

論文の内容の要旨

強誘電体は誘電性、焦電性、圧電性、強誘電性を有する材料であり、現在、圧電アクチュエーターやセンサー、強誘電体不揮発性メモリ(FE-RAM)、積層セラミックスコンデンサなど多岐に渡る分野で利用されている。また近年ではチューナブルアンテナ素子や、振動発電素子などの新しい分野への応用も期待されており、実現化すれば携帯電話の小型化や、電力を多く必要としないデバイスの無給電動作が可能となる。強誘電体材料の中でもよく用いられているのは、 $\text{Pb}(\text{Zr,Ti})\text{O}_3$ に代表される鉛系強誘電体である。 $\text{Pb}(\text{Zr,Ti})\text{O}_3$ は1952年に発見されて以来、基礎から応用まで幅広い研究が行われてきた。特に結晶構造に関しては、その優れた特性の発現にかかわる問題であるため多くの研究が行われている。この強誘電体を用いたデバイスの省電力化や小型化、高集積化を達成するためには強誘電体の薄膜化や微細加工技術が重要となってくる。またこれに伴い、高空間分解能を有する結晶構造評価手法の重要性も同時に高まっている。実際、透過電子顕微鏡(TEM)などが強誘電体薄膜の結晶構造に関する基礎研究に用いられている。しかしながら、デバイスプロセスに目を向けてみると、そこには成膜からデバイスの完成に至るまで様々なプロセスがあり、各過程で結晶構造変化が生じる可能性が存在している。これらの変化をより積極的に評価する、つまり結晶構造モニタリングすることにより、強誘電体デバイスの特性向上や歩留まりの向上など、デバイスプロセスの改善を図ることができると考えられる。結晶構造モニタリングにおいて評価手法に求められる要件としては、(デバイスの小型化や微小領域の構造評価に対応できるように)空間分解能が高いこと、デバイスの構造を破壊せず評価できること、また大気中で迅速に測定できることなどが挙げられる。現在主に用いられている結晶構造評価手法としては、X線回折(XRD)やTEM、顕微ラマン分光法などがある。XRDは非常に精度の高い構造評価が可能であるが、研究室レベルの装置では空間分解能が10 μm 程度であり、微小領域の結晶構造評価は難しい。TEMは原子レベルの高い空間分解能を有しているが、測定においては試料の薄片化が必要であり、試料形状が限定されてしまう問題がある。顕微ラマン分光法は1 μm 程度と比較的高い空間分解能を有しており、また、非破壊・非接触、測定雰囲気の影響を受けにくい、測定時間が短いなど、エンジニアリングにおいて有用な特徴を有している。また、本手法で測定できる物性は、歪や配向、組成、欠陥、キャリア濃度など多岐にわたっている。これらの特徴から、顕微ラマン分光法は結晶構造モニタリングの手法として高いポテンシャルを有しているといえる。しかしながら、そのポテンシャルを生かした利用が行われているとは言い難い。この理由としては、ラマンスpekトルの解釈が難しく、評価手法が十分に確立されていないことが挙げられる。そこで本研究では、顕微ラマン分光法の強誘電体デバイスプロセスへの応用とその評価手法の確立を目指し各種実験を行った。実験は大きく2つの枠組みに分け、基礎的な評価手法の確立及び応用的な評価手法の確立を目指す。具体的には、基礎的な評価手法の確立にお

いては、顕微ラマン分光法を用いた配向及び歪の評価手法の確立を目的とする。また、応用的な評価手法の確立においては、実際のデバイスプロセスを想定し、膜の島状加工が微小領域の結晶構造に与える影響や、実際のデバイスである PZT マイクロカンチレバーの動作メカニズムの解析を行った。

本研究より、従来のラマンスペクトルの解析においては、一つのラマンピークの強度やピーク位置から結晶構造評価が行われていたが、今回、基礎的な評価手法の確立において、ラマンスペクトルの複数ピークを用いて評価を行うという新しい進展がみられた。ラマンスペクトルは様々な物性の影響を受けるため、現在のところその利用範囲にいくつかの制限があり、他の結晶構造評価手法と組み合わせての利用が望ましい。しかし、欠陥や組成など他の物性とラマンスペクトルの相関を明らかにすることにより、今後その解決も可能であると考えられる。また、複数ピークの強度や半値幅、ピーク位置の同時解析より、ラマン分光法を用いて複数物性の同時測定が可能になることが期待される。膜の加工や、動作解析に関しては顕微ラマン分光法の有用性が示され、今後、構造の最適化や、歪や欠陥の蓄積、故障などの解析に応用され、デバイス設計における一連の評価手法として使用されていくことが期待される。