スパッタリング法で作製した SrTiO_3 薄膜の 結晶性と誘電特性*

田中 伸治**・山田 一**・中川原 修**
小林 真人**・田中 克彦**・片山 祐三**

(受理1997年1月6日, 掲載決定1997年2月1日)

Crystallinity and Dielectric Properties of SrTiO_3 Films Prepared by Sputtering

Shinji TANAKA, Hajime YAMADA, Osamu NAKAGAWARA,
Masato KOBAYASHI, Katsuhiko TANAKA and Yuzo KATAYAMA

(Murata Manufacturing Co., Ltd. 2-26-10 Tenjin, Nagaokakyo, Kyoto)

(Received January 6, 1997, Accepted February 1, 1997)

1. はじめに

SrTiO_3 は強誘電性がなく, 比誘電率がバルク値で300程度と比較的高いため, 近年 SiO_2 , SiN_x 等に代わる高周波用デバイスの高誘電率薄膜材料として有望視されている¹⁾.

SrTiO_3 薄膜を回路素子として応用する場合, 素子の作製プロセス上, 成膜温度が低い方が好ましい. このため成膜温度をできるだけ下げ良好な特性を得ることに心が寄せられている. SrTiO_3 薄膜の場合, SiO_2 , SiN_x 等の非品質の誘電体薄膜とは異なり, 誘電特性の成膜温度依存性や膜厚依存性が顕著に現れてくる²⁾. これらの依存性を把握しておくことがペロブスカイト型結晶構造を有する誘電体薄膜の作製において重要である.

本報告では成膜温度280°Cの低温で作製した薄膜の結晶性と誘電特性の膜厚依存性を評価し, 成膜初期層の影響について明らかにする.

2. 実験および評価方法

成膜方法にはRFマグネトロンスパッタリング法を採用し, ターゲットとして SrTiO_3 焼結体を用いた. ガス

種にはアルゴンと酸素の混合ガスを使った. 基板にはPt/Ti/ガラスを用いた. SrTiO_3 薄膜の膜厚は成膜時間で制御し, 段差計を用いて測定した. 本実験では成膜温度280°Cと固定し, 膜厚を35~350 nmの範囲で変えた試料を作製した.

結晶性の評価にはXRD(薄膜法)とTEMを用いた. また誘電特性はPtを下部電極とし, SrTiO_3 薄膜上に電極のパターニングをすることで形成されたMIMキャパシタを用いて, インピーダンスアナライザにて1 MHzで評価した.

3. 実験結果

Fig. 1に35~350 nmの膜厚で作製した SrTiO_3 薄膜のXRDの測定結果を示す. いづれの膜厚においても(110)等のピークが現れており, 多結晶であることがわかる. 最も大きいピークである(110)に注目すると, 膜厚が35 nmから70 nmへ厚くなると半値幅が減少し結晶性の向上がみられる. また若干ではあるが, 70 nmより厚くなるとピークが鈍ってくる傾向がある.

Fig. 2に SrTiO_3 /Pt電極界面の断面TEM写真を示す. この図から成膜の初期ではアモルファス相になっていることがわかる. アモルファス相の厚さは10~50 nmとばらついており, 平均して30 nm程度である.

Fig. 3に SrTiO_3 薄膜の膜厚と比誘電率との関係を示す. 膜が薄くなると比誘電率が急激に減少する. Fig. 3

* 1996年10月30日 第37回真空に関する連合講演会に於いて発表

** 関村田製作所技術開発本部 (〒520-23 滋賀県野洲郡野洲町大字大篠原2288)

Fig. 1 XRD patterns of SrTiO_3 films on Pt/Ti/glass substrates.

Fig. 2 Cross-sectional TEM image of a SrTiO_3 film on Pt.

のデータを基にカーブのフィッティングを行い、膜厚 50 nm ごとに層分離して膜厚方向の各区間における比誘電率を求めると Fig. 4 のようになる。膜厚の区間は計算上任意にできるが、実測値を考慮し 50 nm 間隔とした。膜厚 0 nm は SrTiO_3/Pt 電極界面である。Fig. 4 から 0~50 nm では比誘電率が 39 と低く、成膜初期層は低誘電率であることがわかる。実際の低誘電率層の厚さは 50 nm 以下である。また、50 nm~100 nm では比誘電率が 173 と急激に増加する。100 nm 以上になると比誘電率は緩やかに減少している。

4. 考 察

Fig. 3 に示す比誘電率の膜厚依存性の主要因は、Fig.

Fig. 3 Dielectric constant dependence on thin-film thickness.

Fig. 4 Dielectric constant dependence on a fixed region in the direction of the thickness. A fixed region is 50 nm thick.

4からわかるように成膜初期層が低誘電率になっているためである。この低誘電率層があるために比誘電率は膜厚300 nm ぐらいまでは大きな変化を示し、~300 nm 以上では比較的低い値で飽和しはじめてしまう。成膜初期層での誘電率を上げることが膜全体の誘電率を上げるのに重要である。

成膜初期層の結晶構造はアモルファスであり、低誘電率層に対応していると考えられる。アモルファスであるためにペロブスカイト構造に起因する分極を発生させることができず誘電率が低くなっている。XRDの結果からも同様のことが推測される。すなわち、膜厚35 nmでは大半がアモルファス相であるが、若干の結晶相が含まれている。このためXRDではブロードなピークを示している。膜厚70 nmでは結晶相の領域が増えるのでピークは鋭くなり、誘電率も上がる。

5. ま と め

成膜温度が280°Cと比較的低い場合、SrTiO₃薄膜の成長初期にはアモルファス相が形成され、膜厚がおおよそ30 nm 以上で結晶化がはじまる。膜厚方向の比誘電率は下部電極より50 nm 程度のところで急激に変化している。高い誘電率を持つSrTiO₃薄膜を作製するには、成膜初期層の結晶性の向上が重要である。

〔文 献〕

- 1) K. Ikuta, Y. Umeda and Y. Ishii: Int. Conf. Solid State Devices and Materials, (1995) 509.
- 2) 中川原修, 田中伸治, 出口洋一, 斎藤 彰, 小林真人, 田中克彦, 片山祐三: 1996年秋期応用物理学会 7a-F-2.