

(001)Si 基板上 HfO₂ 系エピタキシャル薄膜の構造制御に向けた成長過程の観察

Observation of growing process of HfO₂-based epitaxial thin film on (001) Si substrate for structural control

阪府大工, [○]鎌田 大輝, 高田 賢志, 桐谷 乃輔, 吉村 武, 芦田 淳, 藤村 紀文

Osaka Pref. Univ., [○]D. Kamada, K. Takada, D. Kiriya, T. Yoshimura, A. Ashida and N. Fujimura

E-mail: fujim@pe.osakafu-u.ac.jp

【はじめに】 シリコン CMOS プロセスにコンパクトな HfO₂ の準安定相である直方晶相に構造変化させることで 20nm 以下の膜厚でも安定した強誘電性を示すことが明らかになり、HfO₂ 系強誘電体薄膜に関する研究が加速している。HfO₂ を Si 基板上へ作製する際には、HfO₂/Si 界面にバッファ層である絶縁膜を挿入する。しかし、絶縁層の挿入は減分極電界を増加させ強誘電性分極を不安定化させる。[2] 我々は PLD 法を用いて、SiO_x 等の界面層の形成を抑制し、(001)Si 基板上に直接 HfO₂:Y 系エピタキシャル薄膜を成長させることに成功した。[3]その結晶構造は報告されている HfO₂ 薄膜[4]に比べて等方的であった。しかし、Si 基板に対して格子定数が 6.5% も小さい HfO₂ のエピタキシャル成長過程は明らかになっていない。その成長過程を明確化することは、Si 基板上 HfO₂ エピタキシャル薄膜の構造や格子定数の制御に向けて重要である。今回プルム内の酸素と Hf の活性種の量を変化させその成長過程を評価したので報告する。

【実験方法と結果】 Y を 7at% 添加した HfO₂ の焼結体をターゲットとして使用し、PLD 法を用いて(001)Si 基板上に HfO₂ 薄膜を成長させた。PLD 成長中のプラズマ中の酸素と Hf の活性種の量は、レーザーエネルギー密度及び酸素ガス圧で変化させることができる。酸素ガス圧 1mTorr でレーザーエネルギー密度を変化させた際にターゲットからアブレーションされる Hf および酸素の活性種の脱励起に伴う発光を、発光分光分析を用いて観察した結果を Fig.1 に示す。これより酸素分圧を変化させることなく O^{*}/Hf^{*}比を 1.1 から 2.6 ままで制御することが可能であることが分かった。このことは、界面の SiO_x の形成を抑制するために極めて重要な結果である。基板温度 700 °C に固定し、O^{*}/Hf^{*}比 (a)2.6、(b)2.0、(c)1.1 で 30nm の HfO₂:Y 薄膜を成長させた。成長中の最表面構造は、RHEED を用いてその場観察した。Fig.2 には RHEED パターンより算出した 110 面間隔の膜厚依存性を示す。成長初期は O^{*}/Hf^{*}比によって面間隔の変化に相違が確認できるものの、20nm 以上ではすべての試料において d=110 はほぼ 3.6Å に収束している。面外の格子定数は、いずれの試料も 5.14Å であった。これらのことより、PLD プルム中の O^{*}/Hf^{*}比を変化させても、界面の SiO_x 層の形成を抑制し HfO₂ 薄膜をエピタキシャル成長させることが可能であることが明らかになった。

【参考文献】 1)N.Fujimura et al. Ferroelectric Thin Films—Basic Properties and Device Physics for Memory Applications, N. Fujimura and T. Yoshimura (Topics in Applied Physics vol.98, (2005) 2)高田他、641th JSAP 2017spring, 17p-304-4 3) J. Muller et al. *J.Appl.Phys.* 110, 114113(2011)

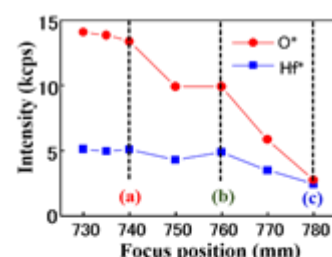


Fig.1 Focus position dependence of OES intensity of Hf* and O*

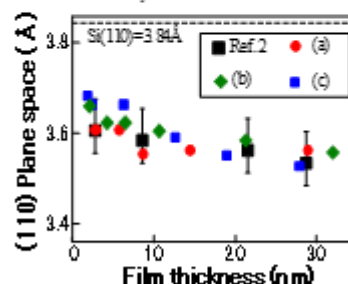


Fig.2 (110) Plane space of HfO₂:Y epitaxial film on Si (001) fabricated by changing ratio of O^{*}/Hf^{*} 2.6,(a) 2.0,(b) 1.1(c)