T2R2 東京工業大学リサーチリポジトリ
Tokyo Tech Research Repository

論文 / 著書情報
Article / Book Information

題目(和文)	エピタキシャル成長したHfO2基薄膜を用いた強誘電相出現に関する研究
Title(English)	A study on stabilization of ferroelectric phase in epitaxial HfO2 - based films
著者(和文)	三村和仙
Author(English)	Takanori Mimura
出典(和文)	学位:博士(工学), 学位授与機関:東京工業大学, 報告番号:甲第11452号, 授与年月日:2020年3月26日, 学位の種別:課程博士, 審査員:舟窪 浩,東 正樹,伊藤 満,細田 秀樹,大見 俊一郎,武田 博明
Citation(English)	Degree:Doctor (Engineering), Conferring organization: Tokyo Institute of Technology, Report number:甲第11452号, Conferred date:2020/3/26, Degree Type:Course doctor, Examiner:,,,,,
学位種別(和文)	博士論文
Category(English)	Doctoral Thesis
種別(和文)	要約
Type(English)	Outline

Powered by T2R2 (Tokyo Institute Research Repository)

論文の要約

本論文は “A study on stabilization of ferroelectric phase in epitaxial HfO_2 - based films（エピタキシャル成長した HfO_2 基薄膜を用いた強誘電相出現に関する研究)” と題し、英文で書かれており、Chapter 1 から Chapter 7 の計 7 章から構成されている。

第 1 章“Introduction”（緒論）では、まず研究の背景について述べている。HfO_2 基強誘電体の強誘電相である直方晶相を出現させる因子の研究は、これまで多結晶膜を用いて行われており、組成、膜厚、面内方向の粒径、熱処理等の因子が影響を与えることが知られていた。しかし、多結晶膜では膜厚や熱処理効果により粒径が同時に変化してしまうため、それぞれの因子の影響を個別に明らかにすることが難しいという問題があった。これに対しエピタキシャル膜では、面内方向の粒径は、膜厚や熱処理によって大きく変化しないと考えられる。そのため、エピタキシャル膜を用いて、面内方向の粒径をほぼ一定にし、膜厚、組成や熱処理等の因子について個別に評価できることが期待できる。以上のことから、本研究は、エピタキシャル薄膜を用いて、膜厚、組成、熱処理等の結晶構造に与える効果について調査を行い、HfO_2 基強誘電体の直方晶相出現の指針を得ることを目的としている。

第 2 章“Heat treatment effect on crystal structure and formation process of the orthorhombic phase in epitaxial $0.07YO_{1.5}$-$0.93HfO_2$ films” （エピタキシャル $0.07YO_{1.5}$-$0.93HfO_2$ 膜の結晶構造に対する熱処理効果と直方晶相の形成過程）では、スズドープ酸化インジウム(ITO)層を成膜した部分安定化ジルコニア(YSZ)基板上にエピタキシャル成長した $0.07YO_{1.5}$-$0.93HfO_2$ 膜について、様々な条件で熱処理を行い熱処理効果の評価を行っている。室温成膜した単斜晶相の膜が、1000°C 以上では正方晶相に相変化し、冷却過程で直方晶相に相転移することを確認している。強誘電相の直方晶相の高温相は正方晶相であることを実験的に初めて確認し、直方晶相の生成には熱処理中の高温で正方晶相を形成することが重要であることを明らかにしている。

第 3 章“Thickness dependence of Curie temperature in epitaxial $0.07YO_{1.5}$-$0.93HfO_2$ films” （エピタキシャル $0.07YO_{1.5}$-$0.93HfO_2$ 膜のキュリー点の膜厚依存性）では、膜厚による正方晶相と直方晶相の相転移温度の変化を検討している。膜厚の減少に伴い相転移温度は低下し、直方晶相が出現する温度範囲が約 200℃狭くなることを明らかにしている。

第 4 章“Thickness and composition dependences of crystal structure in epitaxial HfO_2 based films” （エピタキシャル HfO_2 基膜の結晶構造の膜厚および組成依存性）では、1000°C の熱処理温度で、$0.07YO_{1.5}$-$0.93HfO_2$ や$(Hf_{0.5}Zr_{0.5})O_2$ 等の組成について膜厚による室温での結晶相の変化を検討している。多結晶で広く検討されている $(Hf_{1-x}Zr_x)O_2$ では、エピタキシャル膜において 5 nm 以下の薄い領域のみでしか直方晶相が観察されない。これに対し $0.07YO_{1.5}$-$0.93HfO_2$ では、100 nm 以上の膜厚領域でも直方晶相が観察され、広い膜厚範囲で直方晶相が出現することを明らかにしている。上記 2 組成に加えて、HfO_2 や ZrO_2 薄膜についても検討し、組

成の影響が大きいことも明らかにしている。

第 5 章“Comparison between epitaxial and polycrystalline films” （エピタキシャル膜と多結晶膜の比較）では、エピタキシャル膜の結果を多結晶膜と比較検討している。両方の膜とも、$(Hf_{1-x}Zr_x)O_2$ より $0.07YO_{1.5}$-$0.93HfO_2$ の方が、膜厚の広い範囲で直方晶相が出現することを見出している。さらに、この成果を用いて、$0.07YO_{1.5}$-$0.93HfO_2$ の多結晶膜で、約 1 μm の膜厚で強誘電相を得ることに成功している。さらに（$(Hf_{1-x}Zr_x)O_2$ と $0.07YO_{1.5}$-$0.93HfO_2$ の膜で直方晶相が出現する膜厚の範囲の違いを、状態図と平衡度の観点で議論している。

第 6 章“Room-temperature deposition of ferroelectric $0.07YO_{1.5}$-$0.93HfO_2$ films by the sputtering method” （スパッタリング法を用いた強誘電性 $0.07YO_{1.5}$-$0.93HfO_2$ 膜の室温成膜）では、強誘電相が出現しやすい $0.07YO_{1.5}$-$0.93HfO_2$ を用いて、低温での合成を検討している。スパッタリング法を用いて $0.07YO_{1.5}$-$0.93HfO_2$ 膜を作製し、成膜条件の最適化により、室温で合成した膜でも強誘電性が発現できることを明らかにしている。

第 7 章の“Conclusions” （結論）では、本研究で得られた結果を総括し、今後の課題・展望について述べている。