



応用物理学会春季学術講演会 注目講演プレスリリース

2023年 3月 13日

強誘電特性評価可能なオペラントレーザー励起光電子顕微鏡の開発

Development of an operando laser-based photoemission electron microscope capable of characterizing ferroelectric properties

次世代のメモリ材料「ハフニア系強誘電体」などの、 強誘電特性を観察・評価する新手法を確立

東大物性研¹、東大生産研²、東大 d.lab³、東大新領域⁴、東大 MIRC⁵、東大特別教授室⁶

藤原 弘和¹、糸矢 祐喜²、小林 正治³、Cédric Bareille^{4,5}、辛 埴^{5,6}、谷内 敏之^{4,5}

E-mail: hfujiwara@issp.u-tokyo.ac.jp

【発表概要】

- ・ 次世代のメモリ材料の最有力候補のひとつであるハフニア系材料の実用化に欠かせない、強誘電体特性評価のための、動作中デバイスの直接観察に基づく評価手法を確立。
- ・ レーザー励起光電子顕微鏡 (laser-PEEM) にSawyer-Tower (ST) 回路を実装した、オペラントレーザー励起光電子顕微鏡システムによって、強誘電体特性評価結果を世界で初めて報告。

東京大学物性研究所の藤原弘和氏らの研究チームは、2011年にドイツの研究グループによって、次世代のメモリ材料の最有力候補のひとつである二酸化ハフニウム (HfO₂) の薄膜が強誘電性を持つことが報告されて以降、その特性評価のための観察技術の研究開発を進めてきた。中でも、特性変動を直接観察できる「オペラントレーザー励起光電子顕微鏡」による観察システムの開発を進めてきた。今回はレーザー励起光電子顕微鏡 (laser-PEEM) にSawyer-Tower (ST) 回路を実装し、動作中の強誘電体デバイスを対象とした特性評価を行い、世界で初めて強誘電体特性評価を行うことに成功した。ハフニア系強誘電体の実用化に欠かすことのできない、特性変動のメカニズム解明にとって非常に有用な、観察・評価技術の確立に貢献する技術である。

【詳細】

次世代メモリの新材料「ハフニア系強誘電体」

二酸化ハフニウム (HfO_2) の薄膜は、2011年にその強誘電性がドイツの研究グループによって報告された。10nm程度の薄膜が強誘電性を持つことはおおいに注目され、以降、「ハフニア系強誘電体」(※1)は次世代メモリの新材料として、研究開発が活発化している。

強誘電体に電圧を加えると巨視的な「分極」を生じるが、加える電圧をゼロにしても分極が残る。この物理的な特徴を記憶媒体に応用したものが「強誘電体メモリ」(FeRAM)である。強誘電体メモリのうち、現在もっとも実用化が進んでいるのが、ペロブスカイト構造(※2)を持つ無機酸化物を用いた「ペロブスカイト型酸化物強誘電体」だ。低電圧で動作し、応答が高速であるという特徴から、すでに交通系ICカードで幅広く実用化が進められている。

強誘電体を用いたメモリは、低電圧駆動、高速な応答性能などの特徴から、コンピュータのメインメモリであるDRAM(※3)に応用できれば低消費電力化、人工知能による計算の効率化に貢献する技術として期待されている。しかし実用化されているペロブスカイト型酸化物強誘電体には、微細化した際に強誘電性を保持することができないという欠点がある。つまりスマートフォンをはじめとする、微細化が進む大規模集積回路への応用が難しいということだ。一方の新材料のハフニア系強誘電体は、10nm以下の薄膜でも安定した強誘電性を持たせることができるため、実用化できればコンピュータのメインメモリを代替する技術になり得る。

しかし、ハフニア系強誘電体にも短所がある。それは耐久性であり、情報の書き換えを $10^5\sim 10^{10}$ 回行くと、分極量の変動し、最終的には絶縁破壊を起こす。するとメモリとしての機能を保持できなくなるのである。メモリとして使われるDRAMには 10^{15} 回以上の情報書き換えに耐える必要があるが、そもそも、どのようにして強誘電体の分極量が反転動作(情報の書き換え)を繰り返すことによって変動し、絶縁破壊に至るのかは、物理学的にも未解明である。

したがって、ハフニア系強誘電体の性能向上には、特性変動のメカニズムを解明するための物理学的な基礎研究が求められている。東京大学物性研究所の藤原弘和氏らの研究チームは、レーザー励起光電子顕微鏡(laser-PEEM ※4)に「Sawyer-Tower (ST) 回路」(※5)を実装し、動作中の強誘電体デバイスを対象とした、特性評価を行った。ハフニ

ア系強誘電体の特性変動のメカニズム解明にとって非常に有用な、観察・評価技術の確立に貢献する技術である。

動作中デバイスや触媒の高度な観察が可能に

「ハフニア系強誘電体の特性変動のメカニズムを調べるためには、動作中のデバイスでどのように特性が変動していくかの直接観察、『オペランド観察』が重要です。私たちの研究チームは、『オペランドレーザー励起光電子顕微鏡』を活用することで、その観察を実現してきました」と藤原氏は話す。

「オペランド」とは、ラテン語で「working」や「operating」という意味を持ち、オペランド観察とは、動作中のデバイスや触媒を直接観察する技術のことである。

デバイスの直接観察には顕微鏡を使用するが、光学顕微鏡は物性観察と検出の深さ（数 μm ）に優れるものの、分解能が低い（ $\sim 500\text{nm}$ ）。電子顕微鏡はほどほどの物性観察と高い分解能（ 1nm 以上）を持つが、検出の深さに課題があった（ 10nm 以下）。そこで藤原氏らが選んだのは、光学顕微鏡と電子顕微鏡の“いいとこどり”ができる、光電子顕微鏡だった。

光電子顕微鏡は、紫外線レーザーを物質に照射することによる、光電効果（物質に光が当たることで、内部の電子が飛び出してくる現象）によって放出される電子を拡大し、結像するイメージング手法を用いる。他の電子顕微鏡とは異なり、物質の電子状態、化学状態に敏感であるという特徴を持つ。さらに、非破壊で電極などに埋もれた膜を観察できるという長所も持っていることから、強誘電体の観察には最適だ。

「従来の光電子顕微鏡は $20\sim 50\text{nm}$ 程度の分解能しか持たないため、微細加工が進む現代の半導体デバイス研究には不向きでした。しかし、光源に深紫外CWレーザー（※6）を用いる、東京大学物性研究所の最先端の光電子顕微鏡は、半導体デバイス研究が可能な世界最高分解能の 2.6nm を実現できます」（藤原）

藤原氏らはこのオペランドレーザー励起光電子顕微鏡を活用し、2018年には抵抗変化型メモリのオペランド観察を、2022年には、ハフニア系強誘電体キャパシタの絶縁破壊過程観察を報告してきた。

強誘電性評価の鍵を握る交流電圧下でのオペランド観察を実現

「これまでのオペランドレーザー励起光電子顕微鏡を用いた観察では、直流電圧の特性評価を行ってきました。今回は交流電圧の評価を実現し、キャパシタンス、インダクタンスから強誘電性評価において重要な、デバイスの分極量が定量的に評価できるようになったことが新規性です」（藤原）

直流電圧下では主に電気抵抗が評価できるが、電気抵抗だけでは実際に強誘電体の分極量を完全に評価することができない。藤原氏らの研究グループは、「Sawyer-Tower (ST) 回路」をオペランドレーザー励起光電子顕微鏡に実装し、世界で初めて、交流電圧による1MHzクラスのサイクリングストレス（何度も分極を反転させる電圧印加）を与えながら、電気分極評価を行うことに成功した（図）。

「これまでに確立してきた観察・評価手法は、強誘電体の絶縁破壊に至るまでの特性変動メカニズムに詳細に迫ることができる点が強みです。今後はハフニア系強誘電体キャパシタにおける特性変動、特に分極量の減少の原因である化学的変化を解明していきたいと思っています。そして将来的には、さまざまな強誘電体メモリデバイスの特性変動メカニズムの研究へと展開し、その実用化に貢献していきたいと思っています」（藤原）

今後は、将来的な不揮発性メモリとして期待されている「強誘電体電界効果トランジスタ（FeFET）」、「強誘電体トンネル接合（FTJ）」の特性評価を視野に入れて研究を進めるといふ。

【注釈】

※1 **ハフニア系強誘電体** 酸化ハフニウム (HfO_2) を基本組成とする無機化合物。10nm程度の薄膜で強誘電性を持つことで知られる。

※2 **ペロブスカイト構造** 組成が ABX_3 の無機化合物に見いだされる結晶構造の一種。強誘電性を示す BaTiO_3 、 PbTiO_3 がペロブスカイト構造を持つことが知られる。

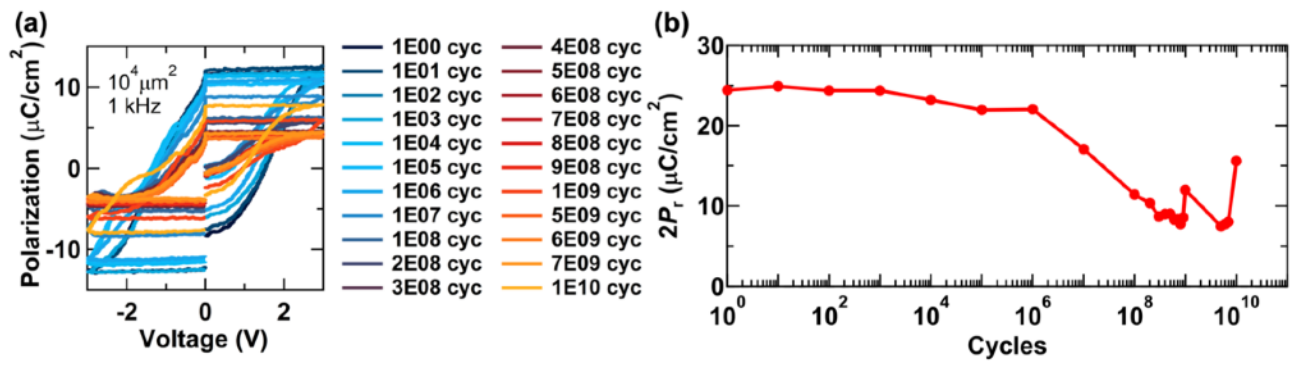
※3 **DRAM** dynamic random access memory 読み書き用半導体メモリの一種であり、現代のパソコンのメインメモリとして数多く使われている。

※4 **レーザー励起光電子顕微鏡** 仕事関数以上のエネルギーを持つ光を照射した際に、観察対象から光電効果によって放出される電子（光電子）を拡大し、結像することによってイメージングを行う、電子投影型の顕微鏡。

※5 **Sawyer-Tower (ST) 回路** 強誘電体材料における強誘電性を評価する上で必要な、電場ヒステリシスを生じる回路。

※6 **深紫外 (CW) レーザー** 深紫外線によるレーザー光源。従来のパルス光源のような瞬間的な光電子励起がないため、励起される光電子間の「クーロン反発」を抑制でき、高分解能が得られる。

【図】



厚さ10nmのHZOを用いた $100\mu\text{m}\times 100\mu\text{m}$ のコンデンサの電界サイクル特性を、試料と対物レンズの間に高電圧をかけずに観測した。(a) PUND法で取得したしたP-Vヒステリシスループ、(b) 電界サイクルによる $2P_r$ の変化を抽出したものの。