

Exploring optimal growth conditions for ferroelectric HfO₂-based thin films via pulsed laser deposition

Gimok So¹, and Changhee Sohn^{1*}

1- Department of Physics, Ulsan National Institute of Science and Technology; Ulsan, Republic of Korea

Main author email address: gimok19@unist.ac.kr

메모리 소자의 고유전율 게이트 산화물로 이용되고 있는 하프니아(HfO₂)는 나노미터 두께의 박막 상태에서 강유전성이 발견되어 큰 관심을 받기 시작했지만, 강유전성 상의 불안정성과 높은 항전계로 인해 상용화가 어려운 상태이다. HfO₂에서 강유전성의 근원으로 알려진 비 중심 대칭 극성 사방정계 상은 덩어리 시료에선 나타나지 않으며¹ 대부분의 경우 비극성 단사정계 상에 비해 불안정하다. HfO₂의 강유전성 상을 안정화하기 위한 방법으로는 주로 불순물 첨가나 에피택셜 성장을 이용한다. 에피택셜 성장은 잘 정의된 방향의 기판 위에 결정성 박막을 성장시키는 공정으로, 기판의 선택에 따라 박막에 제약을 가할 수 있어 특정한 방향이나 상을 가지는 결정의 성장을 유도할 수 있다. 본 연구는 특히 펄스 레이저 증착법(PLD)을 통해 HfO₂ 기반 박막을 적절한 기판 위에 에피택셜 성장시키고, 강유전성이 나타나는 증착 조건 탐색 및 최적화를 목표로 하였다. 본 연구자는 기존 보고에 따라, HfO₂에 불순물 Y₂O₃를 첨가한 Y doped HfO₂(YHO)²와 불순물 ZrO₂를 첨가한 Hf_{0.5}Zr_{0.5}O₂(HZO)³를 각각 yttria-stabilized zirconia(YSZ)와 GdScO₃(GSO) 기판에 에피택셜 성장시키고 indium tin oxide(ITO)와 La_{0.7}Sr_{0.3}MnO₃(LSMO)를 하부 전극으로 사용하였다. 결과적으로 GSO(110) 기판과 LSMO 하부 전극 위에 기른 HZO 박막에서 강유전성을 확인하는데 성공하였다. 증착 조건 탐색 과정에서 특히 비평형 과포화 조건이 HZO 박막의 강유전성에 큰 영향을 미치는 것을 확인하였고, 이를 적절히 제어하는 경우에 박막의 누설 전류를 줄일 수 있었다. 더불어 높은 레이저 에너지 플루언스는 강유전 이력 곡선의 형태를 개선하는 경향을 보였다. 엑스선 회절 분석(XRD)에서는 단사정계 상에 해당하는 피크는 보이지 않았고, 사방정계 상의 (111) 방향에 해당하는 피크만이 관측되어 강유전성 상의 안정화를 확인할 수 있었다. 해당 결과를 바탕으로 추후 HfO₂ 기반 강유전성 소자 개발의 핵심 과제인 항전계를 낮추는 연구를 진행할 예정이며, 본 연구가 PLD 를 이용한 HfO₂ 기반 박막 연구 발전의 토대가 될 것으로 기대한다.

[1] Ohtaka, O., Fukui, H., Kunisada, T., Fujisawa, T., Funakoshi, K., Utsumi, W., Irifune, T., Kuroda, K. & Kikegawa T. Phase Relations and Volume Changes of Hafnia under High Pressure and High Temperature. *J. Am. Ceram. Soc.* **84**, 1369-1373 (2001).

[2] Shimizu, T., Katayama, K., Kiguchi, T., Akama, A., Konno, T. J., Sakata, O., & Funakubo, H. The demonstration of significant ferroelectricity in epitaxial Y-doped HfO₂ film. *Sci. Rep.* **6**, 32931 (2016).

[3] Saul Estandía, Nico Dix, Matthew F. Chisholm, Ignasi Fina, & Florencio Sánchez. Domain-Matching Epitaxy of Ferroelectric Hf_{0.5}Zr_{0.5}O₂(111) on La_{2/3}Sr_{1/3}MnO₃(001). *Cryst. Growth Des.* **20**, 3801-3806 (2020).