

審査の結果の要旨

氏名 趙 毅 (Zhao Yi)

シリコンマイクロエレクトロニクスの進展は衰えるところを知らず高性能化は進んでいる。しかし、その中身は旧来の微細化による手法だけではなく新しい材料の導入が必須になりつつある。基本素子である CMOS 用トランジスタのゲート絶縁膜として使われているシリコン酸化膜の薄膜化は微細化の中で中心的な役割を果たしてきたが、すでに量子力学的なトンネル効果によって漏れ電流が流れてしまう程度まで薄膜化しており絶縁性を維持できなくなってきた。そこで、シリコン酸化膜に替わる新しい絶縁膜材料の導入が強く求められている。これがいわゆる高誘電率ゲート絶縁膜といわれる材料であり、本論文の主題である。一方で新材料の導入は表面的な性質だけで判断すると、実際の生産技術として適用する際に大きな問題が浮上することは過去に多く経験されており、デバイスとして使う新材料を考える場合には、ますますその材料の基本的性質、物性を理解しておく必要がある。本論文では、典型的な高誘電率希土類酸化物である La_2O_3 薄膜の性質を実験的に研究し、本材料の優れた点を引き出し、欠点を克服するための原理的解決法を実験的に示した研究報告である。本論文は6章からなる。

第1章は序論であり、昨今のシリコンマイクロエレクトロニクスの進展と、その中で今後の展開における高誘電率ゲート絶縁膜導入の必然性、その中での La_2O_3 という材料に何故注目するかを述べ、本研究の位置づけと目的を明確化している。

第2章は本研究を進めるにあたっての、薄膜材料の形成手法および評価手法について詳述している。製膜はスパッタリング法を用いているが、特に第3章で述べる吸湿性の効果を正確に調べるために、サンプルに吸湿性の無いシリコン酸化膜を堆積してキャップを施したサンプルを作製することが今回の研究成果に繋がっている。また、膜厚の測定技術として、斜入射 X 線反射率評価と分光エリプソメータ評価を主に用いたが、その原理についても説明している。

第3章は本材料の欠点である吸湿性に関して調べ、従来本材料の誘電率が文献によって大きくばらついている原因がこの吸湿性に由来していることを明らかにした。つまり吸湿性が誘電率そのものに影響していることを示した初めての報告である。また X 線回折、AFM 測定によって、 La_2O_3 は吸湿をすることによって結晶構造がまったく変化し、さらに膜表面の凹凸が著しく増加することを初めて明らかにした。

第4章は La_2O_3 の耐吸湿性を原理的に向上させる手法の提案とその実証について詳述している。中心になる考え方は相の安定化である。 La_2O_3 の吸湿性が格子エネルギーの小ささに由来していると予測し、同一の化学的性質を持つが格子エネルギーが大きいと考えられる

Y_2O_3 を導入した。その結果、耐吸湿性が大幅に向上することが実験的に示された。また、さらに La_2O_3 、 Y_2O_3 、およびそれぞれの水酸化物間の自由エネルギー変化を計算し、 Y_2O_3 導入に対するより詳細な熱力学的妥当性を議論している。

第 5 章では前章の Y_2O_3 の導入による相の安定化が、耐吸湿性の向上だけでなく誘電率を向上させることにも貢献していることを実験的に示している。 Y_2O_3 の誘電率は La_2O_3 の半分程度の値しかないことを考えると、この事実は驚くべき発見であり、結晶相の安定化の重要性を示している。一方で、結晶相を作らずに誘電率を増加させる方法として、誘電率は本来高いがイオン半径が La とは大きく異なる酸化物である Ta_2O_5 に着目し、その複合酸化物が結晶化せずに誘電率が高くなるということを実験的に示した。しかし、この場合には誘電率の増加とバンドギャップの減少という関係も実験的に明らかされ、過度な Ta_2O_5 導入は誘電率を増加させるが本来の目的である絶縁性は劣化させる事も示した。

第 6 章は本論文全体の総括であり得られた研究成果を La_2O_3 薄膜相の制御という観点からまとめ、さらに本研究の今後のさらなる展開性について述べている。

以上を要するに、本研究は La_2O_3 という材料の結晶相あるいはアモルファス相の安定化という観点に焦点を絞り、実際の製膜と薄膜の物性評価を通じて、本材料の高い潜在能力を明らかにしたものであり、希土類酸化物のシリコンマイクロエレクトロニクスへの適用において先駆的かつ極めて基本的な結果を明らかにしたと言う点でその意義は大きい。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。