

審査の結果の要旨

氏名 鄭 珪捧

DRAM (Dynamic Random Access Memory) や FeRAM (Ferroelectric Random Access Memory) などのメモリデバイスは、高集積化の要請に応えるため、幅数十ナノメートル、深さ1ミクロン程度の高アスペクト比トレンチ構造を持つキャパシタを形成し、メモリ素子として利用している。さらなる高集積化を実現するには、高誘電体、強誘電体複合酸化物薄膜とそれらに適した電極薄膜を上記トレンチ内に均一に形成できる新規プロセスの開発が必須とされている。

本論文は、「A Kinetic Study on Multicomponent Oxide Film Formation Process using Supercritical Fluid (和文：超臨界流体を利用した複合酸化物薄膜形成プロセスの速度論に関する研究)」と題し、上記課題に対して超臨界流体を利用した薄膜形成プロセス (SCFD, Supercritical Fluid Deposition) を用いて SrTiO_3 , SrRuO_3 などの高誘電体薄膜、電極用薄膜合成の速度論を中心に検討したものであり、全部で7章からなる。

第1章は序論であり、本研究の背景、目標、SCFD プロセスの概要、既往の研究などをまとめている。第2章では、閉鎖式 SCFD 反応器を用いて、 SrRuO_3 薄膜を形成するための反応系について検討した結果をまとめている。化学量論組成の SrRuO_3 を得るために、Sr 系原料の反応速度、Ru 系原料の反応速度の温度、酸素濃度依存性を検討し、流体中での微粒子生成抑制が課題の1つであることを指摘している。

第3章では、 SrRuO_3 薄膜を形成するために、流通式反応器を導入し、基板温度と流体温度を独立に制御できるよう工夫し、粒子生成の問題を解決して化学量論組成の SrRuO_3 薄膜に成功している。また、その際にエタノールの添加効果も併せて検討し、組成制御手段として活用している。エタノールの添加により、Sr 原料の溶解度を向上させ (エントレナー効果)、Ru 原料の反応速度を抑制し (溶媒効果)、Sr : Ru = 1 : 1 の組成を実現させた。また、マクロキャビティ法を用いて、マクロキャビティ内の SrRuO_3 製膜速度と組成分布を検討し、その結果から、微細なトレンチ内の組成分布は均一になることを明らかにして

いる。

第4章では、 TiO_2 薄膜の SCFD 合成について速度論的な検討を加えている。先に述べたように、メモリデバイスにおいて高誘電体膜は高アスペクト比形状内に均一に製膜できることが要求される。どの程度のアスペクト比まで均一に薄膜を形成できるかを、マイクロレンチ法およびマクロキャビティ法を併せて検討している。これらの解析から、製膜種の表面反応速度定数 k_s と拡散係数 D の比を抽出し、この値をもとに均一性の予測を行い、異なるアスペクト比および大きさのレンチ内への製膜状況と比較検討を行った。その結果、予測結果と実験結果は良く一致し、解析の精度を確認するとともに、微細化するほど高アスペクト比のレンチに均一に製膜できるという SCFD の特徴を明らかにしている。このことは、メモリデバイスの微細・高集積化に即応できるプロセスであることを示したものである。

第5章では、 TiO_2 薄膜 SCFD 合成におけるエタノール、アセトンの添加効果を検証した結果をまとめている。エタノールの添加はエンレーナ効果による原料溶解度向上と溶媒効果による反応促進効果があることを明らかにした。また、アセトンは逆に反応を抑制する効果があった。これらの現象は、 TiO_2 を基材とする各種複合酸化膜合成において、化学量論組成を制御するのに有用な知見である。

第6章では、 SrTiO_3 薄膜を、流通式反応器を用いて合成を検討した結果をまとめている。流体の温度制御により微粒子生成を抑制し、また、Sr と Ti の取り込み速度をこれまでの知見をもとに制御して、化学量論組成の SrTiO_3 薄膜の合成に成功している。

第7章は総括であり、SCFD プロセスによる複合酸化物薄膜合成の利点および課題、組成制御手法などについてまとめ、今後の展望を述べている。

このように、本論文は、SCFD プロセスによる機能性複合酸化物薄膜の合成手法を、速度論的解析を中心に高度化させたものであり、マテリアル工学への貢献は大きい。よって本論文は博士（工学）の学位請求論文として合格と認められる。