局所 C-V マッピング法と機械学習の融合による強誘電ドメインダイナミクス分析

東北大学電気通信研究所　准教授　平永 良臣

1. 研究の背景および目的

強誘電体は、双安定性に基づく不揮発性メモリ機能や、圧電・焦電・非線形光学特性など多様な物理特性を備えており、メモリ素子、アクチュエータ、センサ、高周波デバイスなどへの応用が進んでいる[1][2][3][4]。しかし、これらの特性は結晶構造や欠陥、応力状態などの微細構造に強く依存しており、材料の性能を最大限に引き出すには、その組成設計やプロセス制御を精緻に最適化する必要がある。とりわけ、ナノスケールにおける分極反転挙動（ドメインダイナミクス）を定量的に理解することは、強誘電材料の高機能化およびデバイスの信頼性向上において極めて重要な課題である。

近年、HfO_2系強誘電体をはじめとする多結晶薄膜材料において、マクロスケールでは見えにくい局所的な分極の空間的ばらつきや、スイッチング特性の非均質性が、デバイス特性に重大な影響を及ぼすことが報告されている[5]。このようなナノスケールの非均質性を正確に捉えるためには、高分解能な局所計測技術に加え、その膨大なデータを定量的に解析するための情報科学的手法の導入が不可欠である。

本研究では、筆者が独自に開発した局所 C-V マッピング法[6][7][8]を中核とし、この手法によって得られる高精細ハイパースペクトル画像データを、機械学習を含む統計解析・画像解析技術により可視化・分類・定量化することで、強誘電体薄膜の分極ダイナミクスに対する新たな理解の獲得を目指した。局所 C-V マッピング法は、原子間力顕微鏡（AFM）をベースに、ナノスケールでの C-V 特性を高解像度・高空間分解能で観察することを可能にした新規手法であり、空間的なばらつきのある強誘電応答を統計的に評価するうえで優れた適性を持つ。

さらに本研究では、局所的な計測とマクロ的な物性評価を結びつける「マルチスケール解析」や、圧電応答顕微鏡（PFM）と局所 C-V 法を統合した「複合型計測システム」の構築にも取り組み、分極状態とスイッチング挙動の関係を多角的に解明する枠組みを構築した。これにより、強誘電体材料における構造—物性の相関理解を深め、将来的な材料設計やデバイス最適化に貢献する解析手法の確立を行った。

2. 研究の成果

2.1. 機械学習的アプローチによる局所 C-V マップデータの多変量データ解析法の確立

2.1.1. 局所 C-V データセットのクラスタ解析

局所 C-V マッピング法により取得されるデータは、各画素に高次のフーリエ係数情報を含む C-V 応答が記録されたハイパースペクトル画像として構成されている。本研究では、この膨大かつ複雑なデータを統計的に分類・可視化するため、教師なし学習に基づくクラスタリング解析を導入し、ナノスケールにおける分極反転応答の空間的多様性の把握を試みた。

具体的には、イットリウム（Y）添加 HfO_2 強誘電体薄膜に対して局所 C-V マッピングを実施し、256×128 の測定点における C-V カーブを含むデータセットを取得した。各画素の C-V カーブをフーリエ級数展開によりベクトル化した後、主成分分析（PCA）によって次元削減を行った。得られた特徴ベクトルに対し、ガウシアン混合モデル（GMM）によるクラスタリングを適用し、類似し

た応答を示す領域の分類と可視化を行った。

その結果、反転が起こらない非スイッチング領域、対称性の高い典型的なバタフライ型 C-V カーブを示す領域、ならびに非対称なピークを有する領域など、複数の特徴的なクラスタが抽出された(Fig. 1)。クラスタ数を段階的に増やすことで、ピーク位置のシフトや非対称性の強弱といった、より細部の違いも識別可能となり、局所的なドメイン挙動のバリエーションを的確に捉えることが可能となった。

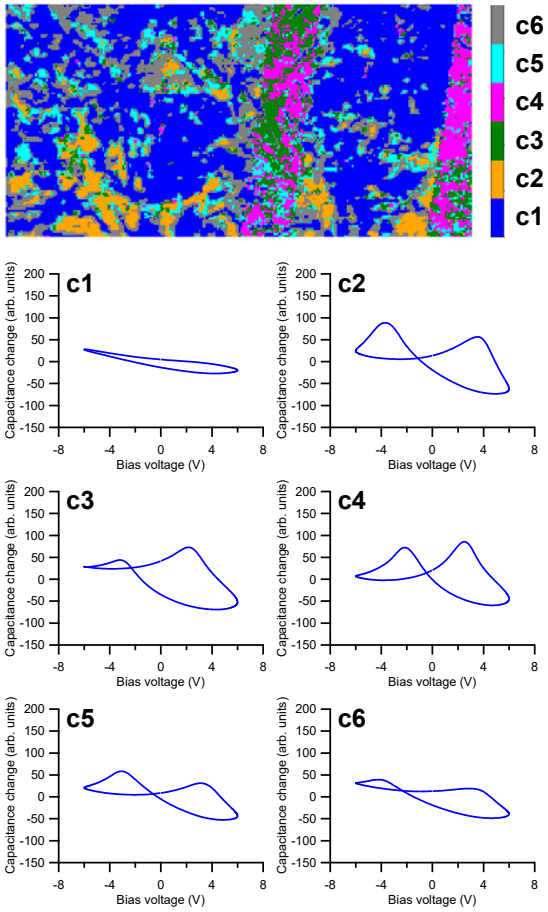

Fig. 1　局所 C-V カーブのクラスタ解析の例：マップ表示（上）と各クラスタの平均 C-V カーブ（下）、ガウシアン混合モデル、クラスタ数 6

クラスタリング結果を実空間マップ表示したところ、ストライプ状やパッチ状の構造が可視化され、分極反転特性が薄膜全体に無秩序に広がっているのではなく、構造的なまとまりをもって空間的に組織化されていることが示唆された。これらの特徴的な構造は、薄膜成長過程や内部応力の影響が反映された結果である可能性がある。

このように本研究を通じて、ナノスケールの C-V 応答を統計的に解釈し、ドメイン構造の特徴を分類・把握するための有効な手法が確立された。

2.1.2. 局所 C-V データセットと表面形状像の相関解析

強誘電体薄膜における分極反転挙動は、グレイン構造や界面状態といった微細構造に大きく影響される[9][10]。中でもグレイン境界は、分極反転の阻害点（ピンニングサイト）となる可能性が指摘されてきた[9]。しかしながら、その影響をナノスケールで定量的に評価した研究は限られていた[11]。本研究では、局所 C-V マッピング法により得られたナノスケールの分極反転特性と、表面形状像から抽出されたグレイン境界パターンとの相関を統計的に解析し、両者の関係性を明らかにすることを試みた。

先述の Y 添加 HfO_2 薄膜の局所 C-V データセットを引き続き解析対象とした。局所 C-V データと同時に測定された AFM 表面形状像に対しラプラシアンフィルタと watershed アルゴリズムを適用し、グレイン境界パターンを抽出して空間ラベル化を行った(Fig. 2)。これと局所 C-V データセットのクラスタリング結果との間のクロス集計において、両者の相関に関するカイ二乗検定を実施した。

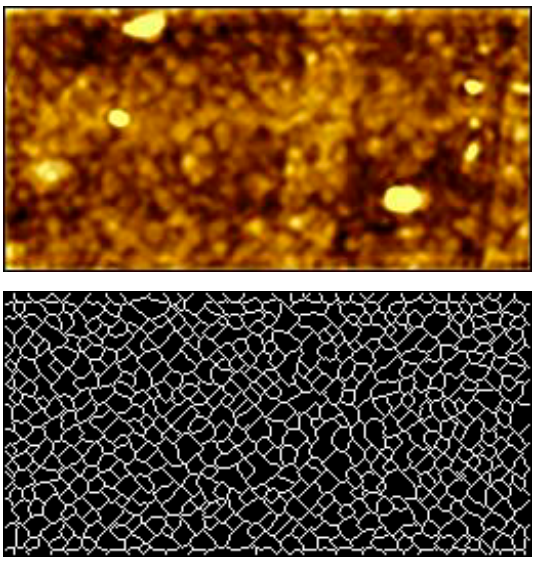

Fig. 2　Y 添加 HfO_2 薄膜の表面形状像（上）と画像処理によって抽出されたグレイン境界パターン（下）

解析の結果、非対称な C-V カーブを示すクラスタが、グレイン境界上に高頻度で出現する傾向を示した。一方で、比較的対称な C-V カーブを示すクラスタ群は、主にグレイン内部に分布していた。クラスタラベルとグレインラベルのクロス集計に基づきカイ二乗検定を行ったところ、両者を無相関とする帰無仮説は p 値 0.022 で棄却され、統計的に有意な相関が確認された。

一方、効果量として求めたクラメールの連関係数（ϕ 係数）は 0.083 と小さく、グレイン境界が分極反転特性に及ぼす影響は有意ではあるものの、その寄与は限定的であることも明らかとなった。すなわち、グレイン境界は非対称な分極応答の発現に関与している可能性はあるが、それが主要因であるとは言い難く、その他の欠陥構造やそれに起因する局所的な内部電界分布、あるいは結晶配向など、他の構造的要因の影響が支配的である可能性が高いことが示された。

本解析により、局所 C-V 応答のクラスタ情報と表面構造像を統合的に扱うことで、強誘電体薄膜における微細構造と分極反転特性の関係を空間的・統計的に可視化・定量化する新たな手法の枠組みが確立された。

2.1.3. 空間微分に基づく局所 C-V データセットの解析

クラスタリングに基づく局所 C-V データセットの解析は、様々な分極反転特性が空間的にどのように偏在しているかを視覚的に捉えるのに極めて有用である一方、その結果は事前に設定したクラスタ数に依存し、得られたマップにおけるクラスタの境界に必ずしも物理的な意味は無いといった問題点があった。そこで本研究ではクラスタリングとは異なるアプローチによる視覚化手法についても検討を行った。具体的には、画像処理における空間微分フィルタの考え方を応用した新たな手法を導入し、C-V 応答の空間的な変化を直接的に抽出・可視化することを試みた。

隣接画素間におけるフーリエ係数ベクトル同士のユークリッド距離を「空間微分」として定義し、これを 2 次元マップとして可視化した(Fig. 3)。この空間微分マップにおいて、局所的な変化が急峻な箇所は高輝度として現れ、C-V 応答があまり変化しない領域は低輝度で表示される。言い換えれば、明るい領域は分極反転特性が急激に切り替わる“境界”を示し、暗い領域は分極反転特性がほぼ均一な“ドメイン内部”を表すと解釈できる。

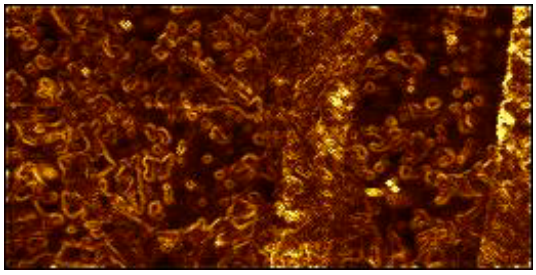

Fig. 3　局所 C-V データセットから得られた空間微分マップ

先述のY添加HfO_2薄膜に対する局所C-Vデータセットに本解析手法を適用したところ、空間微分マップにおいて、明瞭な輝線構造が多数出現し、それらが閉じたループを形成するように分布していた。これらの輝線構造は、クラスタリングによる領域分割とは異なり、局所的な物性変化の急峻な遷移点を直接的に捉えており、実際のドメイン構造のような実体的な構造により強く対応していると考えられる。

本解析により、従来のクラスタリング手法では捉えきれなかったC-V応答の急峻な変化領域を、非パラメトリックかつロバストに抽出する手法として、空間微分解析の有効性が実証された。

2.2. ナノスケール観察とセミマクロ計測を組み合わせたマルチスケール分析手法の確立

局所C-Vマッピング法は、ナノスケールでの分極反転挙動を可視化する強力な手法であるが、プローブ先端からの電界が非一様に広がるという計測原理上の特性により、得られたC-Vカーブの定量的解釈には一定の制約がある[12]。印加電圧値を膜厚値で除することで電界値を容易に算出できる平行平板キャパシタとは異なり、不均一な電界を印加したときに得られた応答信号からマクロ計測に対応した抗電界などの物性値を直接算出することは困難であり、ナノスケールで取得したデータをマクロ物性との定量的な比較を行う上での障壁となることがしばしばある。

そこで本研究では、電界分布の均一性を高めたセミマクロ的な計測手法として、上部電極付きのナノキャパシタ構造を作製し、これに対する局所C-V測定を行った。具体的には、Cr下部電極付き$LiTaO_3$単結晶基板上に、電子線リソグラフィーにより直径100～900 nmのPt上部電極をアレイ状に形成し、各サイズのナノキャパシタに対してC-Vカーブを測定した。

得られたC-Vカーブはいずれも強誘電体特有のバタフライ型を示し、その大きさは電極面積に比例して増大した。各C-Vカーブから往路・復路のピーク面積（S_f、S_r）およびピーク電圧（V_f、V_r）を抽出したところ、S_f+S_rは電極面積に対して明確な比例関係を示し、反転分極量に対応する指標であることが示唆された(Fig. 4)。一方、V_fおよびV_rは電極サイズに依存せず、一定の値を示した。これは、ピーク電圧が抗電界の物性値を反映していることを示唆しており、局所C-V測定によりマクロ物性値と整合する定量情報が得られることを示している。

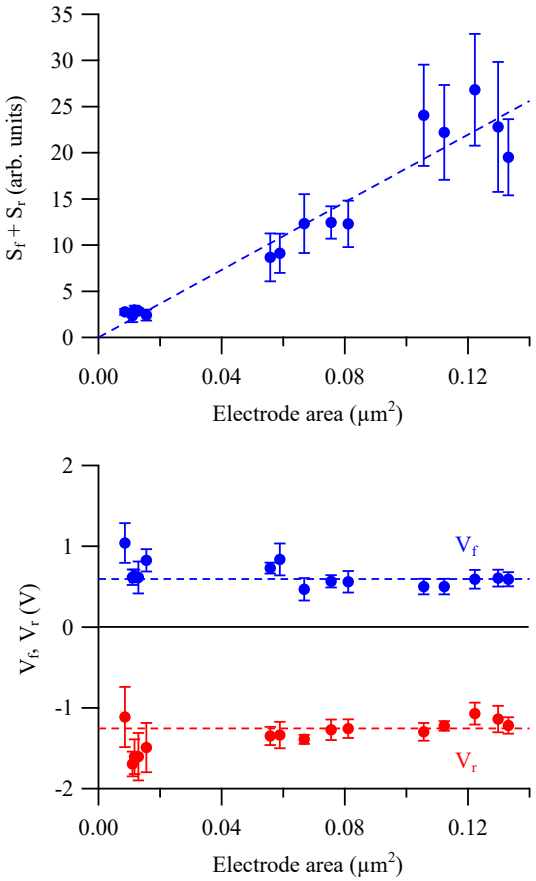

Fig. 4 ナノキャパシタのC-Vカーブ形状と電極面積の関係：ピーク面積（S_f+S_r）と電極面積の関係（上）とピーク電圧（V_f, V_r）と電極面積の関係（下）

このように、ナノキャパシタ構造を導入することで、局所 C-V 測定とマクロ的な物性評価との橋渡しが可能となり、ナノとマクロのスケールを接続するマルチスケール解析の基盤が整備された。本手法は、ナノスケールで観測される分極挙動がデバイススケールでの性能にどのように関与しているのかを評価する上で有効であり、今後の強誘電体材料の設計指針構築に大きく貢献するものと期待される。

2.3. 複合型局所 C-V マップ測定システムの開発

局所C-Vマッピング法と圧電応答顕微鏡(PFM)[13]は、ともに強誘電体のナノスケール解析に有効な手法であるが、それぞれ観測対象とする物理量が異なり、相補的な特徴を有している。そこで本研究では、両手法を統合した SNDM-PFM 複合計測システムを構築し、Y 添加 HfO_2 薄膜を対象としてその有用性を検証した。まず、PFM により分極の y 方向成分を可視化したところ、空間的に不均一なドメイン構造が観察された(Fig. 5)。一方、同一領域における局所 C–V マッピングでは、2ω 像から分極反転の有無に対応する空間分布が得られ、その各点では多様な C-V 応答が確認された。

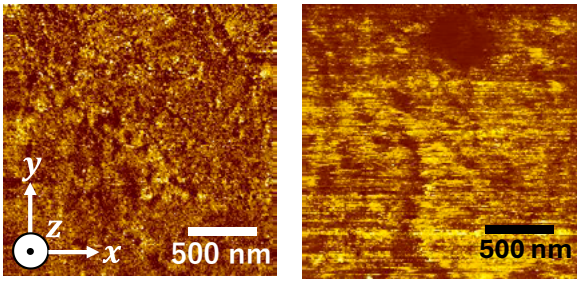

Fig. 5 Y 添加 HfO_2 薄膜の圧電応答顕微鏡像（左）と局所 C-V データセット 2ω 像（右）

得られた C-V カーブから抽出した特徴量(S_f+S_r)と PFM 信号強度との関係を解析した結果、両者間に明確な線形相関は見られなかったが、分極方向や反転挙動の局所的不均一性が複雑に絡み合っていることが示唆された。これは、初期分極状態や結晶配向、局所的な相構造など、複数の因子が分極反転特性に影響している可能性を示すものである。今後、分極 x 方向成分や z 方向成分の PFM 信号を含めた多次元的解析へと展開することで、ドメインダイナミクスの理解が一層深まることが期待される。

3. 結論

本研究では、局所 C-V マッピング法を中核技術として、機械学習的解析および複数スケールの計測技術や他の計測手法を融合することで、強誘電体のドメインダイナミクスを多角的に分析するための新たな手法を確立した。まず、C-V カーブの形状に基づくクラスタリング解析により、対称・非対称・非スイッチングといった多様な分極応答を空間的に分類し、HfO_2薄膜内の局所的な分極挙動の偏在性を明らかにした。次に、クラスタ分布とグレイン境界との統計的相関解析により、非対称応答の発現にグレイン境界が寄与することが示唆されたが、その影響は限定的であることも判明した。さらに、空間微分手法を導入することで、従来手法では捉えにくかった“動的ドメイン境界”の可視化に成功した。加えて、ナノキャパシタ構造を用いた C-V 測定によって、局所計測とマクロ物性との整合性が実証され、スケールを横断した解析の有効性が示された。最後に、SNDM と PFM を統合し、分極方向と反転特性を同一領域で取得することが可能な計測システムを構築した。これら一連の成果は、強誘電体材料の多様な構造—物性相関の理解に向けた強固な解析基盤を提供するものである。

4. 参考文献

[1] W. Banerjee, “Challenges and Applications of Emerging Nonvolatile Memory Devices,”

Electronics 9(6), 1029 (2020).

[2] W. Jo, R. Dittmer, M. Acosta, J. Zang, C. Groh, E. Sapper, K. Wang, and J. Rödel, "Giant electric-field-induced strains in lead-free ceramicor actuator applications – status and perspective," Journal of Electroceramics 29(1), 71–93 (2012).

[3] E.K. Akdogan, M. Allahverdi, and A. Safari, "Piezoelectric composites for sensor and actuator applications," IEEE Transactions on Ultrasonics, Ferroelectrics, and Frequency Control 52(5), 746–775 (2005).

[4] Y. Satoh, T. Nishihara, T. Yokoyama, M. Ueda, and T. Miyashita, "Development of Piezoelectric Thin Film Resonator and Its Impact on Future Wireless Communication Systems," Japanese Journal of Applied Physics 44(5A), 2883–2894 (2005).

[5] T. Schenk, M. Hoffmann, J. Ocker, M. Pešić, T. Mikolajick, and U. Schroeder, "Complex Internal Bias Fields in Ferroelectric Hafnium Oxide," ACS Applied Materials & Interfaces 7(36), 20224–20233 (2015).

[6] Y. Hiranaga, T. Mimura, T. Shimizu, H. Funakubo, and Y. Cho, "Local C–V mapping for ferroelectrics using scanning nonlinear dielectric microscopy," Journal of Applied Physics 128(24), 244105 (2020).

[7] Y. Hiranaga, T. Mimura, T. Shimizu, H. Funakubo, and Y. Cho, "High-precision local C–V mapping for ferroelectrics using principal component analysis," Japanese Journal of Applied Physics 60(SF), SFFB09 (2021).

[8] Y. Hiranaga, T. Mimura, T. Shimizu, H. Funakubo, and Y. Cho, "Nanoscale mapping to assess the asymmetry of local C–V curves obtained from ferroelectric materials," Japanese Journal of Applied Physics 61(SN), SN1014 (2022).

[9] B.J. Rodriguez, Y.H. Chu, R. Ramesh, and S.V. Kalinin, "Ferroelectric domain wall pinning at a bicrystal grain boundary in bismuth ferrite," Applied Physics Letters 93(14), 142901 (2008).

[10] T. Nattermann, Y. Shapir, and I. Vilfan, "Interface pinning and dynamics in random systems," Physical Review B 42(13), 8577–8586 (1990).

[11] D.M. Marincel, H.R. Zhang, J. Britson, A. Belianinov, S. Jesse, S.V. Kalinin, L.Q. Chen, W.M. Rainforth, I.M. Reaney, C.A. Randall, and S. Trolier-McKinstry, "Domain pinning near a single-grain boundary in tetragonal and rhombohedral lead zirconate titanate films," Physical Review B 91(13), 134113 (2015).

[12] M. Molotskii, "Generation of ferroelectric domains in films using atomic force microscope," Journal of Applied Physics 97(1), 14109 (2005).

[13] N. Balke, I. Bdikin, S.V. Kalinin, and A.L. Kholkin, "Electromechanical imaging and spectroscopy of ferroelectric and piezoelectric materials: State of the art and prospects for the future," Journal of the American Ceramic Society 92(8), 1629–1647 (2009).

5. その他成果発表等

- Y. Hiranaga, Y. Noguchi, T. Mimura, T. Shimizu, H. Funakubo, and Y. Cho, "Data-Driven Analysis of High-Resolution

Hyperspectral Image Data Sets through Nanoscale Capacitance–Voltage Measurements to Visualize Ferroelectric Domain Dynamics," ACS Applied Nano Materials 7(8), 8525–8536 (2024).

- Yoshiomi Hiranaga, Yuki Noguchi, Takanori Mimura, Takao Shimizu, Hiroshi Funakubo and Yasuo Cho, "Research on Correlation Between Grain Boundaries and Ferroelectric Switching Behaviors Through Statistical Analysis of Local C-V Map Datasets," 2023 ISAF-ISIF-PFM Joint Conference, Cleveland, 2023/07/24.
- Y. Hiranaga, "Visualization of Nanoscale Ferroelectric Domain Dynamics Based on Local Capacitance Measurements," JAIST International symposium of Nano-Materials for Novel Devices, 金沢, 2024/01/11.
- Yohiomi Hiranaga, Takanori Mimura, Takao Shimizu, Hiroshi Funakubo, Yasuo Cho, "Analysis of Nanoscale Ferroelectric Domain Dynamics Based on Image Processing of Local C-V Maps," 2024 IEEE Ultrasonics, Ferroelectrics, and Frequency Control Joint Symposium, Taipei, 2024/09/24.
- Yuki Noguchi, Takanori Mimura, Takao Shimizu, Hiroshi Funakubo, Yohiomi Hiranaga, "Development of Integrated Measurement System for Local C-V Mapping and Piezoresponse Force Microscopy," 2024 IEEE Ultrasonics, Ferroelectrics, and Frequency Control Joint Symposium, Taipei, 2024/09/25.
- Yoshiomi Hiranaga, Yuki Noguchi, Takanori Mimura, Takao Shimizu, Hiroshi Funakubo, and Yasuo Cho, "Multivariate Statistical Analysis of High-Resolution Hyperspectral Image Datasets Using Nanoscale Capacitance-Voltage Measurements for Ferroelectric Thin Film Characterization," 2024 MRS Fall Meeting & Exhibit, Boston, 2024/12/03.

6. 謝辞

本研究は、島津科学技術振興財団の助成金によるご支援の下で実施致しました。心より感謝申し上げます。