

論文 / 著書情報
Article / Book Information

題目(和文)	スパッタリング法で作製したウルツ鉱構造 (Al,Sc)N 薄膜の結晶構造と強誘電性に関する研究
Title(English)	Study on crystal structure and ferroelectricity in wurtzite (Al,Sc)N thin films deposited by sputtering method
著者(和文)	安岡慎之介
Author(English)	Shinnosuke Yasuoka
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12724号, 授与年月日:2024年3月26日, 学位の種別:課程博士, 審査員:舟窪 浩,真島 豊,東 正樹,横田 紘子,松田 晃史
Citation(English)	Degree:Doctor (Engineering), Conferring organization: Tokyo Institute of Technology, Report number:甲第12724号, Conferred date:2024/3/26, Degree Type:Course doctor, Examiner:,,,,,
学位種別(和文)	博士論文
Category(English)	Doctoral Thesis
種別(和文)	論文要旨
Type(English)	Summary

論文要旨

THESIS SUMMARY

系・コース： Department of, Graduate major in	材料 材料	系 コース	申請学位（専攻分野）： 博士 Academic Degree Requested Doctor of	(工学)
学生氏名： Student's Name	安岡 慎之介		審査員主査： Chief Examiner	舟窪 浩

要旨（和文 2000 字程度）

Thesis Summary (approx.2000 Japanese Characters)

本論文は” Study on crystal structure and ferroelectricity in wurtzite (Al,Sc)N thin films deposited by sputtering method (スパッタリング法で作製したウルツ鉱構造 (Al,Sc)N 薄膜の結晶構造と強誘電性に関する研究)” と題して英文で書かれており、計 7 章から構成されている。

第 1 章 ”Introduction”では従来の強誘電体材料と本論文で研究対象としたウルツ鉱型窒化物材料に関する既往の研究について概説し、(Al,Sc)N 膜の結晶構造及び強誘電性に及ぼす物理パラメータの影響を調査することによって強誘電特性の制御因子を明らかにする本研究の意義について説明している。

第 2 章 ”Optimization of deposition conditions in (Al,Sc)N thin films”では優れた強誘電特性を示す (Al,Sc)N 薄膜を作製するためのスパッタパラメータの最適化を目的として、製膜温度及び製膜雰囲気が (Al,Sc)N の結晶構造及び強誘電特性に及ぼす効果を調査した。製膜温度の最適化に加え、強誘電性を示す膜の非加熱合成を実現し、ウェアラブルデバイスや強誘電体のディスプレイ上への応用等、強誘電体薄膜の新たな応用展開を見出した。さらに製膜雰囲気及び圧力の最適化によって、小さな抗電界 (E_c) 及び大きな絶縁破壊電界 (E_{BD}) が得られる条件を明らかにした。これらの結果から、種々のスパッタリング条件によって変化する結晶化のためのエネルギーと作製された膜の強誘電特性の関係が明らかになった。

第 3 章 ”Effect of chemical composition on crystal structure and ferroelectric properties”では (Al,Sc)N 膜の化学組成が及ぼす効果を調査するため、種々の Sc/(Al+Sc)比の (Al,Sc)N 膜に加えて、(Al,Yb)N 及び (Al,Mg,Nb)N 膜について結晶構造及び強誘電特性を評価した。従来の報告に比べ、2 倍以上広い組成範囲で強誘電性を観測し、それらの残留分極 (P_r) 及び E_c はウルツ鉱構造の結晶異方性を表す内部パラメータ (u) に対して直線的な関係を示した。これにより、Sc/(Al+Sc)比の変化に伴う P_r 及び E_c の変化が結晶異方性に基いた変化であることが明らかになった。(Al,Yb)N 及び (Al,Mg,Nb)N 膜の強誘電性評価の結果、AlN 基薄膜における強誘電性発現の有無が Sc/(Al+Sc)比に大きく依存し、 E_{BD} と E_c のマージンを確保する重要性が明らかになった。

第 4 章 ”Effect of film thickness on crystal structure and ferroelectric properties”では (Al,Sc)N の膜厚が結晶構造及び強誘電性に及ぼす影響を調査した。従来のペロブスカイト型強誘電体材料では、膜厚の低下に伴い強誘電特性が劣化する”サイズ効果”の影響を顕著に受けるが、(Al,Sc)N 膜は、12 nm まで $120 \mu\text{C}/\text{cm}^2$ を超える P_r 及び従来のスケーリング則から外れる E_c を示し、目立ったサイズ効果の影響を受けないことを実証した。さらに、膜厚によって変化した P_r 及び E_c が u パラメータに依存したことによって、(Al,Sc)N 薄膜の強誘電特性はサイズ効果よりも歪の効果がより支配的であることが明らかになった。

第 5 章 ”Effect of mechanical strain on crystal structure and ferroelectric properties”ではこれまでに得られた組成や膜厚の効果と本質的な歪の効果を切り分けるために、熱膨張係数の異なる基板上に製膜して膜にかかる熱応力を制御することにより、純粋な機械的歪が (Al,Sc)N の結晶構造及び強誘電性に及ぼす効果を調査した。同じ組成及び膜厚で異なる結晶異方性を有する $(\text{Al}_{0.8}\text{Sc}_{0.2})\text{N}$ の強誘電特性は熱歪によって制御されるだけでなく、これまでの結果で得られた u パラメータと P_r 及び E_c の関係とよく一致した。さらに本章で行われたエピタキシャル膜の特性評価の結果を踏まえると、化学的組成、機械的歪、結晶学的配向による P_r 及び E_c の変化は結晶異方性によって一義的に理解可能であることが明らかになった。

第 6 章 ”Switching kinetics in (Al,Sc)N thin films”では E_c を減少させる要因を解明するため、(Al,Sc)N 膜の分極反転機構を調査した。さらに、Sc 元素が (Al,Sc)N 膜の分極反転挙動に及ぼす影響を調査するため、異なる Sc/(Al+Sc)比の膜を積層した (Al,Sc)N 多層膜を作製し評価した。分極反転核の生成促進のために積層された多層膜の E_c は単層膜と同様に膜全体の Sc/(Al+Sc)比に依存した。また、それらの分極反転量の電界印加時間依存性の結果から推測された分極反転モデルは単層膜とは異なり積層膜独自の分極反転モデルを示した。これらにより、(Al,Sc)N 膜における分極反転は一般的に考えられている電極界面ではなく、Sc の多い領域が核生成サイトとなり、分極反転が起こっていることが示唆された。これまでの章で得られた知見を踏まえてウルツ鉱構造を有する窒化物強

誘電体の強誘電特性における支配因子を考えると、 P_r は結晶異方性、 E_c は結晶異方性と分極反転核の生成率で説明可能であることが明らかになった。このように、本研究結果はウルツ鉱型窒化物強誘電体の基礎物性の解明に役立ち、(Al,Sc)N が次世代強誘電体デバイスのための有望な候補材料であることを実証した。

第 7 章 “Conclusions”では本研究で得られた実験結果をもとに(AI,Sc)N の強誘電特性における制御因子について新しく得た知見をまとめて総括し、今後の展望について述べている。

以上より、本論文は(AI,Sc)N 膜の結晶構造と強誘電特性の関係を明らかにしており、これらの結果は今後の強誘電体を用いたメモリデバイスの有望材料となるウルツ鉱型窒化物の材料設計において重要な指針を与えるものである。

備考：論文要旨は、和文 2000 字と英文 300 語を 1 部ずつ提出するか、もしくは英文 800 語を 1 部提出してください。

Note : Thesis Summary should be submitted in either a copy of 2000 Japanese Characters and 300 Words (English) or 1copy of 800 Words (English).

注意：論文要旨は、東工大リサーチリポジトリ(T2R2)にてインターネット公表されますので、公表可能な範囲の内容で作成してください。

Attention: Thesis Summary will be published on Tokyo Tech Research Repository Website (T2R2).

論文要旨

THESIS SUMMARY

系・コース： Department of, Graduate major in	材料 材料	系 コース	申請学位（専攻分野）： Academic Degree Requested	博士 Doctor of	（工学）
学生氏名： Student's Name	安岡 慎之介		審査員主査： Chief Examiner	舟窪 浩	

要旨（英文 300 語程度）

Thesis Summary (approx.300 English Words)

This thesis entitled "Study on crystal structure and ferroelectricity in wurtzite (Al,Sc)N thin films deposited by sputtering method" is written in English and composed of 7 chapters. In Chapter 1 of this thesis, the present study's background and objective were explained.

In Chapter 2, the deposition conditions were optimized by tuning sputtering parameters to obtain good crystallinity and ferroelectricity in (Al,Sc)N thin films. The universal relationship between energy for crystallization and ferroelectric properties, which varies with various sputtering parameters, is revealed.

In Chapters 3, 4, and 5, the author investigated the effects of chemical composition, film thickness, and mechanical strain on the crystal structures and ferroelectric properties of the wurtzite-type structural AlN-based films. These results suggest that P_r and E_c of (Al,Sc)N films are uniformly controlled by the internal parameter u representing crystal anisotropy of a wurtzite structure, independent of film thickness, chemical composition, mechanical strain, and crystallographic orientation. In addition, the parameter u can be a universal index for tuning the ferroelectric properties of wurtzite structural (Al,Sc)N.

In Chapter 6, the author investigated the fundamental switching properties via a phenomenological and macroscopic approach. The effects of Sc concentration and segregation on the polarization switching mechanism were clarified by investigating the time- and field-dependencies of the switching polarization fractions in monolayer and multilayer films with different Sc/(Al+Sc) ratios. These results indicated that the switching speed and activation field were independent of film stacking, while the growth dimension decreased, providing the possibility of a switching model unique to multilayered films, in which Sc-rich regions are nucleation sites rather than interfaces.

In Chapter 7, a summary of the results and future works were described. The insights into the ferroelectricity of (Al,Sc)N films in this work provide guidance to future studies of wurtzite-structural ferroelectric nitrides and lead to targeted properties.

備考：論文要旨は、和文 2000 字と英文 300 語を 1 部ずつ提出するか、もしくは英文 800 語を 1 部提出してください。

Note: Thesis Summary should be submitted in either a copy of 2000 Japanese Characters and 300 Words (English) or 1 copy of 800 Words (English).

注意：論文要旨は、東工大リサーチポジトリ(T2R2)にてインターネット公表されますので、公表可能な範囲の内容で作成してください。

Attention: Thesis Summary will be published on Tokyo Tech Research Repository Website (T2R2).