

論文 / 著書情報
Article / Book Information

題目(和文)	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
Title(English)	A study on stabilization of ferroelectric phase in epitaxial HfO ₂ - 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)	論文要旨
Type(English)	Summary

(博士課程)
Doctoral Program

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 (工学) Academic Degree Requested Doctor of
学生氏名： Student's Name	三村 和仙		指導教員 (主)： Academic Supervisor(main) 舟窪 浩
			指導教員 (副)： Academic Supervisor(sub)

要旨 (和文 2000 字程度)

Thesis Summary (approx.2000 Japanese Characters)

本論文は “A study on stabilization of ferroelectric phase in epitaxial HfO₂ - based films (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)” 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。HfO₂ 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、HfO₂ 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 0.07Y_{0.5}-0.93HfO₂ films” (エピタキシャル 0.07Y_{0.5}-0.93HfO₂ 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 0.07Y_{0.5}-0.93HfO₂ 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換し、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 0.07Y_{0.5}-0.93HfO₂ films” (エピタキシャル 0.07Y_{0.5}-0.93HfO₂ 膜のキュリー一点の膜厚依存性) 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°C 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 HfO₂ based films” (エピタキシャル HfO₂ 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、0.07Y_{0.5}-0.93HfO₂ や (Hf_{0.5}Zr_{0.5})₂O₇ 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)₂O₇ 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 0.07Y_{0.5}-0.93HfO₂ 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、HfO₂ や ZrO₂ 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)₂O₇ より 0.07Y_{0.5}-0.93HfO₂ 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している。さらに、この成果を用いて、0.07Y_{0.5}-0.93HfO₂ 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)₂O₇ と 0.07Y_{0.5}-0.93HfO₂ 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 0.07Y_{0.5}-0.93HfO₂ films by the sputtering method” (スパッタリング法を用いた強誘電性 0.07Y_{0.5}-0.93HfO₂ 膜の室温成膜) では、強誘電相が出現しやすい 0.07Y_{0.5}-0.93HfO₂ 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 0.07Y_{0.5}-0.93HfO₂ 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。

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).

(博士課程)
Doctoral Program

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	三村 和仙		指導教員 (主)： Academic Supervisor(main)	舟窪 浩
			指導教員 (副)： Academic Supervisor(sub)	

要旨 (英文 300 語程度)

Thesis Summary (approx.300 English Words)

This thesis entitled "A study on stabilization of ferroelectric phase in epitaxial HfO_2 - based films" is written in English and composed of 7 chapters.

First of all, after the introduction of ferroelectric HfO_2 based films, the importance of research on stabilization factors of the orthorhombic phase by using epitaxial film was described in chapter 1. To obtain the design guidance of the orthorhombic phase, the author investigated the composition, thickness, and heat treatment effects on the crystal structure by using epitaxial films.

In chapter 2, the heat treatment effects on the crystal structure of the epitaxial film were investigated. The author revealed that the generation of the high-temperature tetragonal phase during annealing is important.

In chapter 3, the film thickness dependence of the Curie temperature is investigated in order to understand the film thickness effect. The author shows that the Curie temperature decreased with the decrease in film thickness.

In chapter 4, the film thickness and composition dependences of the crystal structure was investigated. $0.07\text{YO}_{1.5}\text{-}0.93\text{HfO}_2$ films have a wide thickness range which obtained the orthorhombic phase compared to $\text{Hf}_{0.5}\text{Zr}_{0.5}\text{O}_2$ films. The author clearly discovered the thickness dependence of crystal structure changes with film compositions.

Then, the comparison of the stabilization factor for epitaxial and polycrystalline films was described in Chapter 5. $0.07\text{YO}_{1.5}\text{-}0.93\text{HfO}_2$ films have a wide thickness range which obtains orthorhombic phase compared to $\text{Hf}_{0.5}\text{Zr}_{0.5}\text{O}_2$ films in both of epitaxial and polycrystalline films. From this result, the author shows that clear ferroelectricity was observed in films up to approximately 1 μm -thick $0.07\text{YO}_{1.5}\text{-}0.93\text{HfO}_2$ films. Moreover, the difference between $0.07\text{YO}_{1.5}\text{-}0.93\text{HfO}_2$ and $\text{Hf}_{0.5}\text{Zr}_{0.5}\text{O}_2$ films in the film thickness range was discussed based on phase diagram and thermodynamic balance.

In chapter 6, the author shows the preparation of ferroelectric HfO_2 -based films deposited at room temperature based on the results from chapter 2-5.

Finally, chapter 7 gives conclusions of the results and future work.

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).