

## 科学研究費助成事業（科学研究費補助金）研究成果報告書

平成24年5月22日現在

機関番号：24403

研究種目：基盤研究(B)

研究期間：2009年度～2011年度

課題番号：21360153

研究課題名（和文）電気多重極子を利用した超高密度強誘電体ゲート不揮発性論理演算素子の創製

研究課題名（英文）Development of Ultra High Density Ferroelectric-gate Nonvolatile Logical Operation Device using Multi-electric Dipole

研究代表者

藤村 紀文 (FUJIMURA NORIFUMI)

大阪府立大学・大学院工学研究科・教授

研究者番号：50199361

研究成果の概要（和文）：分極機能型強誘電体ゲート電界効果トランジスタの特性におよぼす電気多重極子の効果を精査し、その指導原理を構築することを目的とした検討を行った。インピーダンス分光と集中定数モデルを用いた解析から、極性半導体の自発分極の効果により低電圧でのオンオフ動作が可能であることを明らかにした。また低温プロセスや微細化プロセスの開発も行った。低温プロセスで作製した分極機能型強誘電体ゲート電界効果トランジスタのチャネル移動度に及ぼす強誘電分極ドメインの影響を調べた結果、キャリアは強誘電体分極ドメイン壁によって散乱されるが、強誘電体を単分極化することで高い移動度が得られることが明らかになった。

研究成果の概要（英文）：The effect of multi-electric dipole on the controlled polarization type ferroelectric gate field effect transistors was investigated to establish the principle to design the device. From the results of the analysis using the impedance spectroscopy and lumped constant circuit model, it was found that the transistors shows on-off operation at low voltage due to the effect of the spontaneous polarizations of the polar semiconductor. Moreover, low temperature process and sub-100 nm process were developed. The effects of the ferroelectric domain on the carrier mobility were investigated using the transistors fabricated by the low temperature process. The results indicate that, while the carriers are scattered by the ferroelectric domain wall, high mobility is obtained by polarizing the ferroelectric layer in a single domain.

交付決定額

（金額単位：円）

	直接経費	間接経費	合計
2009年度	7,100,000	2,130,000	9,230,000
2010年度	4,500,000	1,350,000	5,850,000
2011年度	2,400,000	720,000	3,120,000
年度			
年度			
総計	14,000,000	4,200,000	18,200,000

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：高密度メモリ・不揮発性論理演算素子・強誘電体メモリ・電気多重極子

## 1. 研究開始当初の背景

強誘電体の自発分極を利用した不揮発性メモリは既に実用化されているが、現状の方

式では高集積化が困難という課題がある。一方で、強誘電体をゲート絶縁膜とする電界効果トランジスタ（強誘電体ゲート FET）は、ス

ケーリング則が成り立ち、高集積化に有利なメモリ素子として期待されている。すでに、東工大を拠点に経産省のプロジェクトが遂行され、この分野は欧米に追従を許していない。しかしながら、市場参入直前のM（磁気）RAM や構造が単純な R（抵抗）RAM、P（相変化）RAM と比べて高集積化が困難であることが指摘されている。

強誘電体は、同じ電界で通常の誘電体の千倍程度の電荷を誘起できるため、その巨大分極を用いて金属的な半導体の空乏化（東工大）や絶縁体界面への電荷誘起（阪大）などの新しい試みも日本主導で進んでいる。また、強誘電体の巨大分極を利用して超伝導状態を制御する（Geneva 大）、絶縁体上の FET 動作（Yale 大）などの報告も相次いでおり強誘電体を用いた電界効果は世界的な潮流になりつつある。しかしながら、これらを実際に汎用メモリとして実用化しようとした場合、上記のような電界効果のデモンストレーションではなく、この巨大な分極を巧みに取り扱い、デバイス化に向けていくつかの問題点を克服する必要がある。強誘電体ゲート FET の最大の問題点は、記憶保持時間が短いところにある。これは、半導体の表面電位によって強誘電体の巨大な自発分極に対して反（減分極）電界が生じ、強誘電性分極が反転することに起因している。

本研究室では、強誘電体ゲート FET の記憶保持特性を大幅に向上させる方法として、電気多重極子の効果（チャンネルにも「反転しない分極」を導入し、その分極間相互作用によってメモリ保持を安定化する）を用いることを提案している。この分極機能を用いた薄膜トランジスタの動作はすでに確認済みである。また、このゲート/チャンネル界面が酸化物界面であり、変質層が形成しにくく Si をチャンネルに用いた強誘電体ゲートトランジスタと比較して、電氣的に良好な界面を得ることができている。しかしながら、分極間の相互作用が TFT 特性にどのように影響しているのかは未解明であった。

さらに、n 型半導体をチャンネルに用いた場合、上図のようなトップゲート構造において最も分極間相互作用を有効に利用できると考えられるが、その場合基板上に成長したチャンネル層は完全空乏化を考えると 20nm 程度の膜厚でなければならない。この様な極薄 ZnO 薄膜では、界面に電氣的縮体層が、粒界にダブルショットキー障壁が形成し、大きな移動度を得ることができない、比較的高温でしか結晶化しない強誘電体ゲート薄膜成長中にチャンネル層が劣化する、などの問題が顕在化していた。またボトムゲート構造の場合は、分極間相互作用によって、デバイス特性の劣化が予想されていた。

## 2. 研究の目的

不揮発性記憶素子として世界を凌駕しているフラッシュメモリも開発の限界に近づき、新不揮発性メモリの開発競争が激しくなっている。その中で強誘電体メモリは唯一市場を握っている不揮発性メモリであるが、高集積化の問題が顕在化している。強誘電体ゲート FET はこの課題を解決できると期待されているが、ゲート/チャンネル界面劣化、減分極電界による強誘電性分極の不安定性に起因するメモリ保持の問題を有している。本研究では、この問題を克服する「電気多重極子相互作用」を取り入れた新規な分極機能型電界効果トランジスタを提案する。

将来的な最終目的は、スピントランジスタへの応用であるが、本研究では、まだ世界中で誰も確認していない電気多重極子の TFT 特性への影響を確認し、その効果的な利用方法を構築することに注力する。50nm 以下のゲート長を有する不揮発性 TFT のメモリ保持特性、蓄積電荷、電界効果移動度などの分極機能型強誘電体ゲート FET の特性におよぼす電気多重極子の効果を精査し、その指導原理を構築する。実用化を視野に入れ、電気化学的（メッキ技術）成長、有機強誘電体を駆使したナノサイズチャンネル TFT の低温プロセス技術の構築も含めて検討課題とする。

## 3. 研究の方法

強誘電体ゲート FET 特性におよぼす電気多重極子の効果については、インピーダンス分光法による解析を中心として調べた。極性半導体として ZnO、強誘電体として YMnO<sub>3</sub> を用いた強誘電体ゲート薄膜トランジスタ (TFT) はレーザアブレーション法を用いて作製した。作製した素子のソース-ゲート間の複素インピーダンスの周波数依存性を LCR メータを用いて測定した。強誘電体ゲート TFT の集中定数等価回路モデルを構築し、それを用いて測定結果を解析することにより、チャンネル部の強誘電体分極の反転挙動を調べた。

また 50nm 以下のチャンネル長を有する強誘電体ゲート TFT の作製には、透明基板を用いて下部電極をマスクとして背面から露光してフォトリソグラフを行う背面露光法、およびソース・ドレイン電極を形成する際に斜め方向から蒸着を行う傾斜蒸着法を組み合わせたプロセスを検討した。

さらに強誘電体ゲート TFT の低温作製プロセスの検討として、ZnO 薄膜の電気化学成長、大気圧非平衡プラズマを用いた化学気相成長 (CVD)、有機強誘電体である P(VDF-TeFE) を用いることを検討した。P(VDF-TeFE) を用いて低温で形成した分極機能ヘテロ構造を有する TFT およびホールバーを作製し、強誘電体の分極とキャリアとの相互作用を調べた。

#### 4. 研究成果

##### (1) インピーダンス分光法を用いた解析

強誘電体ゲートTFTの特性は、通常のTFTと同様にドレイン電流-ゲート電圧 ( $I_D-V_G$ ) など静特性で評価されることが多いが、チャンネル中でのオン領域の分布のような強誘電体の分極によるキャリア制御に関する情報は、静特性では十分に得ることができない。そこで本研究ではインピーダンス分光法を用いて、強誘電体ゲートTFTのチャンネルの状態の解析を行った。強誘電体ゲートTFTではゲート電圧が0Vでも、強誘電体の分極ドメインに対応してチャンネル中にオン領域とオフ領域が形成されると考えられる。このことを考慮して、強誘電体ゲートTFTの等価回路を集中定数モデルを用いて構築した。分極機能型強誘電体ゲートTFTのソース-ゲート電極間のインピーダンスの周波数依存性をモデルを用いて解析した結果、TFTのオン-オフ動作はソース電極近傍の強誘電分極の反転に起因していることが明らかになった。また、分極機能型強誘電体ゲートTFTは、強誘電体の自発分極によってチャンネル全体がオン領域であるが、2V程度の小さな電圧で容易にソース電極近傍をオフ状態にできることがわかり、これらの特性は、極性半導体の自発分極による効果によってもたらされていると結論づけた。(雑誌論文⑥⑬)

##### (2) 微細分極機能型強誘電体ゲートTFTの作製

50nm以下のチャンネル長を有する分極機能型強誘電体ゲートの作製を検討した。1000nm以下の幅のボトムゲート電極上に50nm以下のギャップを有するソース・ドレイン電極を形成するため、背面露光法と傾斜蒸着法を組み合わせたプロセスを開発した。50nm以下のギャップを有するソース・ドレイン電極を有するZnOチャンネルTFTの特性を評価した結果、電極とZnOの接触抵抗にTFTの特性が支配されており、その低減が必要であることが明らかになった。

##### (3) 低温プロセスの検討

電気化学法によるZnO薄膜の作製では60°Cで作製することができた。さらに成長条件を工夫することで、微小電極ギャップ間にZnOの結晶を橋渡しさせるように成長させることもできた。また大気圧非平衡プラズマCVDによるZnO薄膜の作製では200°C以下で結晶成長させることができた。大気圧非平衡プラズマCVDでは、多量の活性酸化源が存在することからZnO中の酸素欠損を

低減できると考えている。(雑誌論文①③⑤⑧⑨⑫)

##### (4) 強誘電分極がチャンネルの電子輸送特性に及ぼす影響

有機強誘電体P(VDF-TeFE)とZnOを用いて低温プロセスで強誘電体/極性半導体ヘテロ接合界面を作製した。この試料をホールバー状およびTFTに加工し、その電気特性の結果から、分極機能型強誘電体ゲートTFTにおけるキャリアの移動度に及ぼす強誘電分極の影響を調べた。TFT構造の試料では電界効果移動度を、ホールバー構造の試料ではホール効果移動度を調べた。解析の結果、強誘電体等がマルチドメイン構造になると移動度が低下し、ドメイン壁の形成によってキャリアが散乱されることを明らかになった。一方で強誘電体層が単分極化された状態ではZnOの移動度は強誘電体層の製膜間よりも高く、強誘電体分極とZnOの自発分極によるキャリアの閉じ込め効果により、移動度が向上することが明らかになった。

(雑誌論文④⑦)

#### 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 35 件)

①S. Yagi, Y. Kondo, Y. Satake, A. Ashida, N. Fujimura

Local pH control by electrolysis for ZnO epitaxial deposition on a Pt cathode  
Electrochimica Acta, 査読有, Vol. 62, 2012, 348-353

②中村立, 藤村紀文

酸化亜鉛単結晶基板の極性面の違いによる表面処理方法とエピタキシャル成長過程の相違材料, 査読有, 60巻, 2011, 983-987

③Y. Kondo, A. Ashida, N. Nouzu, N. Fujimura

ZnO crystal growth on microelectrode by electrochemical deposition method  
IOP Conf. Series: Materials Science and Engineering, 査読有, Vol. 18, 2011, 092043 1-4

④H. Yamada, T. Fukushima, T. Yoshimura, N. Fujimura

Effect of ferroelectric polarization domain structure on electronic transport property of ferroelectric ZnO heterostructure  
Jpn. J. Appl. Phys., 査読有, Vol. 50, 2011,

09NA06 1-4

⑤A. Ashida, N. Nouzu, N. Fujimura  
Initial growth process in electrochemical  
deposition of ZnO  
Jpn. J. Appl. Phys., 査読有, Vol. 50, 2011,  
05FB12 1-3

⑥T. Fukushima, K. Maeda, T. Yoshimura, A.  
Ashida, N. Fujimura  
Impedance analysis of  
controlled-polarization-type  
ferroelectric-gate thin film transistor  
using resistor-capacitor lumped constant  
circuit  
Jpn. J. Appl. Phys., 査読有, Vol. 50, 2011,  
04DD16 1-4

⑦H. Yamada, T. Fukushima, T. Yoshimura,  
N. Fujimura  
Electronic transport property of a  
YbMnO<sub>3</sub>/ZnO heterostructure  
Journal of The Korean Physical Society,  
査読有, Vol. 58, 2011, 792-796

⑧T. Nakamura, K. Masuko, A. Ashida, T.  
Yoshimura, N. Fujimura  
Surface preparation of ZnO single-crystal  
substrate for the epitaxial growth of ZnO  
thin films  
Journal of Crystal Growth, 査読有,  
Vol. 318, 2010, 516-518

⑨芦田淳, 藤村紀文  
定電流電気化学堆積法による酸化亜鉛薄膜  
の作製  
材料, 59巻, 査読有, 2010, 681-685

⑩K. Masuko, T. Nakamura, A. Ashida, T.  
Yoshimura, N. Fujimura  
Fabrication and magneto-transport  
properties of Zn<sub>0.88-x</sub>Mg<sub>x</sub>Mn<sub>0.12</sub>O/ZnO  
heterostructures grown on ZnO  
single-crystal substrates  
Advances in Science and Technology, 査読  
有, Vol. 75, 2010, 1-8

⑪T. Yoshimura, H. Sakiyama, T. Oshio, A.  
Ashida, N. Fujimura,  
Direct piezoelectric properties of  
Mn-doped ZnO epitaxial films, Japanese  
Journal of Applied Physics, 査読有,  
Vol. 49, 2010, 021501 1-3

⑫T. Nakamura, K. Masuko, A. Ashida, T.  
Yoshimura, N. Fujimura  
Growth process observation of

homoepitaxial ZnO thin films using optical  
emission spectra during pulsed laser  
deposition  
Thin Solid Films, 査読有, Vol. 518, 2009,  
2971-2974

⑬N. Nouzu, A. Ashida, T. Yoshimura, N.  
Fujimura  
Control of cathodic potential for  
deposition of ZnO by constant-current  
electrochemical method  
Thin Solid Films, 査読有, Vol. 518, 2009,  
2957-2960

⑭T. Fukushima, T. Yoshimura, K. Masuko,  
K. Maeda, A. Ashida, N. Fujimura  
Analysis of carrier modulation in channel  
of ferroelectric-gate transistors having  
polar semiconductor  
Thin Solid Films, 査読有, Vol. 518, 2009,  
3026-3029

⑮K. Masuko, A. Ashida, T. Yoshimura, N.  
Fujimura  
Contribution of s-d exchange interaction  
to magnetoresistance of ZnO-based  
heterostructures with a magnetic barrier  
Physical Review B, 査読有, Vol. 80, 2009,  
125313 1-7

⑯K. Masuko, A. Ashida, T. Yoshimura, N.  
Fujimura  
Electron transport properties of  
Zn<sub>0.88</sub>Mn<sub>0.12</sub>O/ZnO modulation-doped  
heterostructures  
Journal of Vacuum Science & Technology B,  
査読有, Vol. 27, 2009, 1760-1764

[学会発表] (計 117 件)

①山田裕明, 吉村武, 藤村紀文  
P(VDF-TeFE)/ZnOヘテロ構造の電子輸送特性  
のチャネル膜厚依存性  
2012年春季第59回応用物理学関係連合講演  
会, 2012年3月18日, 早稲田大学(東京都)

②野村侑平, 山田裕明, 吉村武, 藤村紀文  
ZnO チャネル上へのナノギャップ電極の形  
成と伝導特性評価  
2012年春季第59回応用物理学関係連合講演  
会, 2012年3月18日, 早稲田大学(東京都)

③野瀬幸則, 上原剛, 藤村紀文  
大気非平衡プラズマを用いて低温成長した  
ZnO薄膜の成長形態  
2012年春季第59回応用物理学関係連合講演  
会, 2012年3月18日, 早稲田大学(東京都)

④Y. Nose, T. Uehara, N. Fujimura  
Low temperature growth of ZnO films  
using atmospheric pressure  $N_2/O_2$  plasma  
4th International Symposium on Advanced  
Plasma Science and its Applications for  
Nitrides and Nanomaterials, March 7, 2012,  
Chubu University (Aichi, Japan)

⑤山田裕明, 福島匡泰, 吉村武, 藤村紀文  
ZnO チャネル FeFET の電子輸送特性における  
強誘電ドメインの影響  
2011年秋季第72回応用物理学会学術講演会,  
2011年8月31日, 山形大学 (山形県)

⑥野瀬幸則, 中村立, 上原剛, 藤村紀文  
大気圧非平衡プラズマを用いたZnO薄膜の低  
温成長  
2011年秋季第72回応用物理学会学術講演会,  
2011年8月31日, 山形大学 (山形県)

⑦山田裕明, 福島匡泰, 吉村武, 藤村紀文  
強誘電体の分極状態とZnO薄膜の電子輸送特  
性の相関  
第28回強誘電体応用会議, 2011年5月26日,  
コープイン京都 (京都府)

⑧野瀬幸則, 井手康太, 上原剛, 藤村紀文  
大気圧非平衡酸素プラズマを用いた  
ZnO-CVD装置の開発  
平成22年度春季第58回応用物理学関係連合  
講演会, 2011年3月26日, 神奈川工科大学 (神  
奈川県)

⑨野村侑平, 福島匡泰, 前田和弘, 吉村武,  
藤村紀文  
背面露光法により作製した強誘電体ゲート  
TFTの電気特性  
平成22年度春季第58回応用物理学関係連合  
講演会, 2011年3月24日, 神奈川工科大学 (神  
奈川県)

⑩山田裕明, 福島匡泰, 吉村武, 藤村紀文  
強誘電体の分極がZnO薄膜の伝導特性に与え  
る影響II  
平成22年度春季第58回応用物理学関係連合  
講演会, 2011年3月24日, 神奈川工科大学 (神  
奈川県)

⑪Y. Kondo, A. Ashida, N. Nouzu, N. Fujimura  
ZnO crystal growth on micro electrode by  
electrochemical deposition method  
3rd international congress on ceramics,  
November 15, 2010, Osaka, Japan

⑫T. Fukushima, K. Maeda, T. Yoshimura, A.  
Ashida, N. Fujimura

Impedance analysis of  
controlled-polarization-type  
ferroelectric-gate TFT using RC  
distributed constant circuit  
2010 International conference on solid  
state devices and materials, September 23,  
2010, Tokyo, Japan

⑬T. Yoshimura, T. Fukushima, A. Ashida,  
N. Fujimura  
Device characterization of controlled  
polarization type ferroelectric gate TFT  
17th international workshop on oxide  
electronics, September 20, 2010, Hyogo,  
Japan

⑭福島匡泰, 前田和弘, 吉村武, 芦田淳, 藤  
村紀文  
強誘電体ゲートTFTのRC分布定数回路を用い  
たインピーダンス解析  
平成22年度秋季第71回応用物理学会学術講  
演会, 2010年9月16日, 長崎大学 (長崎県)

⑮山田裕明, 福島匡泰, 高田浩史, 吉村武,  
藤村紀文  
強誘電体の分極がZnO薄膜の伝導特性に及ぼ  
す影響  
平成22年度秋季第71回応用物理学会学術講  
演会, 2010年9月16日, 長崎大学 (長崎県)

⑯H. Yamada, T. Fukushima, S. Sakamoto, K.  
Masuko, T. Yoshimura, N. Fujimura  
Electronic transport property of  
YbMnO<sub>3</sub>/ZnO heterostructure  
The 8th Japan-Korea conference on  
ferroelectrics, August 4, 2010, Himeji,  
Japan

⑰山田裕明, 福島匡泰, 吉村武, 藤村紀文  
RMnO<sub>3</sub>/ZnOヘテロ構造デバイスのチャネル伝  
導特性  
平成22年度春季第57回応用物理学関係連合  
講演会, 2010年3月19日, 東海大学 (神奈川  
県)

⑱福島匡泰, 吉村武, 前田和弘, 芦田淳,  
藤村紀文  
分極機能型強誘電体ゲートTFTのデバイス特  
性評価  
平成22年度春季第57回応用物理学関係連合  
講演会, 2010年3月18日, 東海大学 (神奈川  
県)

⑲吉村武, 福島匡泰, 芦田淳, 藤村紀文  
インピーダンス分光法による分極機能型強  
誘電体ゲートTFTの動作特性の解析  
平成21年度秋季第70回応用物理学会学術講

演会，2009年9月11日，富山大学（富山県）

〔その他〕

ホームページ等

<http://www.pe.osakafu-u.ac.jp/pe7/>

## 6. 研究組織

### (1) 研究代表者

代表者

藤村 紀文

（大阪府立大学・工学研究科・教授）

研究者番号：50199361