

HfO₂ 基強誘電体スパッタ薄膜の成長時の酸素分圧が 結晶成長・結晶構造に与える影響

The effect of O₂ partial pressure during sputtering on the crystal growth
and the structure of HfO₂-based thin films

○高田 賢志, 佐保勇樹, 桐谷 乃輔, 吉村 武, 芦田 淳, 藤村 紀文 (阪府大院工)

○K. Takada, Y. Saho, D. Kiriya, T. Yoshimura, A. Ashida, N. Fujimura

(Graduate School of Eng., Osaka Pref. Univ.) E-mail: fujim@pe.osakafu-u.ac.jp

【Introduction】

HfO₂ 基強誘電体薄膜の強誘電相の安定化にはドーピングや膜厚の効果に加え、適切な量の酸素欠損の導入が重要であることが知られている。[1,2]そのため、スパッタ法において作製された強誘電性 HfO₂ のほとんどは無酸素下で製膜されている。[3]しかしながら、HfO₂ 基強誘電体薄膜製膜中のスパッタガスへの酸素添加効果を精査した報告はない。そこで我々は、スパッタ法において、0.2~3mPa 程度の微量酸素分圧を制御することで、製膜時の酸素分圧が HfO₂ 系薄膜の結晶成長や as depo.・アニール処理後の結晶構造に与える影響を詳細に調査した。

【Experiment and Result】

RF マグネトロンスパッタ法において、non-doped HfO₂、non-doped ZrO₂、Hf_xZr_{1-x}O₂ 薄膜を、(001)Si 基板上に室温で作製した。その際 O₂ と Ar を導入し、O₂ 分圧を 0.2mPa~13mPa の範囲で制御し、全圧を 1Pa とし製膜を行った。その後、上部電極として Pt をスパッタ法により室温で製膜し、RTA 法により N₂ 雰囲気下において 600°C で 30 秒間アニール処理を施した。酸素分圧を変化させて ZrO₂ 薄膜を製膜した際の製膜レートを算出した結果を Fig. 1 に示す。このグラフより、0.26~1.3 mPa の間に成長モードが金属モードから酸化物モードへと遷移していることが示唆される。作製した Hf_xZr_{1-x}O₂ 薄膜(30 ± 2nm)の as depo.とアニール後の試料の X 線回折結果を Fig. 2 に示す。Fig. 2 より、酸素分圧が 0.26mPa 以下においては as depo. の状態ではブロードな非晶質の回折ピークが確認でき、1.3 mPa 以上の酸素分圧においては最安定相である単斜晶に結晶化していることが確認できる。アニール後においては、0.26mPa 以下の酸素分圧では単斜晶からの回折はほとんど確認できず、準安定相が主晶となっている一方で、1.3mPa 以上の酸素分圧においては単斜晶相が主晶であり、酸素分圧の減少に伴い準安定相の回折強度が増大していることが分かる。以上の結果から、成長中の酸素分圧により、金属モード、酸化物モードの遷移に伴い HfO₂ 系強誘電体薄膜の結晶成長・結晶構造に大きな影響を与えていることが分かった。講演では TiN 上で作製した試料との比較も行う。

【References】

- [1] T. Olsen et al. Appl. Phys. Lett. 101, 082905 (2012)
- [2] A. Pal et al. Appl. Phys. Lett. 110, 022903 (2017).
- [3] S. Migita et al. Jpn. J. Appl. Phys. 57, 04FB01 (2018).

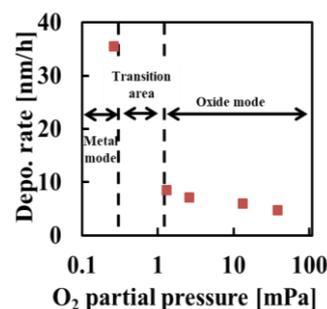


Fig.1 Deposition rate of ZrO₂ as a function of O₂ partial pressure

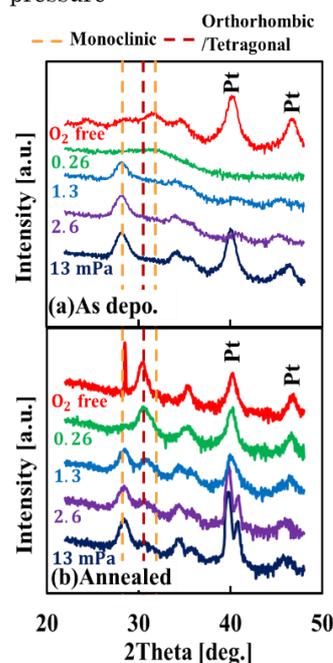


Fig.2 XRD patterns of Hf_xZr_{1-x}O₂ films of (a) as deposited films and (b) annealed films