

HfO₂ 基強誘電体膜のラマン分光測定 Raman spectroscopy of ferroelectric HfO₂-based films

東工大¹, JFCC²

°(M1)高橋 雄真¹, 白石貴久¹, 小寺正徳¹, 志村礼司郎¹, 三村和仙¹,
森分博紀², 田口綾子², 舟窪浩¹

Tokyo Tech¹, JFCC²

°Yuma Takahashi¹, Takahisa Shiraishi¹, Masanori Kodera¹, Reijiro Shimura¹, Takanori
Mimura¹, Hiroki Moriwake², Ayako Taguchi², and Hiroshi Funakubo¹

E-mail: takahashi.y.cn@m.titech.ac.jp

【緒言】 HfO₂ 基膜における強誘電相の安定化要因の一つとして酸素空孔が提案されている。しかし、広く用いられる X 線回折法では酸素空孔に関する情報を得る事は難しい。一方、ラマン分光法では格子振動の観測により酸素空孔に関する情報が取得できる可能性がある[1]。しかし、ラマン分光測定により、強誘電相とされる直方晶相に起因したラマンスペクトルを観察した報告はほとんどない。本研究では強誘電性が観測されている約 1 μm 膜厚の Y-HfO₂ 膜を用いてラマン分光測定を行ったので報告する。

【実験】 PLD 法を用いて室温にて 0.07YO_{1.5}-0.93HfO₂ 膜を Pt(111)/TiO₂/SiO₂/Si(100)基板上に製膜し、N₂ 雰囲気下、600-1100°C、10 s の条件で熱処理を施した。得られた膜について X 線回折測定、P-E ヒステリシス測定およびラマン分光測定を行った。

【結果と考察】 Fig.1 に熱処理温度を変えた 0.07YO_{1.5}-0.93HfO₂ 膜の直方晶相 *110*_o 回折付近の X 線回折測定の結果を示す。熱処理温度上昇によって直方晶相に起因した *110*_o 回折ピークが増加していることが確認できる。Fig.2 に各試料の断面から測定した無偏光のラマンスペクトル測定結果を示す。熱処理温度が 1000°C の試料では 320 cm⁻¹ 付近に、熱処理温度 1100°C の試料では 320 cm⁻¹ と 380 cm⁻¹ 付近に単斜晶相、正方晶相には帰属できないラマンシフトを有するピークが観測された。Fig.3 に XRD で測定した *110*_o 回折のピーク強度比 [*I*_{110_o}/(*I*_{110_o}+*I*_{011_m})]、ラマン分光の 380 cm⁻¹ 付近のピーク強度比 [*I*_o(380 cm⁻¹)/(*I*_o(380 cm⁻¹)+*I*_m(500 cm⁻¹))]、および残留分極値の熱処理温度依存性を示す。*110*_o 回折のピーク強度比と 380 cm⁻¹ 付近ピークの強度比の増加に伴い、残留分極値が増加していることから、ラマンスペクトルで新たに観測されたピークが直方晶相由来であると考えられる。

【謝辞】本研究の一部は元素戦略プロジェクトおよび科研費(19H00758、21H01617)によって行われました。

【参考文献】 [1] Nishida *et al.* Jpn. Appl. Phys., 47[9] 7510 (2008)

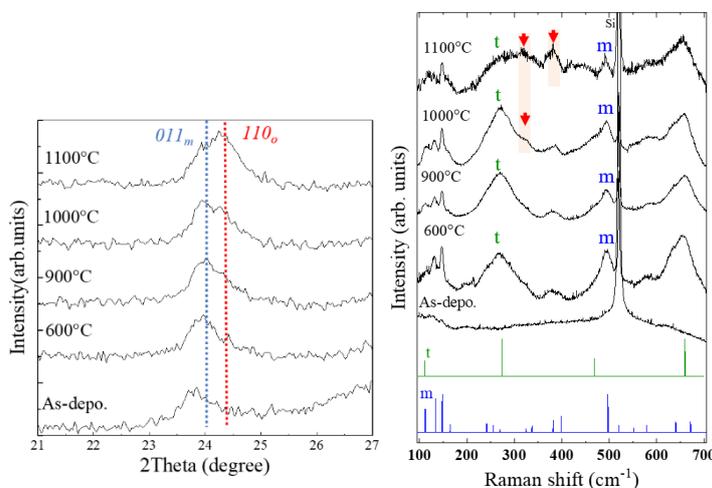


Fig. 1 Integrated XRD 2θ-ω patterns around *110*_o peak of films heat-treated at various temperatures.

Fig. 2 Cross-sectional Raman spectra of films heat-treated at various temperatures.

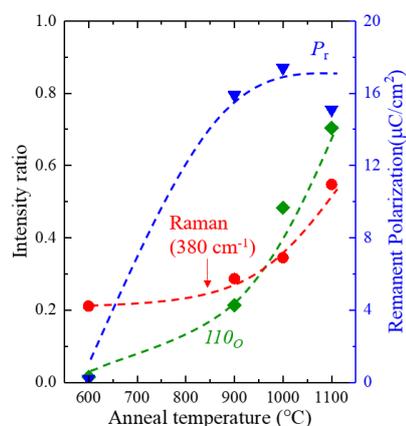


Fig. 3 Anneal temperature dependences of remanent polarization and peak intensity ratio of *110*_o on XRD patterns and around 380 cm⁻¹ on Raman spectra.