エピタキシャル HfO_2 基強誘電体における強誘電特性の膜厚依存性

Thickness-dependent of ferroelectric property in epitaxial ferroelectric HfO_2 film

東工大 [1], NIMS[2]

○(D)三村和仙 [1], 清水荘雄 [1], 勝矢良雄 [2], 坂田修身 [2], 舟窪浩 [1]

Tokyo Tech. [1], NIMS[2]

○Takanori Mimura[1], Takao Shimizu[1], Yoshio Katsuya[2], Osami Sakata[2], Hiroshi Funakubo[1]

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

【緒言】 近年報告された HfO_2 基強誘電体薄膜はその高い CMOS 適合性から強誘電体デバイスの作製に有望な材料として注目を集めている[1]。強誘電体メモリの応用では薄い膜が求められるが、一般に強誘電性には膜厚依存性が存在する。そのため、強誘電特性の膜厚依存性を調査することは非常に重要である。従来のペロブスカイト型強誘電体の多くは膜厚の低下に伴い、残留分極値（P_r）は減少し、抗電界（E_c）は増大することが報告されている[2]。一方で HfO_2 基強誘電体では膜厚の低下に伴い、P_r は増大し、E_c は大きく変化しないことが報告されている。しかし、これまでに報告されている HfO_2 基強誘電体の多くは配向の揃っていない多結晶膜であり、強誘電特性は配向や常誘電相と強誘電相の体積分率により変化してしまうため、純粋な強誘電相の薄膜の膜厚依存性とは異なっている可能性がある。本研究では配向制御した強誘電相単相の HfO_2 基強誘電体を用いて、強誘電特性の膜厚依存性について詳細な研究を行ったので報告する。

【実験】 パルスレーザー堆積法により、$0.07YO_{1.5}$-$0.93HfO_2$（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 を用いた。成膜時間を変化させることにより、様々な膜厚の膜を作製した。得られた膜を N_2 下 1000 ℃で 10s 間熱処理を行い、強誘電相を得た。X 線回折測定により、結晶構造の評価を行い、分極-電界ヒステリシス測定により強誘電特性の評価を行った。

【結果と考察】 図 1 に 14-111 nm の膜厚の YHO7 膜の{*110*}反射付近の 2θ-ψ マッピングを示す。14-30 nm の膜では斜方晶相由来のみの回折ピークが観察され、強誘電相単相の膜であることが示唆された。一方で、68-111 nm の膜ではその斜方晶相由来の回折ピークに加え、単斜晶相由来の回折ピークが確認された。しかし、理論強度では単斜晶相よりも斜方晶相のピーク強度の方がとても小さいにも関わらず、単斜晶相よりも斜方晶相の強度が非常に強いので、これらの膜においても強誘電相が膜中で主要な相であり、特性にあまり影響を与えないものとした。図 2 に 10-111 nm の YHO7 膜における飽和分極値 P_{sat}、P_r および E_c の膜厚に対する変化を示す。P_{sat} および P_r の値は膜厚の低下に対してほとんど変化をしていないことが確認できる。一方で、E_c については膜厚の低下に伴い、増大していることが確認され、従来のペロブスカイト型強誘電体に似た挙動が観察された。

【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 、17J10208 (JSPS), 16H00882（MEXT))によって行われました。また、結晶構造評価では SPring8 NIMS BL15XU において XRD 測定を行わせていただきました。

【参考文献】 [1] Boscke *et al.*, Appl. Phys. Lett., **99**, 102903 (2011). [2] Y. Sakashita *et al.*, J. Appl. Phys. **73**, 7857 (1993) [3] M. H. Park, *et al.*, Appl. Phys. Lett. **102**, 242905 (2013).

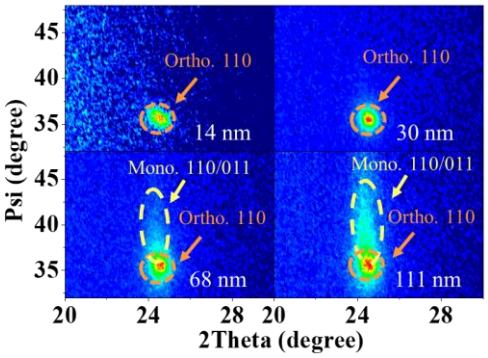

Fig. 1 XRD 2θ - *Psi* mappings near *{110}* of 14 - 111 nm-thick YHO7 films.

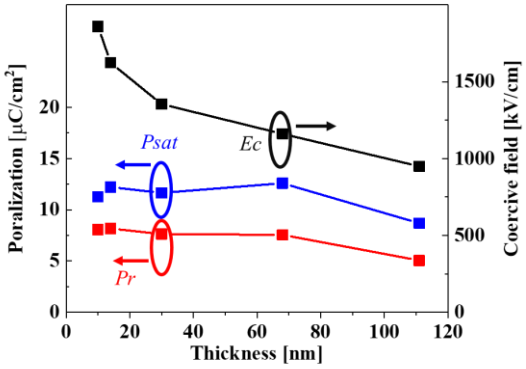

Fig. 2 Thickness-dependency of ferroelectric property in 10 - 111 nm- thick YHO7 films.