

多結晶 HfO_2 薄膜における酸素欠陥の凝集・拡散に関する理論的検討

Theoretical Study of Oxygen Vacancies in Crystal Grain in Polycrystalline HfO_2 Film

東京理科大¹, 鳥取大工², 物材機構³

○(M2)肥田聡太^{1,2,3}, 森田巧¹, 山崎隆浩³, 奈良純³, 大野隆央³, 木下健太郎¹

Tokyo Univ. of Science¹, Tottori Univ.², NIMS³

°S. Hida^{1,2,3}, T. Morita¹, T. Yamasaki³, J. Nara³, T. Ohno³, K. Kinoshita¹

E-mail: b13t3052@faraday.ele.tottori-u.ac.jp

【序論】 HfO_2 などの金属酸化物は抵抗変化メモリ(ReRAM)のメモリ層として有用であることが報告されている[1]. これまでの研究では HfO_2 単結晶中や粒界に酸素欠陥(V_O)を導入することで電気的特性に変化が生じることが理論計算から求められている[2]. これらの研究では V_O の拡散・凝集による抵抗変化機構を提案している. しかし, V_O の移動を観測できておらず, 抵抗変化の機構は未解明である. 本研究では V_O の荷電状態を変えた第一原理計算および第一原理分子動力学(MD)シミュレーションを行うことで V_O の拡散・凝集の様子を初めて理論的に観測した. 【計算方法】本研究では第一原理分子動力学プログラム PHASE/0 [3]を用いた. 実験的に得られた結果から構築した多結晶 HfO_2 計算モデルに V_O を導入し, 全体の電子数を調整して V_O の荷電状態を中性(V_O^0)・二価(V_O^{2+})とした構造の静的なエネルギーを評価した. さらに, V_O^0 及び V_O^{2+} を拡散・凝集させた構造に 1000 K の温度を与える MD シミュレーションを行い, 構造の変化を観測した. 【結果及び考察】 V_O を導入した静的なエネルギーの比較から, V_O^0 の生成エネルギーは結晶中よりも表面近傍の方が 0.76 eV 低く, 表面近傍に V_O^0 が生成されやすいことがわかった. 一方, V_O^{2+} の場合は様々な位置に安定な箇所があり, 結晶中及び表面近傍ともに V_O^{2+} ができ得ることがわかった. 次に, MD シミュレーションの結果として Fig. 1 に V_O の荷電状態と構造変化の関係を示す. 表面近傍に V_O を 2 個導入した場合, V_O^{2+} は互いに反発し, 分散するのに対し, V_O^0 は引き合い凝集することがわかった. これらの構造変化は, V_O^0 と V_O^{2+} の構造中における安定箇所の違いと荷電状態の変化に伴う, 安定な V_O 距離の変化によって引き起こされたと考えられる. 実験的には, 荷電状態の変化は電圧印加によって生じ得る. また, これらの V_O の移動は吸着水などの雰囲気や電界印加に伴うジュール熱などの要因によって促進或いは抑制される可能性がある. これらの結果を踏まえ, V_O の拡散・凝集によって引き起こされる ReRAM の抵抗変化機構を提案する.

[1] L. Goux *et al.*, Applied Physics Letters, 97, 243509 (2010) [2] G. Bersuker *et al.*, Solid-State Electronics, 65-66, 146-150 (2011) [3] T. Ohno *et al.*, SC '07 Proceedings of the 2007 ACM/IEEE conference on Supercomputing, Article No. 57 (2007) 【謝辞】本研究の一部は, NIMS 及び京都大学情報環境機構のスーパーコンピュータシステムを用いて得られた.

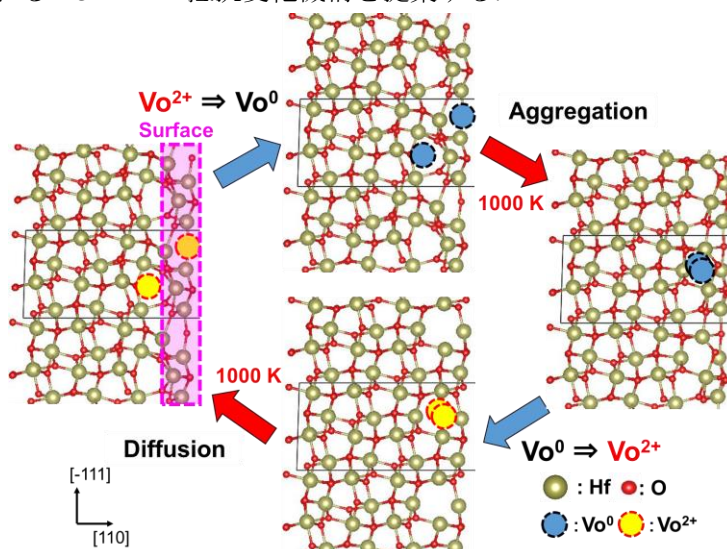


Fig. 1 Structures that diffusing V_O^{2+} and aggregating V_O^0