

強誘電性 HfO₂ キャパシタにおける極薄膜下での強誘電性の消失

Ferroelectricity disappearance in ultra-thin HfO₂ capacitor

自由業¹, 産総研² ◦鳥海 明¹, 右田 真司²

Free Engineer¹, AIST², ◦Akira Toriumi¹, Shinji Migita²

e-mail: atoriumi3@gmail.com

P_r と E_c は強誘電体材料特性を特徴づける物理量であり、その膜厚効果に着目してきた[1]. E_c に関する膜厚依存性に関してここ数年の応物講演会で発表してきたが今回は P_r の膜厚依存性に注目して考察する. 我々が取得してきたデータに加えて論文や学会で報告されている P_r の値を読み取り膜厚に対してプロットした (Fig.1). ほとんど場合に膜厚が 5~10 nm のところでピークを持ち 3 nm 以下で急峻に消失する.

MFM キャパシタにおける P_r は面積あたりの値であるので膜中の強誘電性領域の割合がプロセスによってばらついていることを考えると P_r がばらつくのは当然であろう. とところが 5nm 以下では P_r が極めて“シャープに減少し消失”する. 薄膜では電極の影響を強く受け準安定相が不安定相に変質している, 応力が働いている, あるいはそもそも熱力学的に HfO₂ の平衡状態図が表面エネルギーを考慮することで変化しているなどもっともらしいこともたくさん考えられるが, これらはプロセスによって程度が異なることを考えると上記の考え方だけでは理解するのが難しい. 以下では異なる観点から考えてみる.

現実的な金属電極 M では $10^{23}/\text{cm}^3$ 程度の自由電子を含んでおり, 一方 HfO₂ の $P_r = 16 \mu\text{C}/\text{cm}^2$ とすると電極界面の screening 電荷 P_{scr} は $10^{14}\text{C}/\text{cm}^2$ という表面電荷量に対応するので電極中の電子分布に少なからぬ影響を与え, 電荷分布は Fig. 2 のようにキャパシタモデルで考えることができるであろう.

$$\begin{cases} q_{IL} = q_{IR} (> 0) \quad , \quad P_{scr} + q_{Fe} - q_{IL} (= q_{IR}) = 0, \\ \frac{q_{IL}}{C_{IL}} + \frac{q_{Fe}}{C_{Fe}} + \frac{q_{IR}}{C_{IR}} = V. \end{cases}$$

つまり P を遮蔽するために生じた P_{scr} による金属電極内の電荷応答によって強誘電体膜に P とは逆向き電界が印加され, その電界は下記のように書くことができる ($V=0$ の場合).

$$E_{Fe}(V=0) = -\frac{1}{\epsilon_0 d_{Fe}} \cdot \frac{P_{scr}}{\frac{\epsilon_M}{2\lambda_M} + \frac{\epsilon_{Fe}}{d_{Fe}}}.$$

ここでは両電極は同じ金属

とし, 比誘電率 ϵ_M と=5 して λ_M を Thomas-Fermi 近似に基づいて計算した. Fig. 3 が示すように $V=0$ の時にすでに数 nm の HfO₂ には E_c と同等な 1 MV/cm を超える逆向き電界が印加されている. その厚さ以下では, “膜は強誘電性を持つが MFM 構造では本質的に強誘電性は消失してしまう”ことになる. このことは従来の強誘電体に対しても“critical thickness”として長く議論されてきたことであるが[2], HfO₂ の場合はその誘電率があまり高くないことから分母第 2 項が小さくなり $E_{Fe}(V=0)$ を無視できない. ここでは $\epsilon_M=5$ を用いたが, これは自由電子による誘電率ではなく母体となる金属のイオン芯の部分からの寄与ということになっている [3].

3 nm 以下における P_r のシャープな低下と消失は上記のような本質的な効果がメインに効いているのではないだろうか.

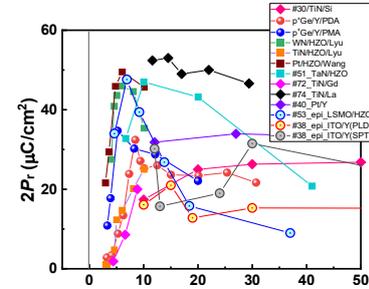


Fig. 1. 強誘電体 HfO₂ キャパシタにおける $2P_r$ の膜厚依存性 (文献報告値)

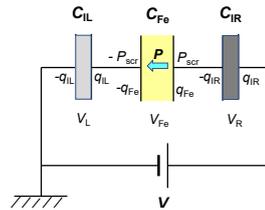


Fig. 2. MFM キャパシタの等価回路

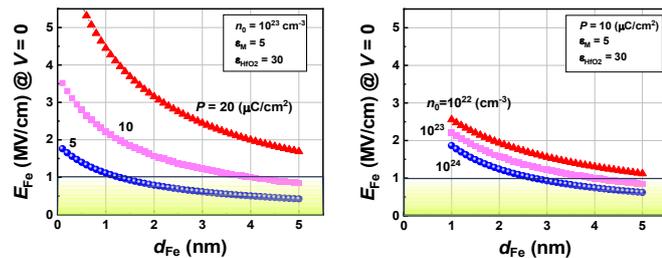


Fig. 3. $V=0$ における HfO₂ に印加される電界. $E_{Fe} > 1\text{MV}/\text{cm}$ で残留分極の消失.

[1] Tian, APL **112**, 102902. [2] Mehta, JAP **44**, 3379 (1973). [3] Black, TED **46**,776(1999).