UDC 621.315.612.8.015.51-416: 621.3.049.75
546.284-31

論 文

52-A 40

極めて薄い SiO₂ 蒸着膜の絶縁破壊特性

正 員 土 田 縫 夫 (名 大)

非会員 大久保 修 (名 大)

正 員 上 田 実 (名 大)

1. ま え が き

近年, IC および LSI など代表されるマイクロエレクトロニクス方面の発展と共に, 高電界電気絶縁の問題は電力の分野のみならず電子工学の分野においても非常に重要な課題となってきた。従って, 薄膜誘電体の絶縁破壊に関しても多くの研究がなされ, 種々の実験結果と破壊機構についてのモデルが報告されている⁽¹⁾⁽²⁾。

筆者らも種々の電極金属を持つ SiO₂ 蒸着膜コンデンサの絶縁破壊特性について調べ, 陰極からの電子の注入, 電子がなだれによって生じた空間電荷による内部電界のひずみ, および電流の連続性を考慮に入れた新しいなだれ破壊理論を用いて検討を行なった⁽³⁾。その結果, SiO₂ 蒸着膜の絶縁破壊電界に及ぼす陰極金属の影響および破壊電界の膜厚依存性などについては良く説明することができたが, SiO₂ 蒸着膜の膜厚が数百 Å 以下の極めて薄い場合には絶縁破壊電界に及ぼす陰極金属および膜厚の影響が小さくなり, この膜厚の範囲においてはなだれ破壊理論を適用することは非常に困難であることを指摘した。

ところで, 一般に固体誘電体の絶縁破壊を引起す機構としては, Whitehead 氏および O'Dwyer 氏などによってまとめられているように非常に多くの説が提案されている⁽⁴⁾⁽⁵⁾。しかし, 誘電体において実際に生ずる破壊はその与えられた条件下において最も低い破

壊電界を与える破壊機構によって引起されるものと考えられる。従って, 同一物質の絶縁破壊においても温度, 膜厚および印加パルス幅などの破壊時の条件が異なれば, その絶縁破壊機構も異なる場合が多く存在する。例えば, アルカリハライドおよびポリエチレンなどの絶縁破壊においては, 破壊電界が温度上昇と共に増大するか, あるいはほとんど変化しない低温領域と温度上昇と共に破壊電界が急激に降下する高温領域があることが見つけられている⁽⁶⁾。また, 逆バイアスされた半導体の p-n 接合の破壊は接合が厚い場合にはなだれ破壊機構によって引起され⁽⁷⁾, 接合が薄く 1,000 Å 以下になると充満帯から伝導帯への電子のトンネル現象を考えたツェナ破壊機構によって引起されるものと考えられている⁽⁸⁾。SiO₂ 蒸着膜の場合においても, これらと同様に膜厚が薄くなると電離作用による電子増殖が十分に行なわれ得なくなるので, なだれ破壊機構によって与えられる絶縁破壊電界が極めて大きくなり, より小さな破壊電界を与える他の機構によって実際の破壊が生じているものと考えられる。

そこで, SiO₂ 蒸着膜の膜厚が極めて薄い場合の絶縁破壊機構を明らかにするために, 膜厚が特に数百 Å 以下の試料について, その絶縁破壊電界に及ぼす印加パルス幅, 膜厚および温度の影響などについて調べ, 更にその導電特性に及ぼす印加パルス幅および温度の影響についても調べた。そして, これらの実験結果の特性を説明するために, ツェナ破壊の場合と同様に充満帯から伝導帯への電子のトンネル現象を取扱った熱破壊理論を導入して検討を行なったところ, 理論と実験結果の傾向がよく一致することがわかったので以下に報告する。

Dielectric Breakdown Characteristics of Extremely Thin SiO₂ Films. By N. Tsuchida, Member, Osamu Ohkubo, Non-member & Minoru Ueda, Member (Faculty Engineering, Nagoya University)

土田縫夫: 正員, 名古屋大学工学部助手

大久保 修: 非会員, 名古屋大学大学院修士課程 (現在, 三菱電機株式会社勤務)

上田 実: 正員, 名古屋大学工学部教授

2. 試料の作成および測定方法

実験に使用した試料は第1図に示されているように、顕微鏡のスライド板上に3回の真空蒸着によって作成された Au-SiO-M 系の3層サンドイッチ構造の薄膜コンデンサであり、コンデンサを形成している部分の寸法は $1\text{ mm} \times 1\text{ mm}$ である。ここに、 M は上部電極を表わしており、Al または Au を用いた。本研究では SiO の絶縁層が極めて薄いので、電極面の酸化物質の影響を避けるために下部電極としては Au を用い、端効果を少なくするためにぼかし電極を採用した。なお、これらの電極の厚みはおよそ $200\text{ \AA}$ 程度である。実験に使用した SiO は大阪チタニウム製の粒度が $10\sim 20$ メッシュの高純度品であり、蒸着にはモリブデン製のボートを用いた。基板とボート源の距離はすべて 10 cm で一定である。ところで、SiO 蒸着膜の電気的特性はその蒸着条件の影響が顕著であることが知られているので⁽⁹⁾、蒸着時の真空度は $5 \times 10^{-6} \sim 1 \times 10^{-6}$ Torr、蒸着速度はおよそ $5\text{ \AA/s}$ 程度ではば一定とした。しかし、著者らによって既に報告されているように⁽¹⁰⁾、SiO 蒸着膜の絶縁破壊強さに及ぼす基板加熱の影響はほとんど見られないので、特別に基板加熱は行なわなかった。作成された SiO 蒸着膜の膜厚は M 社製の Transky 形繰返し反射干渉計を用いて 10 回程度測定し、その代数的平均値を求めた。なお、試料の膜厚が非常に薄いので測定値のばらつきはかなり大きく $\pm 40\%$ 程度にもなったが、多数回の測定を行なったのでその平均 2 乗誤差は最大で $15\text{ \AA}$ 程度であった。ところで、このような薄い SiO 蒸着

膜の均一性については Fuschillo 氏らは SiO 蒸着膜の電子顕微鏡による観察、および電子線回折による像を求めて $75\text{ \AA}$ の膜厚においては Amorphous な連続膜ができることを示している⁽¹¹⁾。また本実験に用いた試料においても、電圧印加前は電極間の短絡は生じておらず、連続的な膜が得られているものと考えられる。

さて、絶縁破壊試験にはパルス幅が $10\sim 15^{-5}\text{ s}$ の間で任意に変化でき、第2図(a)に示されているように電圧が時間の経過と共に直線的に増加する単一傾斜波パルス電圧を用いた。そして、破壊電界は印加パルスの振幅を徐々に増加してゆき、破壊による電圧の落込み、または電極間の短絡がシンクロスコープによって観測される点より求めた。

一方、導電特性は第3図のような回路を用い、試料コンデンサに直列に $1\text{ k}\Omega$ の抵抗を入れ、試料および抵抗両端の電圧を二現象シンクロスコープによって観測することによって求めた。第2図(b)は実際に試料が接続された場合のシンクロスコープ波形であり、上が試料両端の電圧を示し、下が抵抗両端の電圧を示している。同図において、試料の印加電圧波形は三角波の頭がつぶれて方形波のようになっているが、これは下の伝導電流を表わす抵抗両端の電圧波形から明らかのように、印加電圧がある臨界値を越えると伝導電流が急増し、試料が定電圧特性を示すためである。従って、〈4・2〉節においては方形波が印加されている場合と同じであると考えて解析が行なわれている。極めて薄い SiO 蒸着膜コンデンサが示すこのような定電

第1図 試料
Fig. 1. Sample.

第3図 測定回路
Fig. 3. Measuring circuit.

(a)

(b)

(c)

第2図 印加電圧波形 (横軸: $200\text{ }\mu\text{s/div}$, 縦軸: 上 1 V/div , 下 1 mA/div)

Fig. 2. Wave form of applied voltage.

圧特性は、第2図(c)に示されている実際に市販されている低電圧用のツェナダイオードの特性とほとんど同じであり非常に興味がある。

ところで、パルス電圧を用いて第3図に示されているような回路により伝導電流を求める場合には、充電電流が重畳される点に注意する必要がある。実は、第2図(a)は試料コンデンサとほとんど同じ 4,700 pF の容量を持つスチロールコンデンサに 4×10^4 V/s の電圧上昇速度を持つ単一傾斜波パルス電圧を印加した場合の波形であるが、およそ 200 μ A の充電電流が流れていることがわかる。しかし、試料コンデンサに対して同程度の傾斜波パルス電圧が印加されても、伝導電流が流れるため波形の頂部が平らになるので、電圧上昇速度はおよそ 1/10 くらいになり、充電電流もまた 1/10 程度になる。従って、今の場合のように印加パルス幅が 10^{-4} s のときでも充電電流は高々 20 μ A 程度であり、数 mA の伝導電流に対して無視することができる。

測定は温度特性を除いてすべて室温で乾燥空気中において行なったが、低温特性の測定には液体窒素を用いた恒温槽を用い、温度誤差は $\pm 1.5^\circ\text{C}$ 以内に抑えた。

3. 実験結果

〈3・1〉 絶縁破壊電界に及ぼす膜厚の影響

第4図の●印は膜厚が 100~200 Å 程度の極めて薄い SiO 蒸着膜について、特に印加パルス幅が 1 ms の場合におけるその絶縁破壊電界の膜厚依存性を示したものである。同図において絶縁破壊電界は膜厚の減少と共にわずかに増加する傾向を示している。ところで、著者らによって既に報告されているように、膜厚が数百 Å 以上の SiO 蒸着膜においてはその破壊電界は膜厚の減少と共に急激に増加し、そしてその絶縁破壊現象はなだれ破壊機構によって説明できることがわかっている⁽⁸⁾。従って、第4図に示されている極めて薄い SiO 蒸着膜の破壊電界の膜厚依存性は、膜厚が数百 Å 以上の SiO 蒸着膜において示される傾向とはかなり異なっていることがわかる。なお、図中の実線は(9)式に適当な数値を代入して計算された理論値であり、後ほど検討のところで説明される。

〈3・2〉 印加パルス幅による影響 第5図は同様に極めて薄い SiO 蒸着膜の絶縁破壊電界に及ぼす印加パルス幅の影響について示したものである。同図より、破壊電界は印加パルス幅がおよそ 10^{-3} s 以上のときはほとんど一定であるが、印加パルス幅がそれ以下になるとパルス幅の減少と共にわずかに増加することが

第4図 絶縁破壊電界強さに及ぼす膜厚の影響

Fig. 4. The effect of specimen thickness on the breakdown field strength.

第5図 絶縁破壊電界強さに及ぼす印加パルス幅の影響

Fig. 5. The effect of applied pulse width on the breakdown field strength.

第6図 絶縁破壊電界強さに及ぼす温度の影響

Fig. 6. The effect of temperature on the breakdown field strength.

わかる。

〈3・3〉 温度特性 上記の実験結果はすべて室温において測定されたものであるが、第6図は Au-SiO-Al 系の試料において Au および Al が陰極になったときの絶縁破壊電界の温度依存性について示したものである。同図より、Au および Al いずれの金属が陰極になった場合にも破壊電界は温度の低下と共にわずかに増加することがわかる。また、既に報告したように膜厚が厚い SiO 蒸着膜コンデンサでは Au および Ni など仕事関数の大きな金属を陰極としたとき破壊電界は非常に大きくなるが⁽³⁾、第6図に示されているように膜厚が 100 Å 程度の極めて薄い SiO 蒸着膜の

場合には、Au または Al いずれの金属が陰極になってもその絶縁破壊電界の差はほとんどないことがわかる。なお、図中の実線は(9)式によって求めた計算値であり、後ほど検討のところで説明される。

〈3・4〉 導電特性

(1) 印加パルス幅による影響 第7図は膜厚が $110 \text{ \AA}$ の SiO 蒸着膜について、種々のパルス幅を持った単一傾斜波パルス電圧を印加した場合の導電特性を示したものであり、後ほど充満帯から伝導帯への電子のトンネルを考えた考察を行なうために縦軸には $\log j/F^{10/3}$ を取り、横軸には電界 F の逆数を取った。同図より、一般にいずれの印加パルス幅の場合においても $\log j/F^{10/3}$ と $1/F$ はほぼ直線関係にあり、Fowler-Nordheim の式⁽¹²⁾に似た特性を示すことがわかる。また、伝導電流は印加パルス幅による影響をほとんど受けないことがわかる。なお、図中の実線は(4)式に適当な数値を代入して求めた結果である。

(2) 温度特性 第8図は(1)項の場合と同様に、非常に薄い SiO 蒸着膜の導電特性について温度をパラメータとして示したものである。同図より、伝導電流は温度変化による影響をほとんど受けないことがわかる。なお、稲垣氏らも極めて薄い SiO 蒸着膜の伝導電流について調べ、SiO 蒸着膜の膜厚が $50 \text{ \AA}$ の場合温度による影響は全くないことを報告している⁽¹³⁾。

さて、以上の実験結果から極めて薄い SiO 蒸着膜の絶縁破壊特性および導電特性についてその傾向をまとめて見ると次のようになる。

(a) 絶縁破壊電界は SiO 蒸着膜の膜厚がおおよそ $60 \sim 200 \text{ \AA}$ の範囲において、また印加パルス幅が $10^{-4} \sim 10^{-1} \text{ s}$ の範囲において、更に周囲温度が $-150 \sim +100^\circ\text{C}$ の間においてそれらの変化に対してわずかに負の依存性を持っている。

(b) 破壊強さに及ぼす電極金属の影響は非常に小さい。

(c) 一方、導電特性に関しては $\log j/F^{10/3}$ と $1/F$ が直線関係にある。

(d) また伝導電流は $-150 \sim +25^\circ\text{C}$ の温度範囲および $0.1 \sim 10 \text{ ms}$ の印加パルス幅範囲においてそれらの影響をほとんど受けない。

4. 検 討

〈4・1〉 極めて薄い SiO 蒸着膜の絶縁破壊機構

極めて薄い SiO 蒸着膜においても、絶縁破壊が生じた場合には一般に誘電体と電極が焼損されることから、その破壊も最終的には熱的現象であることは明ら

第7図 導電特性 (印加パルス幅の影響)

Fig. 7. Conduction characteristics (Influence of applied pulse width).

第8図 導電特性 (温度の影響)

Fig. 8. Conduction characteristics (Influence of temperature).

かである。しかし、そのような状態に至るまでの過程に対しては研究者によって異なった多くの理論が提案されている。O'Dwyer 氏はこれらの理論を大きく分けて (i) 熱破壊、(ii) 真性破壊、(iii) なだれ破壊、の三つに分類し、そして各々の理論が示す破壊の実験的特徴についてまとめている⁽⁶⁾。ところで、充満帯から伝導帯への電子のトンネルを考えたツェナ破壊は、時間の経過または距離が陰極から陽極に近づくにつれて伝導電子密度が増加することから、(iii) のなだれ破壊に分類されているが、衝突電離によってキャリア密度がねずみ算式に増加するというなだれ本来の意味から考えれば、この破壊はなだれ破壊とは別に考えた方が適切と思われる。

さて次に、第3章において示した膜厚が極めて薄い SiO 蒸着膜の絶縁破壊特性と、上に述べた種々の破壊理論の示す諸特性を比較して見よう。まず、破壊電界に及ぼす温度ならびに印加パルス幅の影響がかなり小さいことから、温度依存性の電流による一般的な熱破壊を考えることは困難である。また温度依存性が非常

に小さいことから、Fröhlich氏の提案した無定形物質の真性破壊⁽¹⁴⁾を考えることも不可能である。一方、破壊強さの膜厚依存性が非常に小さいことからなだれ破壊を考えることも困難である。また真性破壊理論ではただ単に伝導電子のエネルギー平衡がくずれる条件を計算するだけであり、この条件が満たされれば格子は自動的に破壊されるものと暗黙裡に仮定されている。しかし、本研究におけるように膜厚が極めて薄い場合には、そのような電子の破局が生じても高エネルギー電子は直ちに陽極に到着してしまうと考えられるので、電子的破局が格子の破壊を引起すところまで進展するかどうかはなほ疑問である。更に破壊電界に及ぼす膜厚、温度および印加パルス幅の影響は小さいとはいえ、それらの減少と共に破壊強さが徐々に増加するという結果が得られており、一般的な真性破壊理論によって、これらのことを説明することはかなり困難である。

一方、極めて薄い SiO₂ 蒸着膜の破壊前の伝導電流に関して、 $\log j/F^{10/3}$ と $1/F$ が直線関係にあり、Fowler-Nordheim の式に良く似た特性を示すということ、更に試料コンデンサはツェナダイオードと同様の定電圧特性を示すことなどを考慮に入れば、その絶縁破壊は電子のトンネル現象を考えた破壊機構によるものと考えるのが最も妥当であると思われる。ところで、このような電子のトンネル過程には、(i) 充満帯から伝導帯へ、(ii) 陰極から伝導帯へ、(iii) 陰極から陽極へなど種々のモデルが考えられているが、破壊電界に及ぼす陰極金属の影響が現われないのは (i) の過程である。(i) の過程を考えた破壊機構はツェナによって始めて提唱されたのでツェナ破壊として知られているが⁽¹⁵⁾、ここでは量子力学的に更に詳しい解析がなされている Franz 氏の理論を考えて見よう。Franz 氏は充満帯から放出された電子と充満帯に残された正孔間のクーロン力を考慮に入れた場合に試料中を流れるトンネル電流を求め、これにインパルス熱破壊の考え方を導入して破壊電界を与える式として次式を得ている。

$$F_B = \eta \ln \left\{ \frac{e \zeta \mu F_B^{16/3} N_v t_B^2}{2 C_v (T_m - T_0)} \right\} \quad \dots\dots\dots (1')$$

ここに

$$\zeta \simeq 10^{-7} (\text{s}^{-1} \text{V}^{-10/3} \text{cm}^{10/3}) \quad \dots\dots\dots (1'')$$

$$\eta = \frac{\pi \sqrt{2} m^* \epsilon_0^{3/2}}{4 \hbar e} = 4 \times 10^7 \left(\frac{m^*}{m} \right)^{1/2} \epsilon_0^{3/2} (\text{V/cm}) \quad \dots\dots\dots (1''')$$

である。また e , m^* , μ はそれぞれ電子の電荷量、

第 9 図 電子密度の時間依存性

Fig. 9. Time dependency of electron density.

有効質量および移動度であり、 N_v および ϵ_0 は価電子密度および充満帯と伝導帯とのエネルギーギャップである。更に T_0 , T_m , t_B はそれぞれ周囲温度、破壊が生ずるときの試料温度および電圧印加後破壊が生ずるまでの時間である。ところで、(1)式が成立するためには伝導帯に放出された電子が陽極に入る前に破壊が完結すること、すなわち試料の厚さを l とすれば $t_B \ll l/\mu F_B$ なる条件が満足されねばならない。この場合には伝導帯へ放出された電子の密度は、第 9 図の時間の小さい範囲に示されているように時間の経過と共に直線的に増加することになる。しかし、時間が電子の電極間走行時間、すなわち $l/\mu F_B$ より大きい場合においては電子が陽極に吸い込まれて減少するので、伝導電子密度は第 9 図に示されているように時間の経過と共にある一定値に落ち着くものと考えられる。

ところで、(1)式は印加パルス幅 t_B および温度 T_0 の増加と共に破壊電界が低下することを表わしており、この点においては実験結果の傾向と一致している。しかし、計算の過程において $l/\mu F_B$ よりもずっと短い時間で破壊が完了することを仮定しており、誘電体膜厚に関する因子が導入されていないので、第 4 図に示されているような破壊電界の膜厚依存性を説明することはできない。また、例えばいま $l=100 \text{ \AA}$, $\mu=1 \text{ cm}^2/\text{V}\cdot\text{s}$, $F_B=10^7 \text{ V/cm}$ と仮定すれば、破壊が完了するまでの時間は 10^{-13} s よりもずっと短い必要があるが、そのような短時間で破壊が実際に終わるかどうかはなほ疑問である。

そこで、次の節においてはツェナ破壊の場合とは逆に、伝導帯に遷移した電子が陽極に達するのに要する時間よりも十分に長い時間が経過後に破壊が完了する考えた新しいモデルを用いて理論を展開してゆく。この場合は第 9 図においても明らかなように、伝導電子密度の時間的変化はないと考えられる。

<4.2> 充満帯から伝導帯への電子のトンネル現象を考えた熱破壊理論 前節と同様に誘電体膜厚および

第 10 図 電流密度の電界依存性

Fig. 10. Field dependency of current density.

価電子密度をそれぞれ l , N_v とおき, 更に単位時間あたりに充満帯から伝導帯へ電子が遷移する確率を P_{vc} とすれば, 単位時間に単位体積あたり充満帯から伝導帯へ遷移する電子の総数は $N_v \cdot P_{vc}$ で与えられる。従って, 試料内部における電荷の蓄積がなければ, 伝導電流密度は次式で与えられる。

$$j = N_v P_{vc} l e \quad \dots\dots\dots (2)$$

ところで, Franz 氏によれば P_{vc} は次式によって与えられている。

$$P_{vc} = \zeta F^{10/3} \exp\left(-\frac{\eta}{F}\right) \quad \dots\dots\dots (3)$$

なお, ζ および η は(1)式の場合と同じである。そこで(3)式を(2)式に代入すれば

$$j = A \cdot l F^{10/3} \exp\left(-\frac{\eta}{F}\right) \quad \dots\dots\dots (4)$$

となる。ここに $A = \zeta N_v e$ である。

さて, いま $N_v = 10^{23} \text{ cm}^{-3}$, $l = 110 \text{ \AA}$ とおき, 種々の $(m^*/m)^{1/2} \cdot \epsilon_v^{3/2}$ の値に対して F と j の関係を求めると第 10 図のようになる。そして同図において $(m^*/m)^{1/2} \epsilon_v^{3/2} = 4.2 \text{ eV}^{3/2}$ のときの曲線を用いて実験値と対比させたのが実は第 7 図の曲線である。

ところで, このような伝導電流が流れた場合, ジュール熱が発生して試料内部の温度 (T) は上昇すると考えられるが, その関係を式で表わせば

$$C_v \frac{dT}{dt} - \text{div}(\kappa \cdot \text{grad } T) = \sigma F^2 \quad \dots\dots\dots (5)$$

となる。ここで C_v , κ , σ , t はそれぞれ試料の比熱, 熱伝導率, 導電率および時間を表わしている。

ところで試料の膜厚が非常に薄い場合において, (4)式で示されるようなトンネル電流が流れるのは膜厚が他に比べて薄くなっている部分のみと考えられる。しかし, いま電流が流れている部分のみに注目すれば, 膜厚が極めて薄いために, その付近の温度分布は近似的には第 11 図に示されているように一様であると考えられるものとする。この場合には単位時間に試料が

第 11 図 試料の温度分布

Fig. 11. Temperature distribution in specimen.

ら媒質へ逃げる熱量は $(\gamma_1 + \gamma_2)(T - T_0)$ と表わすことができ, (5)式は

$$C_v(l + 2l') \frac{dT}{dt} + (\gamma_1 + \gamma_2)(T - T_0) = j F l \quad \dots\dots\dots (6)$$

となる。ここで l , l' は誘電体および電極の膜厚であり, γ_1 , γ_2 はそれぞれ電極から基板および空気中への外部熱伝達係数である。また, 簡単のために試料の単位体積あたりの比熱としては誘電体と電極金属のその平均値を用いることができると仮定した。

さて, $t=0$ において $T = T_0$ であることを考慮に入れて(6)式を積分すれば

$$\ln\left[1 - \frac{\gamma(T - T_0)}{j F l}\right] = \frac{-\gamma t}{(l + 2l')C_v} \quad \dots\dots\dots (7)$$

となる。ここに, $\gamma = \gamma_1 + \gamma_2$ である。

ところで, <4.1> 節のときと同様に $T = T_m$ になれば破壊が生ずるとすれば, (7)式に(4)式を代入することにより, 破壊電界 F_B は次式によって与えられる。

$$F_B = \frac{\eta \{1 - \exp[-\gamma t_B / C_v(l + 2l')]\}}{\ln\{A \cdot l^2 \cdot F_B^{13/3} / \gamma(T_m - T_0)\}} \quad \dots\dots\dots (8)$$

さて, 上式において電圧印加時間 t_B を ∞ におけば右辺の指数関数項は零になり, 印加パルス幅が非常に大きい場合, すなわち直流が印加されたときの破壊電界 F_{BD} を求めることができる。

$$F_{BD} = \eta / \ln\{A \cdot l^2 \cdot F_{BD}^{13/3} / \gamma(T_m - T_0)\} \quad \dots\dots\dots (9)$$

この式は(6)式において $dT/dt = 0$ とおき, 温度の時間的な変化の項を無視して求めた場合と同じである。

一方, 印加パルス幅が極めて短い場合には発生した熱の拡散はほとんどないので, (6)式の第 2 項は無視することができる。この場合の破壊電界 F_{BP} は次式のようにツェナ破壊理論によって与えられている(1)式とよく似た形となる。

$$F_{BP} = \eta / \ln\{A \cdot l \cdot F_{BP}^{10/3} t_B / C_v(T_m - T_0)\} \quad \dots\dots\dots (10)$$

ところで、以上述べてきた理論は一般には完全結晶のように原子配列が広い範囲にわたって秩序正しい場合において適用されるべきものである。しかし、無定形物質においては広い範囲にわたる原子配列の秩序性はなく、この場合のエネルギー準位はエネルギーギャップ ϵ_0 の中に局在化された準位がはみ出たような形になる。従って、厳密な意味ではこの節で展開してきた理論を無定形物質の場合に適用することはできないが、局在しているエネルギー準位をも考えに入れた平均的なエネルギーギャップを考えれば、無定形物質に対しても形式的には上述の理論を適用することができるものと考えられる。

そこで、次節においては極めて薄い SiO 蒸着膜の絶縁破壊特性に対して、この節で展開した理論を用いて検討を行なう。

〈4.3〉 実験結果と理論の比較 第 12 図は (9) 式から定常状態における絶縁破壊電界と $\gamma(T_m - T_0)$ の関係を種々の誘電体膜厚に対して求めた結果である。なお、 η および A などの値は第 7 図の導電特性を求めたときの値を用いた。同図より、一般に破壊電界は膜厚および周囲温度の減少と共にわずかに増加する傾向にあることがわかる。

ところで、物質と物質の界面における熱の伝達の程度を示す γ の値について詳しく調べられた例はあまりないようであるが、Михеев 氏は気体から水、および水から水への熱伝導の場合の γ の値としてそれぞれ 0.006 および 0.1 W/cm² deg 程度の値を示している⁽¹⁶⁾。SiO 蒸着膜コンデンサの場合、熱は主として電極からガラス基板へと拡散するものと考えられ、 γ の値は 0.1 W/cm² deg より大きいものと推察される。そこで一例として、 $\gamma = 1$ W/cm² deg、 $T_m - T_0 = 1,000$ °C とおいて第 12 図から絶縁破壊電界と膜厚の関係を求めたのが、実は先に示した第 4 図に示した実線であり、理論的に求められた破壊値の示す傾向は実験結果の傾向と一致していることがわかる。

また、第 12 図において $l = 100$ Å とおいて破壊電界の温度依存性を求めて対比したところ第 6 図の実線のようになった。

一方、第 13 図は任意のパルス幅のときの破壊電界を表わす (8) 式を用いて、種々の γ の値に対する破壊電界と印加パルス幅の関係を求めたものである。なお Au, Al および SiO の比熱はほぼ同じ大きさであるので、全体の平均的な比熱の値として 2.68 J/cm³ deg を用い、また $l = l' = 150$ Å とした。

同図より、印加パルス幅が大きいときは破壊電界に及ぼす印加パルス幅の影響はほとんどないが、 γ の値

第 12 図 絶縁破壊電界強さの理論値

Fig. 12. Theoretical results of breakdown field strength.

第 13 図 絶縁破壊電界強さに及ぼす印加パルス幅の影響

Fig. 13. Dependence of applied pulse width on breakdown field strength.

が大きいほど破壊電界が大きくなることがわかる。一方、印加パルス幅が小さいときは破壊電界に及ぼす γ の影響はほとんどないが、印加パルス幅の減少と共に破壊電界が大きくなることがわかる。

ところで、同図において破線で示されているのは実は先に示した第 5 図の実験結果の値であり、 γ の値として 0.01 および 1.0 W/cm² deg の値を用いて求めた理論曲線の間に入っていることがわかる。なお印加パルス幅が 10^{-4} s 以下においてはパルス幅の減少と共に破壊電界が増加しているが、これは熱的平衡が得られる前に破壊が生ずる場合には破壊電界が上昇するためと考えられる。また同図において外部熱伝達係数が γ_P という値を取るとき、破壊電界に対する印加パルス幅の影響が現われてくるパルス幅の値を t_P とすれば、 γ_P と t_P の積はいずれの曲線の場合も 10^{-5} J/cm² deg で一定であることがわかる。これは (8) 式において印加パルス幅の影響を表わす指数関数項が γt の形の因子を含んでいることによる。従って、このことから印加パルス幅の影響が現われてくる印加パルス幅 t_P を実験的に求めることにより、逆に γ の値を推定できる

ことがわかる。

5. む す び

極めて薄い SiO₂ 蒸着膜の絶縁破壊特性について述べてきたが、その主要な点を総括すれば次のようである。

(1) 極めて薄い SiO₂ 蒸着膜コンデンサについて、その絶縁破壊電界に及ぼす印加パルス幅、膜厚、温度などの影響などについて調べ、更にその導電特性についても調べてそれらの結果を示した。

(2) そして、その破壊は充満帯から伝導帯への電子のトンネル現象を考えた機構によって引起されるものと考えられたが、伝導電子密度が時間の経過と共に直線的に増加するとした Franz 氏によって解析がなされたツェナ破壊理論よりも、伝導電子密度が一度一定値に落着いて、その後に破壊が生ずるとした著者の提案した破壊機構の方が得られた実験結果をよく説明できることがわかった。

最後に、本研究をまとめるにあたって数々の有益なる御教示をいただいた名古屋大学教授 家田正之先生および同教授 堀井憲爾先生に深く感謝いたします。

また、この研究に対して日立製作所半導体事業部から多大の援助を賜ったことに対して厚く感謝いたします。

(昭和 51 年 2 月 5 日受付, 同 52 年 1 月 13 日再受付)

文 献

- (1) J. J. O'Dwyer: J. Phys. Chem. Solids **28**, 1137 (1967)
- (2) N. Klein: Thin Film Dielectrics p. 43 (1969) Bell Telephone Laboratories
- (3) 土田・上田: 電気学会論文誌 **93-A**, 269 (昭 48-7)
- (4) S. Whitehead: Dielectric Breakdown in Solids (1951) Oxford, London
- (5) J. J. O'Dwyer: The Theory of Dielectric Breakdown of Solids, (1964) Oxford, London
- (6) 電気学会: 放電ハンドブック p. 433 (昭 49-2)
- (7) A. G. Chynoweth: Progress in Semiconductors **4**, 97 (1960)
- (8) McAfee, et al: Phys. Rev **83**, 650 (1951)
- (9) G. Siddall: Vacuum **9**, 274 (1960)
- (10) 稲垣・土田・仁田: 電学誌 **89**, 1808 (昭 44-9)
- (11) N. Fushillo, et al.: J Appl. Phys. **36**, 575 (1965)
- (12) R. H. Fowler, L. Nordheim: Proc Roy Soc., ser. A **119**, 173 (1928)
- (13) 稲垣・足立・仁田: 電学誌 **90**, 640 (昭 45-4)
- (14) H. Fröhlich: Proc. Roy. Soc., ser. A **118**, 521 (1947)
- (15) C. Zener: *ibid.* **145**, 523 (1934)
- (16) M. Михеев (内田, 他訳): 基礎伝熱工学, p. 335 (1966) 東京図書