

HfO₂ 基強誘電体の結晶構造と特性の熱処理温度依存性

Change of crystal structure and properties with heat treatment in ferroelectric

HfO₂-based films

東工大総理工¹, 東工大元素², 上智大理工³, 東北大金研⁴, NIMS⁵, 東工大物院⁶
 ○三村和仙¹, 清水莊雄², 内田寛³, 木口賢紀⁴, 赤間章裕⁴, 今野豊彦⁴, 坂田修身⁵, 舟窪浩^{1,2,6}
 Tokyo Tech. IGS¹, Tokyo Tech. MECS², Sophia Univ. FST³, Tohoku Univ. IMR⁴, NIMS⁵, Tokyo Tech.
 DMSE⁶

○Takanori Mimura¹, Takao Shimizu², Hiroshi Uchida³, Takanori Kiguchi⁴,
 Akihiro Akama⁴, Toyohiko J. Konno⁴, Osami Sakata⁵, Hiroshi Funakubo^{1,2,6}

E-mail: mimura.t.ac@m.titech.ac.jp

【緒言】 蛍石構造を持つ斜方晶相 HfO₂ 基強誘電体薄膜は、従来のペロブスカイト型強誘電体薄膜と異なり、20 nm 以下の膜厚でも安定して強誘電性を発現でき、極薄膜強誘電体を用いたデバイスの応用が期待されている [1]。これまでに報告されてきた HfO₂ 基強誘電体薄膜は低温で製膜にした非晶質膜を、その後の熱処理によって結晶化しており (ポストアニール法)、得られた膜は常誘電相と強誘電相が混合した無配向の多結晶膜であった。我々は基板を選択することにより、ポストアニール法によっても、配向制御した HfO₂ 基強誘電体の作製に成功したことを報告している [2]。今回は、配向制御した HfO₂ 膜を用いて、熱処理による結晶構造と特性の変化について詳細に調べたので報告する。

【実験】 パルスレーザー堆積法により、0.07YO_{1.5}-0.93HfO₂ (YHO7) 焼結体をターゲットとして室温で薄膜を製膜した。基板には、(111)ITO/(111)YSZ (以下 ITO/YSZ) を用いた。得られた膜について熱処理を行い、結晶構造および電気特性の変化を調べた。

【結果と考察】 Fig. 1(a)および(b)に、YSZ11-1 付近の室温で製膜した膜と 1000℃で熱処理した膜の 2θ-Psi マッピング結果を示す。Fig. 1(a)の室温で製膜した膜では、111 および 11-1 のピーク分離が確認でき、この膜は結晶化した単斜晶相から構成されているのが分かる。一方、Fig. 1(b)の 1000℃で熱処理後の膜では、単斜晶相由来のピークは見られない。Fig. 1(c)および(d)に{110}超格子反射付近の 2θ-Psi マッピング結果を示す。どちらの膜においても 110 の超格子反射が観察され、{110}の回折が存在する単斜晶相か斜方晶相がある

ことが確認された。また、Fig. 1(c)と(d)のスポットの角度を比較すると Psi 方向に約 3°異なることが確認され、室温で製膜した膜と 1000℃熱処理膜は、異なる結晶相である可能性が示された。

Fig. 2(a)および(b)に室温で製膜した膜と 1000℃熱処理膜の分極-電界ヒステリシス測定の結果を示す。室温製膜した膜は常誘電性を示したのに対し、熱処理後の膜では強誘電性が確認された。

上記の結果から、室温で製膜した膜は常誘電体の単斜晶相であるのに対し、1000℃熱処理膜は強誘電層の斜方晶相であることが明らかになった。本発表ではより広い組成の膜についても、結晶構造および特性の変化について発表する予定である。

【謝辞】 本研究の一部は、元素戦略プロジェクト<研究拠点形成型>、および科研費(16K14380 (JSPS), 16H00882 (MEXT))によって行われました。

【参考文献】 [1] T. S. Boscke et al., Appl. Phys. Lett. 99, 102903 (2011). [2]三村ら、第 63 回応用物理学会春季学術講演会、21p-W641-8(2016.03).

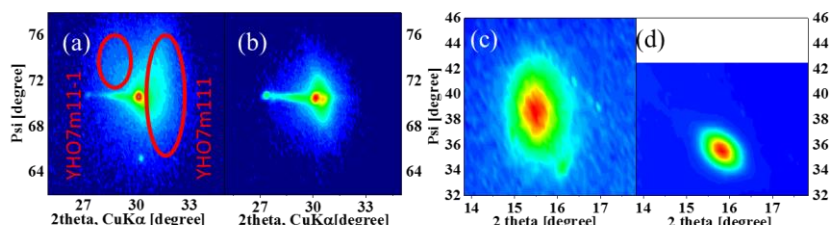


Fig. 1 (a, b) XRD 2θ-Psi mappings around YSZ11-1 and (c, d) near {110} for (a, c) as-deposited YHO7 films and (b, d) post-annealed YHO7 films.

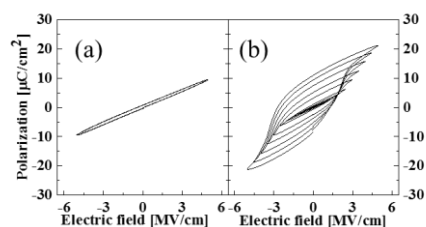


Fig. 2 Room temperature *P-E* hysteresis loops measured at 10 kHz for (a) as-deposited YHO7 films and (b) post-annealed YHO7 films.