

HfO₂ 薄膜における熱処理昇降温速度の強誘電性への影響

Impact of ramp-up/down rate in RTA on HfO₂ ferroelectricity

東大院工¹、産総研²、森 優樹¹、西村 知紀¹、矢嶋 赳彬¹、右田 真司²、鳥海 明¹

Univ. of Tokyo¹ and AIST², [○]Y. Mori¹, T. Nishimura¹, T. Yajima¹, S. Migita², and A. Toriumi¹

E-mail: mori@adam.t.u-tokyo.ac.jp

【背景】 HfO₂ における強誘電性の発現機構は多くの議論がなされているがいまだ明らかでない。またそれらは基底状態あるいは準安定状態の自由エネルギーをもとにその出現機構を議論している。ところが、前回の本講演会で議論したように、パルスレーザーを用いたアニールでは結晶相の出現の仕方が通常のランプ炉アニールとは大きく異なっていることがわかった。今回は通常の高速 RTA 炉を用いて熱処理の昇降温レートを変化させたときの結晶相の出現と強誘電性の変化について調べたので報告する。

【実験方法】 化学洗浄を施した n-Si(001)基板上に PLD 法により TiN を堆積させた後、sputtering 法により HfO₂ 薄膜を堆積した。その後、高速ランプ炉によって N₂ 雰囲気中で熱処理を行った。その後 XRD により結晶性評価を行い、電気測定で分極量の変化を調べた。

【結果および議論】 Fig. 1 に今回使用した高速ランプ炉の温度プロファイルの一例を示す。今回の実験では、600°C で保持する時間を 10 秒とし、200°C から 600°C までの昇温レートと 600°C から 200°C までの降温レートをそれぞれ変化させて熱処理を行った。

Fig. 2 は約 20 nm の undoped HfO₂ について、横軸の降温レートに対して各昇温レートでアニールを行った後に得られた残留分極値(2P_r)を示している。各グラフの傾きから、降温レートが残留分極値に大きく影響を与えることがわかった。同様に、昇温レートも高いほうがわずかではあるが 2P_r が大きい。どれも傾きがほぼ同じであることから、一度温度を上げきると降温レートの効果は同じように効いていることがわかる。次に約 10 nm の 1% Y-doped HfO₂ と undoped HfO₂ について同様の効果を調べた。Fig. 3 は前述の 2 種類のサンプルについて 2P_r と高対称相ピークの割合の関係を示している。降温レートが下がり、高対称相が減少するにつれ残留分極値が減少する傾向はすべてのプロットにおいてよく一致しているが、Y₂O₃ をドープしたサンプルは極めて遅い降温レートでも強誘電性を維持していることがわかる。

【結論】 高速ランプ炉を用いて HfO₂ の熱処理を行ったところ、降温プロセスが非 monoclinic 相の出現に大きく影響することがわかった。今回の結果から、Y₂O₃ をドープすることにより、アンドープに比べてアニール時間に対する非 *m* 相の安定性が大きく増加することが示された。しかし、doped HfO₂ においても降温レートにより高対称相の割合が左右されたことから、強誘電性 HfO₂ の形成には時間制御も極めて重要であることがわかる。

本研究は JST-CREST(JPMJCR14F2)の支援を受けて行われた。

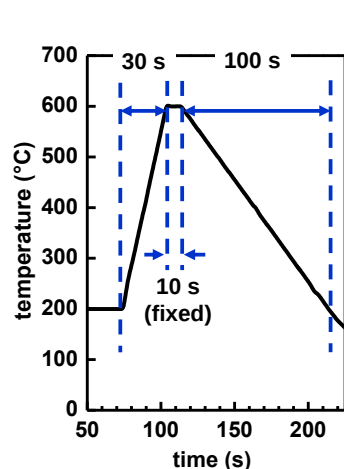


Figure 1 An example of annealing process (uprate : 1.3°C/s, downrate : 4°C/s).

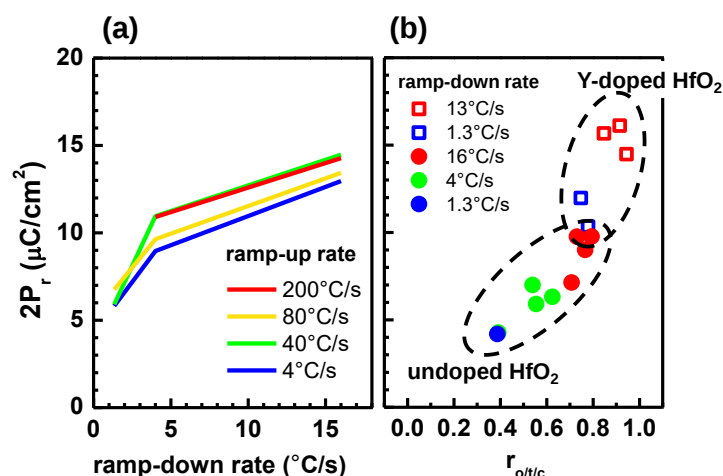


Figure 2 (a) The relationship between 2P_r and ramp-down rate (21 nm undoped HfO₂).

(b) 2P_r is plotted against high symmetry phase ratio (square : Y-doped HfO₂, circle : undoped HfO₂).