

Hf_{0.5}Zr_{0.5}O₂ 薄膜強誘電体キャパシタにおける wake-up 特性の 電界・温度依存性と物理機構の考察

Electric field and temperature dependence of wake-up characteristics and physical mechanisms in Hf_{0.5}Zr_{0.5}O₂ thin-film ferroelectric capacitors

東大院工 ○伊藤 広恭, 竹中 充, 高木 信一, トープラサートポン カシディット

K. Ito, M. Takenaka, S. Takagi, K. Toprasertpong

(The Univ. of Tokyo, School of Engineering)

E-mail: ito@mosfet.t.u-tokyo.ac.jp

【背景】HfO₂系強誘電体は、そのスケラビリティや CMOS 親和性から、強誘電メモリ材料として注目されている [1]。一方、主に 6 nm 以下の薄膜において、強誘電性を発現させるには電界サイクリングが必要になるという wake-up 効果が課題となっている。wake-up 効果の物理機構には酸素空孔が関与しているという説が有力であるが[2]、実験的な検証はなされていない。本研究では Hf_{0.5}Zr_{0.5}O₂ (HZO) 強誘電体キャパシタにおける wake-up 特性の電界・温度依存性を測定し、物理機構の考察を行った。

【実験手法】本研究では、TiN/HZO (4.0 nm)/TiN の MFM 構造のキャパシタ[3]を測定に用いた。分極特性の測定には wake-up 条件と関係なく電界 4 MV/cm、周波数 10 kHz の三角波、wake-up には矩形波を印加した。電界依存性の測定では、wake-up 及び測定を 373 K で行い、それぞれの wake-up 電界において wake-up 周波数を 0.1 Hz~10⁵ Hz の範囲で変化させて 100 s 印加した。温度依存性の測定では、異なる温度で wake-up 電界 4 MV/cm、wake-up 周波数 10 kHz の矩形波を 10⁶ 回印加し、290 K で測定を行った。

【結果・考察】Fig.1 は横軸に wake-up 周波数、縦軸に wake-up 電界 3 MV/cm と 4 MV/cm における wake-up 後の残留分極量 2P_r の図である。この時、周波数範囲 10 Hz~10⁵ Hz の多項式 fitting でピーク周波数を抽出した。まず、wake-up 電界が小さいほど、2P_r が小さくなることがわかる。また同じ wake-up 時間では、特定の周波数で 2P_r がピークをとることがわかっているが[4]、wake-up 電界を小さくするとピークが低周波数側へシフトすることが確認された。次に温度依存性の測定結果を Fig.2 に示す。Pristine (wake-up を行う前)では反強誘電的な性質を示すが、室温で wake-up を行うことで強誘電性を発現する。一方、40 K で wake-up を行った後の特性は pristine とほぼ同じである。すなわち、低温においては wake-up が発生しないことがわかった。ここで、我々は wake-up の物理機構に関して以下のようなモデルを提案している (Fig.3)。①Pristine において酸素空孔は界面に存在する。②酸素空孔が、電界サイクリングによって膜内を移動する。③酸素空孔の通過領域のドメインが de-pinning され、wake-up が発生する。本モデルを用いて考察を行う。まず電界依存性の結果について、電界を小さくすることで wake-up 後の 2P_r が減少するのは、移動に必要なポテンシャル障壁を超えられる酸素空孔の

数が減少したからだと考えられる。また、ピーク周波数については、酸素空孔が膜内を移動する時間に対応していると考えられている[4]。電界を小さくすることで、酸素空孔の移動速度が下がり、移動により長い時間が必要となったため、ピークが低周波数側へずれたと考えられる。次に温度依存性の結果について、低温において wake-up が発生しなかったのは、酸素空孔がポテンシャル障壁を超えられず、移動が発生しなかったからだと考えられる。

【結論】4nm 膜厚の HZO 強誘電体キャパシタにおいて、電界によって wake-up の周波数ピークがシフトすることや、低温では wake-up が発生しないことが明らかとなった。またこれらの結果は、酸素空孔を用いた wake-up モデルを裏付けた。

【謝辞】本研究は、JST-CREST (JPMJCR20C3)、JSPS 科研費 (23K20951) の支援を受けて実施された。

【参考文献】[1] J. Müller, et al., *ECS J. Solid State Sci. Technol.*, 4, N30 (2015). [2] M. Pešić, et al., *Adv. Funct. Mater.*, 26, 4601 (2016). [3] K. Toprasertpong et al., *ACS Appl. Mater. Interfaces*, 14, 51137 (2022). [4] 伊藤他, *秋応物*, 18p-B3-3 (2024).

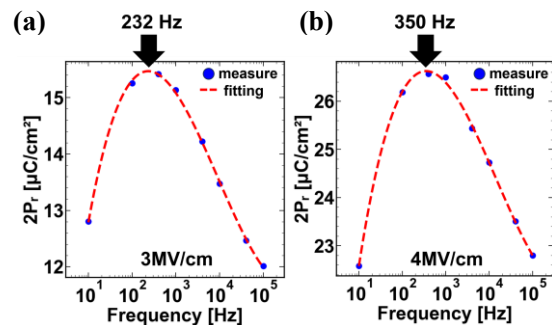


Fig. 1 2P_r after cycling for 100 s at each frequency with electric field of (a) 3 MV/cm and (b) 4 MV/cm.

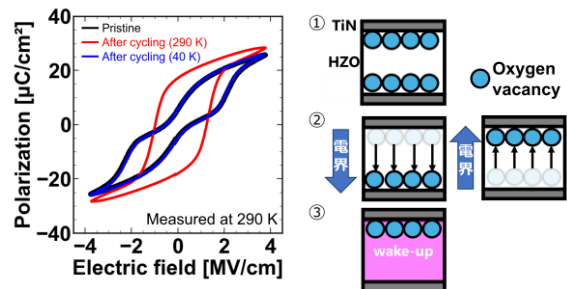


Fig. 2 P-E characteristics at 290 K before and after 10⁶ cycles at each temperature. Fig. 3 Wake-up model.