

リラクサ強誘電体薄膜とそのデバイスへの応用

並列分散処理研究分野 南部信次
京セラ株式会社総合研究所

リラクサ強誘電体薄膜は高速デジタル回路・高周波回路・光／電子回路へのデバイス応用が期待されるだけでなく、複雑系の相転移を示す興味深い材料でもある。その特徴は広い温度範囲にわたり大きな誘電率と周波数分散を示しかつ巨視的な自発分極を持たない点にある。代表的な複合ペロブスカイト酸化物 $\text{Pb}(\text{Mg}_{1/3}\text{Nb}_{2/3})\text{O}_3$ [PMN] においては、数 nm サイズのマイクロクラスターが観測されている。本稿ではその大きな誘電率を利用した高速デジタル回路におけるデカップリングキャパシタへの応用を述べるとともに、今後の情報・通信デバイスへの応用にとって本質的と思われる諸問題、非線形応答とその誘電応答の実体についての理論的考察もおこなう。

1 はじめに

21 世紀の情報・通信技術の根幹をなす集積回路／電子部品の世界は、これまでにない変貌を遂げつつある。大容量の情報伝達、高速情報処理システムをだれでも、どこでも利用できる時代になるうとしている。デジタル回路の高速化や無線 RF 回路の高周波化・多重波送受信システムに伴う高機能集積電子回路／部品の創造が強く求められている。強誘電体を利用したデバイスは古くから提唱されていたが、最近の薄膜合成技術の進歩 [1] によってその薄膜デバイスとしての応用分野が格段に広がつつある。本稿においては、今後の高速デジタル回路における同時スイッチングノイズを解決する手段であるデカップリングキャパシタ応用の詳細を述べるとともに、リラクサ強誘電体の誘電応答の実体を探る。また、高周波無線 RF 回路における Tunable Device への応用を目指した強誘電体の非線形応答理論にも言及したい。

2 薄膜キャパシタ

最近の高速デジタル回路の進歩はめざましく、VLSI の集積度とクロック周波数の飛躍的な増大が実現されてきている。一方、それに伴って回路の電源供給系における ΔI ノイズや同時スイッチングノイズがオフチップ回路 [2 - 4] や、最近ではオンチップ回路 [5] においても IC の動作に深刻な影響

をおよぼすことが明らかになってきている。これらノイズの発生原因は、高速パルス電流がインダクタンスをもつ信号ラインを流れる際に生じる瞬時の電圧降下が重ね合わされるためであり、導体配線を用いるかぎり避けられない物理的必然である。今後のデジタル回路の集積化・高速化・低電圧化でますますこの問題は深刻となる。この電源電圧の降下を瞬時に補うため、電荷供給源としてのキャパシタが必要とされる。その際キャパシタは電荷を蓄える能力（容量）のみならず、それ自体の電極や構造によるインダクタンスが小さくなければ効果的な機能は果たせない。Dimos ら [6, 7] によって PLZT 薄膜を用いたデカップリングキャパシタが提案されたが、キャパシタ自体のインダクタンスが通常のチップコンデンサと同程度であり高速回路における同時スイッチングノイズの除去という観点からは実用的ではなかった。デカップリングキャパシタに不可欠な要素は、十分な容量をもち低インダクタンス、低抵抗であることである。誘電率が大きな薄膜を用いるだけでなく、低インダクタンスを与える電極構造や回路との接続方法、低抵抗電極の適切な選択など、実用レベルではさまざまな課題を克服する必要がある。 $\text{Pb}(\text{Mg}_{1/3}\text{Nb}_{2/3})\text{O}_3$ [PMN] 系リラクサ薄膜は後で述べるように誘電率が大きく ($\epsilon \sim 3000$) その温度変化も実用レベルにある。通常は B - サイト原子 Mg と Nb の局所的な (nm サイズ) 規則配列を制御するため、ゾルゲル法が用いられる [8]。上で述べたデカップリングキャパシタの要件を考慮した基本

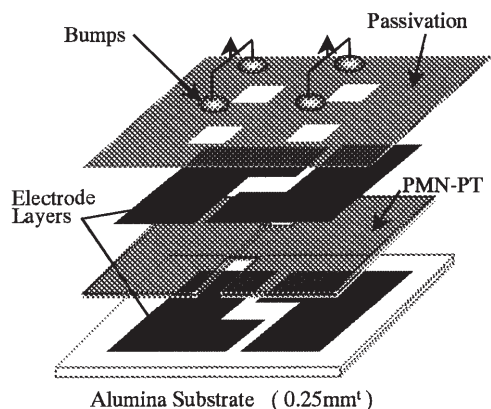


図1 薄膜キャパシタの基本構造

構造を図1に示す．基板は強度とコストの観点から多結晶アルミナを採用し，その上に Au/PMN-PT/Au の MIM 構造を作製し，保護膜，BGA ハンダバンプをその上に形成した構成である．左の下部電極は右の上部電極と，右の下部電極は左の上部電極とそれぞれ接続され，対向する電極を流れる電流パスが逆方向となって相互インダクタンスが小さくなるよう設計されている．この点は後にシミュレーション結果を示す．また，電圧の取り出し端子は4箇所とし，そのマルチ端子分だけインダクタンスと抵抗値が低減される．図2にMIM構造の断面写真を示す[9]．誘電体は $\text{Pb}(\text{Mg}_{1/3}\text{Nb}_{2/3})\text{O}_3\text{-PbTiO}_3$ であり，厚みが $0.8\text{ }\mu\text{m}$ である．誘電体はゾルゲル溶液からスピンコートと熱処理（約 800°C ）で形成し，Au電極はスパッタ法で形成した．下部および上部電極の厚みは $0.3\text{ }\mu\text{m}$ である．Au電極を用いた理由はPt電極に比べ等価直列抵抗値が小さく，より低いインピーダンス特性が得られるからである．実際，基板に実装した形で測定すると，このキャパシタの等価直列抵抗値はPtで $0.75\text{ }\Omega$ ，Auで $0.1\text{ }\Omega$ でありその違いは大きい．図1に示した電極に階段状の電流を流したときのシミュレーション結果を図3に示す．計算はPartial Element Equivalent Circuit法(PEEC)でおこなった[9]．左側の2つのハンダバンプの中心の点から電流を流し，右側の2点から取り出す場合の計算である．矢印の大きさが電流密度を表している．インダクタンスは 135pH となり，実測とほぼ一致する結果である．重要な点は，電流が平行に流れることによって相互インダクタンスが大きくなるため，電流分布を明らかにすることによって上下，あるいは左右の電極に流れる電流を逆方

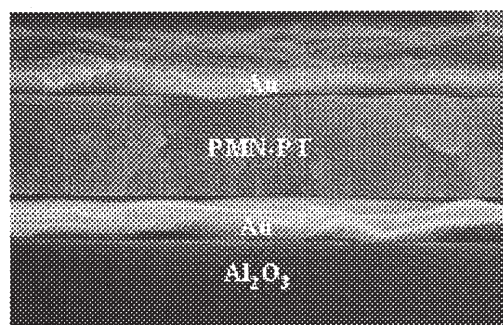


図2 断面 SEM 写真 (Al₂O₃/Au/PMN-PT/Au)

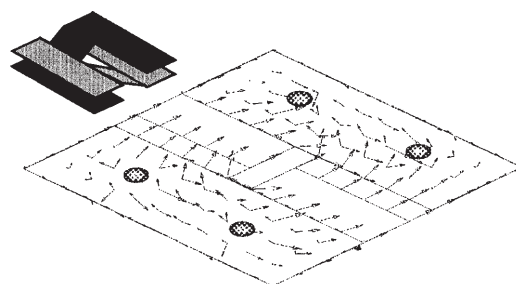


図3 Partial Element Equivalent Circuit Model による電流分布シミュレーション

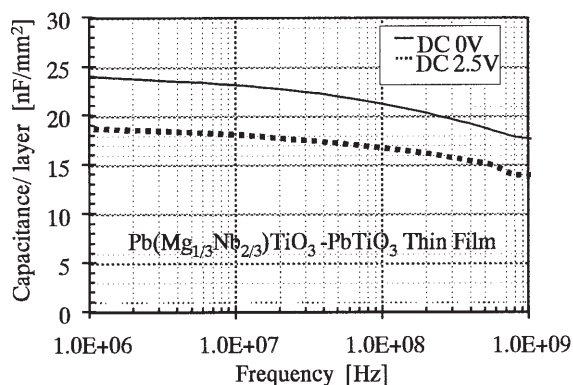


図4 ボード実装後のキャパシタの高周波特性

向，あるいは垂直方向に分布させることにある．このことから解かるように，低インダクタンスを与える電極構造のデザインは極めて重要であり，しいてはデカップリングキャパシタの機能にとって決定的な因子となる．図4に実装後のキャパシタの周波数特性と電圧依存性を示す．このようなマルチ端子のキャパシタ特性は通常基板に実装して測定しなければならないため，基板とキャパシタの間の浮遊容量や付加抵抗部分の影響を補正するための工夫が必要である．詳細は文献にゆずるが[9]，インピーダンス測定結果を等価回路モデルでフィティングし，

浮遊容量や付加抵抗を決定した．ここで示した結果はBGA はんだパンプで実装するタイプのキャパシタであるが，オンチップ回路のデカップリングではIC 回路に直接集積できれば多大な効果が期待できる．そのためには，強誘電体薄膜形成プロセスが現在の半導体プロセスとコンパチブルとなる必要がある．その本質は酸化物強誘電体薄膜の低温合成の実現にある．

2 リラクサ強誘電体の物性

リラクサ強誘電体と呼ばれる一連の物質においては，ナノメータスケールのマイクロクラスターの存在が明らかにされており，通常の強誘電体とは異なった電気物性を示すことが知られている．誘電率が2 万を超すバルク材料も知られており，キャパシタ材料としては勿論のこと，電歪素子や電気光学素子への応用も考えられている．ここでは典型的なリラクサ強誘電体である $\text{Pb}(\text{Mg}_{1/3}\text{Nb}_{2/3})\text{O}_3$ をとりあげ，有限の大きさを持つ分極クラスターが温度を下げていった場合に次々と相転移（凍結）してゆく描像をランダウ理論で数学的に定式化し，具体的な実験結果との比較を示す．分極クラスター $p(\lambda)$ で展開された自由エネルギーが以下のように書ける [10]．

$$\begin{aligned} [F]/N = & \{ P\{p(\lambda)\} \\ & = 2^{-1}\alpha_1 P^2 + 4^{-1}\alpha_{11} P^4 + 6^{-1}\alpha_{111} P^6 \\ & + 2^{-1}\gamma P^2 \sum p(\lambda) + 2^{-1}\sum x(\lambda)x(\lambda') + 4^{-1}a_{11}\sum x(\lambda)x(\lambda') \\ & + 4^{-1}a_{11}\sum x(\lambda)x(\lambda')y(\lambda,\lambda')x(\lambda')p(\lambda) \}, \quad (1) \end{aligned}$$

ここで， $p(\lambda)$ の2 次の展開係数 $\alpha(\lambda)$ は

$$\alpha(\lambda) = (T - T_0) / \epsilon_0 C, \quad (2)$$

と書け， $x(\lambda)$ はクラスターのサイズ， $y(\lambda, \lambda')$ はクラスター λ と λ' との重なり部分のサイズである．自由エネルギー最小の条件を課すと，温度を下げるに従って次々と有限のサイズを持つ分極クラスターが出現するという解が得られる ($p(\lambda) \neq 0$)．基本的には有限サイズの分極クラスターが次々と凍結するのであるが，クラスター間の重なり部分は先に凍結したクラスターに占有されており，すべての空間が凍結した分極クラスターで埋め尽くされると，残りのモードの凍結は阻害される．誘電率は以下の式のように計算される．

$$\epsilon(T) = C [T - T_0 + \epsilon_0 C \gamma \alpha(T)], \quad (3)$$

この式の中の $\alpha(T)$ はいわゆるグラスオーダーパラメーターであり，

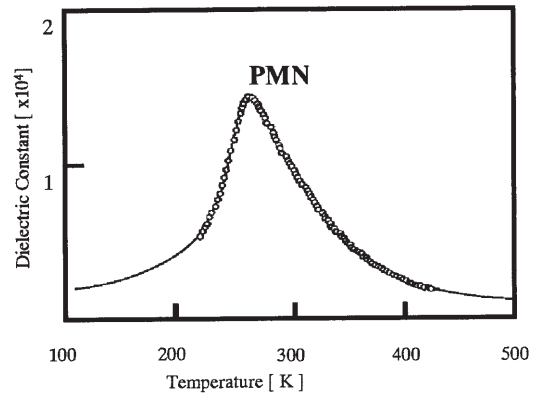


図5 理論と実験結果とのフィッティング

$\alpha(T) = \int d\mu \rho(\mu) [\xi(\mu) a_0] [1 - \alpha(\mu)] p_0(\mu)$, (4) である． ρ は相互作用行列の固有値分布関数， $[\xi(\mu) a_0]$ はクラスターの体積， n は系全体で凍結した領域の割合， $p_0(\mu)$ は各分極クラスターの熱平均値である．具体的な数値は誘電率の測定結果に理論計算をフィッティングさせ，最小2 乗近似で最適化して定めた．図5 に $\text{Pb}(\text{Mg}_{1/3}\text{Nb}_{2/3})\text{O}_3$ に対する実験値と理論計算の比較を示す．PMN の場合は理論計算と実験結果が非常によく一致している．さらに，誘電率のフィッティングから定めた現象論的パラメーターの値を用いて分極クラスターのサイズ，すなわち Localization length ξ を求めると約 2.1nm となり，TEM で観測されている2 種類のB サイトイオンの秩序配列領域の大きさとほぼ一致する結果 [10] が得られる．しかしながら，(quasi-) 静的な現象論では低温側の凍結した局所分極どうしの相互作用とスローダイナミックスの記述は困難である．リラクサの本質的理解のためにも，動的な理論の構築が必要である．

4 Tunable Device と非線形応答

大容量情報通信を目指して，マイクロ波応用分野で強誘電体薄膜を用いた可変容量素子 (Tunable Capacitor) の研究が近年盛んになりつつある．強誘電体の非線型性（電界強度によって誘電率が変化する）を利用して，フィルタの通過帯域をバイアス電圧で可変にしたり，また位相速度を制御するフェーズシフタやフェーズドアレイアンテナの開発が現実味をおびてきている．バルクの強誘電体を用いた電圧制御可変容量素子のコンセプトは古くからあり，

(Ba, Sr)TiO₃ (BST) のような高誘電率材料が提案されていた。しかしマイクロ波帯で低容量かつ実用的な低バイアス電界での容量変化を得るには、バルク素子では十分でなく、真剣な実用化は試みられなかった。高誘電率系薄膜、特に BST は次世代 DRAM 材料と目され半導体メーカーの研究も盛んであり、BST 薄膜を中心に研究開発が進められているのが現状である。バイアス電界が無い場合の線形誘電率の周波数依存性は緩和型モデルに従うとすれば以下で与えられる。

$$\varepsilon[\varepsilon_i(\omega)\varepsilon_\infty - \varepsilon_0[\varepsilon_i(0)\varepsilon_\infty]/[1+(\omega\tau_{\text{eff}})^2]], \quad (5)$$

$$\varepsilon_0\varepsilon(\omega) = \varepsilon[\varepsilon(0)\varepsilon_\infty - \varepsilon_0\tau_{\text{eff}}[1+(\omega\tau_{\text{eff}})^2]], \quad (6)$$

$$\tau_{\text{eff}} = \varepsilon_0 C \tau_0 [T - T_c] [T > T_c] \\ = \varepsilon_0 C \tau_0 / 2 [T_c - T] [T < T_c] \quad (7)$$

ここで、C は Curie 定数、 ε_∞ は光領域以上の誘電率で通常は 10 程度、 τ_0 は単位分極の緩和時間である。T_c は強誘電体の転移温度である。これからバイアス電界が無い場合の誘電損失は

$$\tan\delta = \varepsilon(\omega) [\varepsilon(\omega)\varepsilon_\infty - \varepsilon_0\tau_{\text{eff}}], \quad (8)$$

で与えられる。一方、誘電応答の非線型性を考慮に入れると、緩和型モデルを以下の動的な緩和方程式 (TDGL 方程式) で記述できるとする。

$$\tau_0 \partial p(t) / \partial t = -\delta[\{p(t)\}p(t)E(t)]\delta p(t), \quad (9)$$

自由エネルギー関数 $\mathcal{F}(p(t))$ は

$$\mathcal{F}(p(t)) = 2^{-1} A p(t)^2 + 4^{-1} B p(t)^4. \quad (10)$$

リラクサ強誘電体の場合を念頭におけば、“凍結”したローカルなモードは十分ゆっくりした運動で、

高周波電場 $E(t)$ とは decouple できるとすると (3) を参照して

$$A = (\varepsilon_0 C)^{-1} [T - T_c] + \gamma q(T), \quad (11)$$

と書ける (B > 0)。緩和方程式 (9) を解けばバイアス電界 E_0 が存在するときの非線型応答が以下のように計算される。

$$\varepsilon_0 \varepsilon_{\text{eff}}(\omega, E_0) = \varepsilon_0 \chi^{(1)}(\omega) + \varepsilon_0 \chi^{(2)}(\omega, 0) E_0 + \varepsilon_0 \chi^{(3)}(\omega, 0, 0) E_0^2 \\ = \varepsilon_0 \chi^{(1)}(\omega) + B [\varepsilon_0 \chi^{(1)}(\omega)] [\varepsilon_0 \chi^{(1)}(0)] E_0^2, \quad (12)$$

$$\tan\delta(\omega, E_0) = \omega \tau_{\text{eff}} [1 - B [\varepsilon_0 \chi^{(1)}(0)] E_0^2 \\ + H.O.(E_0)], \quad (13)$$

$$\tau_{\text{eff}} = \tau_0 [(\varepsilon_0 C)^{-1} (T - T_c) + \gamma q(T)], \quad (14)$$

となる。GHz 帯あるいはそれ以上の交流電場に対する強誘電体の応答を議論する場合、上のような単純な緩和型モデル、かつ単分散でよいのかという問題はあるが、まず第一ステップとしてはこのような単純なモデルで実験データを詳細に吟味する必要がある。どのような材料がどの周波数帯で低損失であるかの問題に答えようとするれば、誘電応答を担う実体とその運動に伴うロスのメカニズムを解明する必要がある。強誘電体材料の基礎的な問題が、デバイス開発と直接結びついている例である。

4 おわりに

本研究は京セラ株式会社総合研究所の共同研究者とともになされた。ここに、感謝の意を表する。

【参考文献】

- [1] *Electroceramic Thin Films Part I Processing*, O. Auciello and R. Ramesh, ed., MRS BULLETIN/JUNE, 21 (1996).
- [2] B. D. McCredie and W. D. Becker, IEEE Trans. Comp., Packag., Manufact. Technol. Part B 19, 461 (1996).
- [3] J. P. Libous and D. P. O'Connor, IEEE Trans. Comp. Packag., Manufact. Technol. Part B 20, 266 (1997).
- [4] W. D. Becker, J. Eckhardt, R. W. Frech, G. A. Katopis, E. Klink, M. F. McAllister, T. G. McNamara, P. Muench, S. R. Richter, and H. H. Smith, IEEE Trans. Comp., Packag., Manufact. Technol. Part B 21, 157 (1998).
- [5] H. H. Chen and J. S. Neely, IEEE Trans. Comp., Packag., Manufact. Technol. Part B 21, 209 (1998).
- [6] R. W. Schwartz, D. Dimos, S. J. Lockwood, and V. M. Torres, Integrated Ferroelectrics 4, 165 (1994).
- [7] D. Dimos, S. J. Lockwood, R. W. Schwartz, and S. T. Rodgers, IEEE Trans. Comp., Packag., Manufact. Technol. Part A 18, 174 (1995).
- [8] S. Nagakari, K. Kamigaki, and S. Nambu, Jpn. J. Appl. Phys., 35 [9B], 4933 (1996).
- [9] F. Fukumaru, S. Nagakari, S. Konushi, H. Nishikawa, K. Kamigaki, and S. Nambu, Mat. Res. Soc. Symp. Proc. Vol. 541, 573 (1999).
- [10] S. Nambu and K. Sugimoto, Ferroelectrics, 198, 11 (1997).