

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)	審査の要旨
Type(English)	Exam Summary

## 論文審査の要旨及び審査員

報告番号	甲第		号	学位申請者氏名	安岡 慎之介	
論文審査 審査員		氏名		職名	氏名	職名
	主査	舟窪 浩		教授	松田 晃史	准教授
	審査員	真島 豊		教授		
		東 正樹		教授		
	横田 紘子		教授			

## 論文審査の要旨 (2000 字程度)

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 (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つ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に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と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 (Al<sub>0.8</sub>Sc<sub>0.2</sub>)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、分極反転が起き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 (Al,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 (Al,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り、工学上・工業上貢献するところが大きい。よって本論文は博士（工学）の学位論文として十分な価値があると認められる。

注意：「論文審査の要旨及び審査員」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。