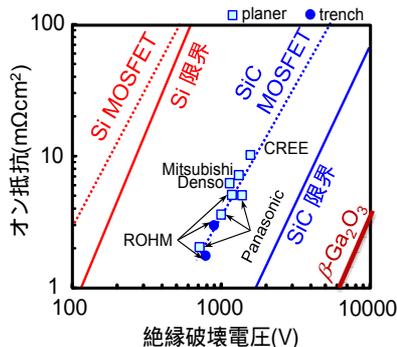


図1 各半導体を用いたパワーデバイスのオン抵抗と絶縁破壊電圧

格化オン抵抗と絶縁破壊電圧の関係を示す。(Panasonic Technical Journal 2011 をもとに申請者が作図) Si と比較して 10 倍の絶縁耐圧を有する SiC を用いて低オン抵抗の電界効果型(MOS)素子が開発され、日本のパワー半導体技術は世界的に優位な立場にあるものの、そのオン抵抗値は理論的限界には至っていない。その原因の一つとして高いチャンネル抵抗が指摘されている。そのために、

- 1) チャンネル長を短くする、
- 2) SiC/SiO₂ の界面密度を減少させる

試みがなされている。パワー半導体素子のスイッチング(チャンネル電荷量の変化)は、チャンネル上の誘電体の分極によって制御されており、常誘電体であればその電荷量はその誘電率によって決定する。従って、SiC のゲート絶縁膜として用いられる比誘電率 3.9 の SiO₂ が利用できる最大界面電荷量は、0.7 μC/cm² となる。しかしながら、100 μC/cm² にもおよぶ巨大な自発分極を有する強誘電体は、青で示した様に、常誘電体に比べて低い電界で大きな分極を誘起できるのでゲート電圧そのものを低くすることが可能となり、1/10 以下の低電界で SiO₂ の 100 倍以上の界面電荷を利用できる。この物質をゲートに用いた MOSFET では、2 桁大きなキャリア濃度を有する半導体であってもキャリアの蓄積・空乏(オンオフ)を制御できるため、チャンネル長を保持したままドリフト層を薄くすることが可能になり、オン抵抗を低減することができる。さらに、大きなオン電流やゲート電圧の

低減が期待できる。また、そのメモリ効果を用いることによって、ノーマリーオフとオンを制御(不揮発性動作)することができ、スイッチング時に生じる損失も低減できる。強誘電体のスイッチング速度は、1 nm 程度の大きさであれば、1 nsec 程度であり、高速動作も期待できる。

本申請では、1) チャンネル長を短くする：に対して「巨大分極を有する強誘電体の利用」、2) SiC/SiO₂ の界面密度を減少させる：に対して「申請者らによって開発された大気圧プラズマプロセス」(図3参照)を提案する。強誘電体を Si-MOSFET のゲート絶縁膜に用いた不揮発性メモリは、酒井(産総研)らの成果によって大きく進展した。GaN などのワイドバンドギャップ半導体を用いた研究例も報告され始めているが、本研究提案のようにパワー MOSFET の電荷制御に強誘電体薄膜を利用することを目的とした研究例は、小出(NIMS)による強誘電体/ダイヤモンド FET や徳光(東工大)らによる強誘電体/SiC ダイオードの報告に限られている。このように、強誘電体の巨大分極は魅力的な物性であるものの、その大きさが巨大であるが故にデバイス中で制御することが困難であることは容易に想像できる。申請者は、強誘電体の巨大電荷と半導体の電荷ミスマッチを低減するために極性半導体を利用することを提案し、分極機能型強誘電体ゲート FET の動作を確認している。(JJAP 47 (2008) 8874)

2. 研究の目的

1. に記載のような強誘電体の特長を活かした新規なパワーデバイスを実用化に向けて、強誘電体が半導体と接したときに生じる強誘電体の巨大分極が半導体に及ぼすポテンシャル場、応力場、ひずみ場を考慮した指導原理を構築することを目標とする。強誘電体の巨大分極とそのスイッチングによって、半導体の電位分布(電子状態)、分極分布、キャリア分布がどのように変化するかを電氣的、誘電的そして分光学的実験結果をもとに詳細に解析し、その理論的取り扱い方法を明らかにする。パワー半導体として、SiC、ZnO そして今後の発展が期待されている Ga₂O₃ を用いる。特に ZnO はその物質内に自発分極を有する極性半導体であるので、その自発分極と強誘電体の自発分極の相互作用に関する検討は極めて重要になる。

本申請の最も重要な特徴は、強誘電体/半導体ヘテロ界面におけるポテンシャル緩和のために生じる反電界などを応力場・ひずみ場・電位分布・分極分布・キャリア分布を理論的に解析することによって体系化することである。半導体中に自発分極を有する極性半導体を用いた研究はほとんどなされておらず

特徴的な研究である。

このような方法論が明らかになれば、強誘電体ゲート型パワーMOSFET素子の動作原理が提示できるだけでなく、入出力を最適化するインテリジェント・インバーターのような新しい用途への応用が可能となり、さらなる省エネルギーに貢献できる。最終的には巨大分極エレクトロニクスとして体系化され、多くの分野に貢献できると期待している。

3. 研究の方法

研究提案では、強誘電体薄膜をゲート絶縁膜として用いた強誘電体ゲート型パワーMOSFETを試作し、その物性評価、デバイス評価などの実験結果と、強誘電体/極性半導体ヘテロ構造における応力場・分極場の相互作用の理論的解析とをリンクさせることによって、強誘電体ゲート型パワーMOSFETの設計指針と駆動原理を検討し、「巨大分極エレクトロニクス」と言うべき新分野の理論体系を構築することを目標とする。

4. 研究成果

エネルギー利用の飛躍的な高効率化を実現するため、巨大分極/半導体界面を用いた以下の特徴を有する新奇なパワーデバイスの開発を提案し、試料作製、デバイス開発を行いその誘電特性、伝導特性、デバイス特性と分光学的に評価した電子状態をもとに様々な検討を行った。

1) パワーMOSFET素子を駆動するためのパワーデバイス用強誘電体としてBiFeO₃を開発した。正方晶歪の大きさを0-4%の間で制御することが可能になり、正方晶とみなせるBiFeO₃薄膜を得ることができ、d₃₃圧電定数が60pm/Vから90pm/Vへと向上するなど本物質が有する巨大な分極をデバイス中で取り出すための準備が整った。

2) 新規に開発した大気圧プラズマによってGa₂O₃やZnOパワー半導体を作成することに成功した。それらの薄膜が、ZnOで10¹⁴/cm²以下、Ga₂O₃で10¹⁶/cm²と低ドナー濃度であり、非常に欠陥が少ないことが示唆される結果を得た。また、MOS界面におけるトラップ準位などの低減に新しい道を拓いた。

3) 反転可能な自発分極を有する強誘電体と反転できない自発分極を有する半導体の接合界面を作製し、自発分極が半導体のキャリア輸送特性に及ぼす影響を精査した。半導体層のみの時の移動度に比べて、強誘電体層を積層した後の蓄積状態における移動度が増加することを見出した。キャリア散乱機構の解析の結果から、強誘電体の自発分極による強い閉じ込め効果に起因していることが明らかになった。また、BiFeO₃/Ga₂O₃界面においては、電気的そして分光学的評価からバンド配置を

明らかにした。また、伝導体のバンドオフセットが0.5eVであるにもかかわらず明瞭なキャリアの蓄積と半導体の空乏化が確認された。また、ワイドバンドギャップ半導体のゲート絶縁膜としてバンドギャップの小さな強誘電体が利用可能であることが明らかになった。さらに、強誘電体の分極が半導体の空乏層のような絶縁物質と接した場合強誘電体は不安定化するものの、極性半導体を用いることによって抑制できる場合があることを見出した。(図書1参照)の極性ノンドープのワイドバンドギャップ半導体(ZnO)上で、強誘電体の自発分極の反転に伴ったキャリア変調が生じることを確認した。

これらの知見をもとに、応力場・ひずみ場・電位分布・分極分布・キャリア分布の解析という、非常に複雑ではあるが、ワイドバンドギャップ半導体と強誘電体の接合界面の様々な物理現象が明らかになり、極めて重要な問題へのアプローチ方法が提示できた。

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 28 件)

1. R. Kashimoto, T. Yoshimura, A. Ashida, N. Fujimura

Lowering the growth temperature of strongly-correlated YbFe₂O₄ thin films prepared by pulsed laser deposition
査読有, Thin Solid Films Available online 30 April 2016

DOI: 10.1016/j.tsf.2016.04.044

2. Y. Miyata, T. Yoshimura, A. Ashida and N. Fujimura

Low-voltage operation of Si-based ferroelectric field effect transistors using organic ferroelectrics, poly(vinylidene fluoride-trifluoroethylene), as a gate dielectric

査読有, Jpn. J. Appl. Phys. 55 04EE04 1-4, (2016)

DOI:10.7567/JJAP.55.04EE04

3. Y. Nose, T. Yoshimura, A. Ashida, T. Uehara and N. Fujimura

Novel chemical vapor deposition process of ZnO films using nonequilibrium N₂ plasma generated near atmospheric pressure with small amount of O₂ below 1%

査読有, Journal Applied Physics 119, 175302 1-6 (2016)

DOI: 10.1063/1.4948326

4. Y. Takada, N. Okamoto, T. Saito, K. Kondo, T. Yoshimura, N. Fujimura, K. Higuchi, A. Kitajima and R. Shishido

Reliability of the Properties of (Pb, La) (Zr,

- TiO₃ Capacitors with Non-noble Metal Oxide Electrodes stored in a H₂ Atmosphere
 査読有, MRS Advances 1, 369-374 (2016)
 DOI: 10.1557/adv.2016.139
5. Jin Hong Choi, T. Yoshimura, and N. Fujimura
 Growth and characterization of (1-x) BiFeO_{3-x}(Bi_{0.5},K_{0.5})TiO₃ thin films
 査読有, Japanese Journal of Applied Physics 54, 10NA14 1-4 (2015)
 DOI: 10.7567/JJAP.54.10NA14
6. A. M. Eltanany, T. Yoshimura, N. Fujimura, Nour Z. Elsayed, Mohamed R. Ebied and Mohamed G. S. Ali
 Theoretical analysis of linear and nonlinear piezoelectric vibrational energy harvesters for human walking
 査読有, Japanese Journal of Applied Physics, 54, 10ND02 1-5 (2015).
 DOI: 10.7567/JJAP.54.10ND02
7. Y. Takada, T. Tsuji, N. Okamoto, T. Saito, K. Kondo, T. Yoshimura, N. Fujimura, K. Higuchi, A. Kitajima and H. Iwai
 Effect of Al-doped ZnO or Sn-doped In₂O₃ electrode on ferroelectric properties of (Pb, La) (Zr, Ti)O₃ capacitors
 査読有, Japanese Journal of Applied Physics, 54, 05ED03 1-6 (2015)
 DOI: 10.7567/JJAP.54.05ED03
8. Y. Takada, T. Tsuji, N. Okamoto, T. Saito, K. Kondo, T. Yoshimura, N. Fujimura, K. Higuchi, A. Kitajima, and A. Oshima
 Effect of excess Pb on ferroelectric characteristics of conductive Al-doped ZnO and Sn-doped In₂O₃ top electrodes in PbLaZrTiOx capacitors
 査読無, International Journal of Materials Research, 106, 83-87 (2015)
 DOI: 10.3139/146.111154
9. H. Yamada, T. Yoshimura and N. Fujimura
 Effects of polarization of polar semiconductor on electrical properties of poly(vinylidene fluoride-trifluoroethylene)/ZnO heterostructures
 査読有, Journal of Applied Physics, 117, 234101 1-5 (2015)
 DOI: 10.1063/1.4922668
10. Y. Miyata, Y. Nose, T. Yoshimura, A. Ashida, and N. Fujimura
 Evaluation of the electronic states in highly Ce doped Si films grown by low temperature molecular beam epitaxy system
 査読有, Journal of Crystal Growth, 425, 158-161(2015)
 DOI: 10.1016/j.jcrysgro.2015.03.013
11. K. Kariya, T. Yoshimura, S. Murakami, and N. Fujimura
 Enhancement of piezoelectric properties of (100)-orientated BiFeO₃ films on (100) LaNiO₃/Si
 査読有, Japanese Journal of Applied Physics, 53, 09PA14(2014)
 DOI: 10.7567/JJAP.53.09PA14
12. K. Kariya, T. Yoshimura, S. Murakami, and N. Fujimura
 The output power of piezoelectric MEMS vibration energy harvesters under random oscillations
 査読有, Journal of Physics: Conference Series, 557, 012101 1-5 (2014)
 DOI: 10.1088/1742-6596/557/1/012101
13. K. Kariya, T. Yoshimura, S. Murakami, and N. Fujimura
 Piezoelectric properties of (100) orientated BiFeO₃ thin films on LaNiO₃
 査読有, Japanese Journal of Applied Physics, 53, 08NB02(2014)
 DOI: 10.7567/JJAP.53.08NB02
14. Y. Takada, T. Tsuji, N. Okamoto, T. Saito, K. Kondo, T. Yoshimura, N. Fujimura, K. Higuchi, and A. Kitajima
 Improved reliability properties of (Pb, La) (Zr, Ti)O₃ ferroelectric capacitors by thin aluminium-doped zinc oxide buffer layer
 査読有, Electronics Letters, 50[11], 799 801 (2014)
 DOI: 10.1049/el.2014.0187
15. M. Nakayama, Y. Furukawa, K. Maeda, T. Yoshimura, H. Uga, N. Fujimura
 Correlation between the intra-atomic Mn³⁺ photoluminescence and antiferromagnetic transition in an YMnO₃ epitaxial film
 査読有, Applied Physics Express, 7, 23002 (2014) DOI: 10.7567/APEX.7.023002
16. K. Ujimoto, T. Yoshimura, K. Wakazono, A. Ashida, N. Fujimura
 Crystal structure and local piezoelectric properties of strain-controlled (001) BiFeO₃ epitaxial thin Films
 査読有, Thin Solid Films, 550, 738 741 (2014)
 DOI: 10.1016/j.tsf.2
17. T. Nakamura, T. Yoshimura, A. Ashida,

N. Fujimura

Near-surface structure of polar ZnO surfaces prepared by pulsed laser deposition

査読有, Thin Solid Films, online (2013)

DOI: 10.1016/j.tsf.2013.11.065

18. Y. Nomura, T. Yoshimura, N. Fujimura
Fabrication and Electric Properties of Ferroelectric-Gate Thin Film Transistors with Nano-Channel

査読有, Journal of the Vacuum Society of Japan, 56, 172 175 (2013)

https://www.jstage.jst.go.jp/article/jvsj2/56/5/56_12-PR-086/_pdf

19. K. Ujimoto, T. Yoshimura, A. Ashida, N. Fujimura

Effect of Target Surface Microstructure on Morphological and Electrical Properties of Pulsed Laser Deposited BiFeO₃ Epitaxial Thin Films

査読有, Japanese Journal of Applied Physics, 52, 45803 (2013)

DOI: 10.7567/JJAP.52.045803

20. K. Wakazono, Y. Kawahara, K. Ujimoto, T. Yoshimura, N. Fujimura

Effects of La substitution for BiFeO₃ epitaxial thin films

査読有, Journal of the Korean Physical Society

62, 1069 1072 (2013)

DOI: 10.3938/jkps.62.1069

21. Y. Yachi, T. Yoshimura, N. Fujimura

Effect of the annealing temperature of P(VDF/TrFE) thin films on their ferroelectric properties

査読有, Journal of the Korean Physical Society

62, 1065, 1068 (2013)

DOI: 10.3938/jkps.62.1065

22. Y. Miyata, H. Takata, Y. Okuyama, T. Yoshimura, N. Fujimura

Field Effect of Magnetic Semiconductor Si:Ce Thin Films Using Organic Ferroelectrics

査読有, Journal of the Vacuum Society of Japan, 56, 136 138 (2013)

https://www.jstage.jst.go.jp/article/jvsj2/56/4/56_12-PR-087/_pdf

23. T. Yoshimura, S. Murakami, K. Wakazono, K. Kariya and N. Fujimura

Piezoelectric Vibrational Energy Harvester Using Lead-free Ferroelectric BiFeO₃ Films

査読無, Applied Physics Express, 6, 051501 (2013)

DOI: 10.7567/APEX.6.051501

24. Y. Nose, T. Nakamura, T. Yoshimura, A. Ashida, T. Uehara, N. Fujimura

Orientation control of ZnO films deposited using nonequilibrium atmospheric pressure N₂/O₂ plasma

査読有, Jpn. J. Appl. Phys. 52, 01AC03 1-3 (2013)

DOI: 10.7567/JJAP.52.01AC03

25. H. Yamada, T. Yoshimura, N. Fujimura
Effect of ferroelectric polarization on carrier transport in controlled polarization type ferroelectric gate field-effect transistors with Poly(VDF-TeFE)/ZnO heterostructure

査読有, Jpn. J. Appl. Phys.

51, 11PB01 1-4 (2012)

DOI: 10.1143/JJAP.51.11PB01

26. Y. Kawahara, K. Ujimoto, T. Yoshimura, N. Fujimura

Control of crystal structure of BiFeO₃ epitaxial thin films by the growth condition and piezoelectric Properties

査読有, Jpn. J. Appl. Phys. 51, 09LB04 1-5 (2012)

DOI: 10.1143/JJAP.51.09LB04

27. 石井将之, 寺内雅裕, 吉村武, 中山忠親, 藤村紀文

誘電泳動により作製した TiO₂ ナノチューブ電界効果トランジスタの電気伝導

査読有, 材料, 61, 766 770 (2012)

https://www.jstage.jst.go.jp/article/jsms/61/9/61_766/_pdf

28. 野瀬幸則, 吉村武, 芦田淳, 上原剛, 藤村紀文

大気圧非平衡酸素プラズマを用いた ZnO 薄膜の低温形成とその成長形態

査読有, 材料, 61, 756 759 (2012)

https://www.jstage.jst.go.jp/article/jsms/61/9/61_756/_pdf

〔学会発表〕(計 226 件)

国際会議招待講演のみ掲載

1. T. Yoshimura, S. Murakami, K. Kariya, and N. Fujimura

Piezoelectric MEMS vibrational energy harvester using BiFeO₃ films (invited talk).

The 32nd International Japan-Korea Seminar on Ceramic

2015 年 11 月 18 日 ~ 20 日

長岡技術科学大学 (新潟県・長岡市)

2. N. Fujimura

Switchable photo-induced current of strongly correlated ferroelectric thin films (invited talk). EMN Cancun Meeting

2015 年 06 月 07 日 ~ 12 日

The Westin Resoet & Spa (Mexico)

3. N. Fujimura, H. Uga, A. Ashida, and T. Yoshimura

Origin of the switchable photo-induced current in strongly correlated ferroelectrics, YMnO₃ epitaxial films (invited talk).

E-MRS Spring Meeting 2015 年 05 月 10 日 ~ 15 日 Lille Grand Palais (France)

4. N. Fujimura

Fundamental Physics and the device application of strongly-correlated ferroelectrics (invited talk).

International Seminar on Functional Ferroelectric Films for Future Electronic Devices and Systems 2014 年 11 月 19 日
京都工芸繊維大学 (京都府・京都市)

5. T. Yoshimura, S. Murakami, K. Kariya, and N. Fujimura

Piezoelectric vibrational energy harvesting using BiFeO₃ films (invited talk).
IUMRS-ICA2014 2014 年 08 月 24 日 ~ 29 日
福岡大学 (福岡県・福岡市)

6. N. Fujimura

Photo-induced phenomena of strongly correlated ferroelectrics, YMnO₃, YbFe₂O₄ and BiFeO₃ thin Films (invited talk).

2013 JSAP-MRS Joint Symposia
2013 年 09 月 18 日 同志社大学京田辺キャンパス(京都府・京田辺市)

7. N. Fujimura

Light-induced phenomena of strongly correlated ferroelectric thin films

Collaborative Conference on Materials Research (CCMR) 2013 (invited talk)
2013 年 06 月 24 日 Jeju (South Korea)

〔 図書 〕 (計 1 件)

N. Fujimura and T. Yoshimura

Memory Applications of Ferroelectric-gate Field Effect Transistors (Elsevier, Editors, H. Ishiwara, M. Okuyama, S. Sakai, S-M. Yoon, B-E. Park, (2016) in print

〔 産業財産権 〕

出願状況 (計 0 件)

取得状況 (計 0 件)

〔 その他 〕

ホームページ

<http://www2.pe.osakafu-u.ac.jp/device7/>

6 . 研究組織

(1) 研究代表者

藤村 紀文 (FUJIMURA, Norifumi)

大阪府立大学・工学研究科・教授

研究者番号 : 50199361

(2) 研究分担者

吉村 武 (YOSHIMURA, Takeshi)

大阪府立大学・工学研究科・准教授

研究者番号 : 30405344

(3) 連携研究者

石原 正行 (ISHIHARA, Masayuki)

大阪府立大学・工学研究科・准教授

研究者番号 : 60283339

小出 康夫 (KOIDE, Yasuo)

独立行政法人物質・材料研究機構

光・電子材料ユニット・グループリーダー

研究者番号 : 70195650