

令和 6 年 6 月 28 日現在

機関番号：12608

研究種目：研究活動スタート支援

研究期間：2022～2023

課題番号：22K20427

研究課題名（和文）極性界面の誘起による窒化物強誘電体の強固な抗電界の低減

研究課題名（英文）Lowering strong coercive electric field of ferroelectric nitrides through utilization of the charged interfaces

研究代表者

岡本 一輝（Okamoto, Kazuki）

東京工業大学・物質理工学院・助教

研究者番号：60965937

交付決定額（研究期間全体）：（直接経費） 2,200,000円

研究成果の概要（和文）：窒化物強誘電体における大きな抗電界を低下を実現するために、エピタキシャル成長した単層膜と積層膜の薄膜を作製し、その分極反転について評価を行った。積層膜においても添加元素Scの平均的な濃度が分極反転挙動を支配していることが明らかになった。窒化物強誘電体の分極反転挙動に関する重要な知見を得ることができた。

研究成果の学術的意義や社会的意義

現在、AlN基窒化物強誘電体はすでに圧電材料として社会実装されており、強誘電体メモリに用いる候補材料として特に注目されているウルツ構造型窒化物強誘電体の一つである。AlN基窒化物強誘電体は高い残留分極値を示す一方で高い強固な抗電界 $E_c$ を示し、これが課題となっている。本研究では、単層膜と積層膜の分極反転挙動の調査を行い、それらの設計指針として重要な分極反転過程の理解を深める知見を得ることができた。

研究成果の概要（英文）：Epitaxially grown single layer films and multiple layer stacked films were fabricated and their polarization switching behaviours were characterized to achieve lowering high coercive electric field in ferroelectric nitrides. It was revealed that the average compositional ratio of dopant Sc in multiple layer stacked films played an important role in polarization switching behaviour. The study provides important insight of polarization switching behaviour of ferroelectric nitrides.

研究分野：窒化物強誘電体

キーワード：強誘電体 窒化物 分極反転 積層膜

## 様式 C-19、F-19-1 (共通)

### 1. 研究開始当初の背景

将来の産業と技術を支える基盤技術である 5G の商用導入が実施され、それと同時にあらゆるものがネットワークを通じてつながる IoT 時代が訪れている。その IoT には少ない電力でデータを収集・処理・保存できる小型のデバイスが必要とされている。これを実現できる強誘電体メモリには、① 高集積化を可能にする「高い残留分極値 Pr」、② 低消費電力を可能にする「低い抗電界 Ec」の 2 要件を満たす材料が必要となる。現在、AIN 基窒化物強誘電体はすでに圧電材料として社会実装されており、強誘電体メモリに用いる候補材料として特に注目されているウルツ構造型窒化物強誘電体の一つである。AIN 基窒化物強誘電体は高い残留分極値を示す一方で高い強固な抗電界 Ec を示し、これが課題となっている。この課題解決により AIN 基強誘電体の低電圧駆動可能な次世代強誘電体メモリ材料としての可能性を開拓及び発展が期待される。本研究では、AIN 基窒化物強誘電体を用いて積層構造を作製し、人工的な極性界面の制御と通じて分極反転の動力学的過程・反転挙動の理解を深めることを目指した。

### 2. 研究の目的

AIN 基窒化物強誘電体における分極反転の動力学的過程・反転挙動の理解深化に向け、強誘電体薄膜・積層構造を作製し、その分極反転挙動について評価することを目的とする。

### 3. 研究の方法

本研究では、単一組成膜と二つの組成の積層から成る積層膜を作製し、それらの分極反転挙動について評価を行った。薄膜の作製には RF マグネトロンスパッタリング法を用い、Pt/TiO<sub>2</sub>/SiO<sub>2</sub>/Si(001)基板上に作製した。作製した薄膜の概略図は図 1 に示す。まず、単一組成膜の膜厚は 150 nm とし、(Al<sub>0.9</sub>Sc<sub>0.1</sub>)N 及び (Al<sub>0.7</sub>Sc<sub>0.3</sub>)N の面外(001)配向膜を作製した。また、膜厚と組成を 10 nm-(Al<sub>0.9</sub>Sc<sub>0.1</sub>)N/130 nm-(Al<sub>0.7</sub>Sc<sub>0.3</sub>)N/10 nm-(Al<sub>0.9</sub>Sc<sub>0.1</sub>)N 及び 10 nm-(Al<sub>0.7</sub>Sc<sub>0.3</sub>)N/130 nm-(Al<sub>0.9</sub>Sc<sub>0.1</sub>)N/10 nm-(Al<sub>0.7</sub>Sc<sub>0.3</sub>)N のように全体の膜厚が 150 nm となるよう積層膜を作製した。結晶構造については X 線回折測定を用いて評価を行った。これらの組成はラザフォード後方散乱分光を用いて膜厚方向の組成プロファイルを評価した。強誘電性や分極反転挙動の評価には強誘電テストを用いて、パルス電界を用い分極反転割合を調べる測定を行った。

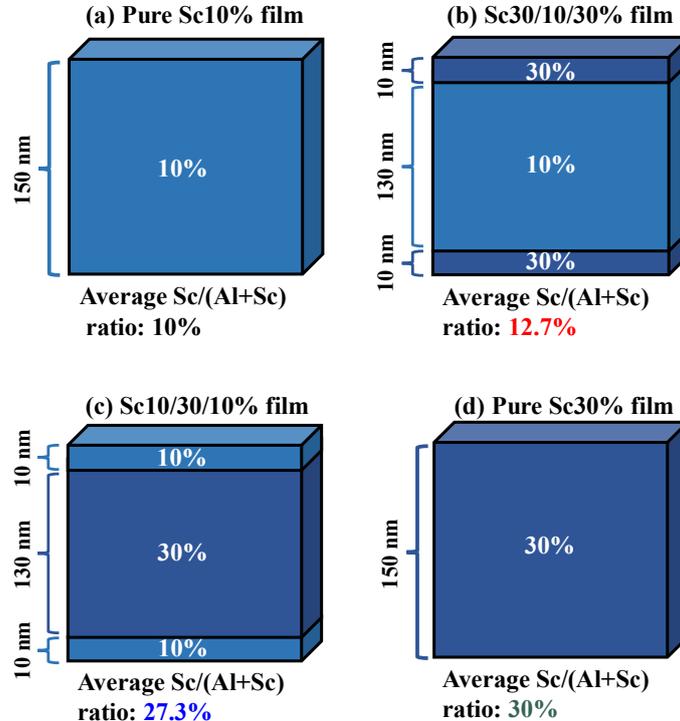


図 1. 作製した (Al, Sc)N 薄膜の概略図。

### 4. 研究成果

作製した (Al, Sc)N 薄膜及び積層膜の X 線回折測定結果を図 2 に示す。この結果より単層薄膜及び積層膜どちらにおいても面外方向測定結果には (Al, Sc)N の 002 と 004 の回折ピークが、面内方向測定結果には 100, 110, 200 の回折ピークが観察されている。これらより作製した膜は面外方向に (001) 配向、面内方向にはランダム配向した (001) 配向ファイバー膜であることがわか

る。次にラザフォード後方散乱分光スペクトルより、単層膜では膜厚方向に組成が均一な膜が作製できていることが確認でき、積層膜ではその組成の異なる薄膜界面でシャープな組成変化が見られ、図1にて想定したような組成の異なる積層膜が作製できていることが確認できた。次に図4に電界印加時間に対する分極反転割合の変化に関するプロットを示す。同じ印加電界強度における時間に対する分極反転割合の変化を見ると、Sc10/30/10%積層膜及びSc30%単層膜はSc10%単層膜やSc30/10/30%積層膜と比較して短い電界印加時間で分極反転が開始していることがわかる。また、図中にはKolmogorov-Avrami-Ishibashi (KAI) の分極反転核生成・核成長モデルに基づき、フィッティングをおこない破線で示した。このモデルによる理論曲線と実験点がうまくフィッティングできていることから、KAIモデルで考慮される分極反転の核生成・核成長モデルと $(Al, Sc)_N$ の反転挙動が矛盾しないと言える。これらのモデルでのフィッティングにより得られた指数 $n$ のプロットを図5に示す。平均組成比に対する指数 $n$ は減少傾向にあることに注目すると、図6に示すように、i) 低 $E_c$ のScリッチ層における単層膜と同じメカニズムによる個々の分極反転、ii) その後の高 $E_c$ のScプア層における分極反転、iii) フィルム全体の分極反転の3段階のスイッチング過程を経た一次元成長のように見える可能性がある。したがって、これらの結果は、Scリッチ領域に由来する核生成の可能性と、積層フィルムに特有のスイッチング・メカニズムの可能性を示唆している。これらの結果から、分極反転開始点の可能性について限定することができた。これらの実験結果はウルツ構造型窒化物強誘電体における分極反転機構についての理解を深める重要な知見となった。

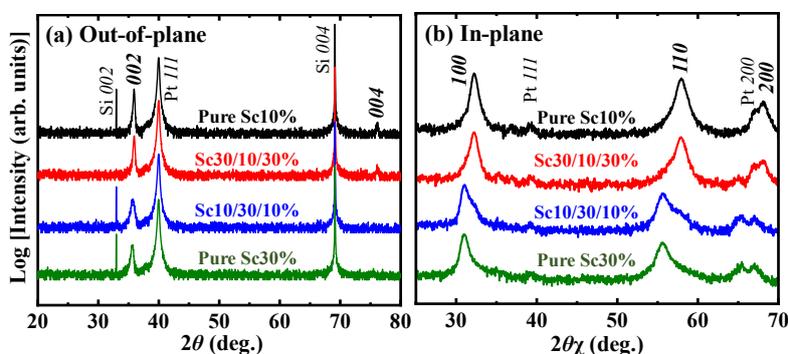


図2. 作製した $(Al, Sc)_N$ 薄膜のX線回折測定結果。(a)面外測定結果と(b)面内測定結果。

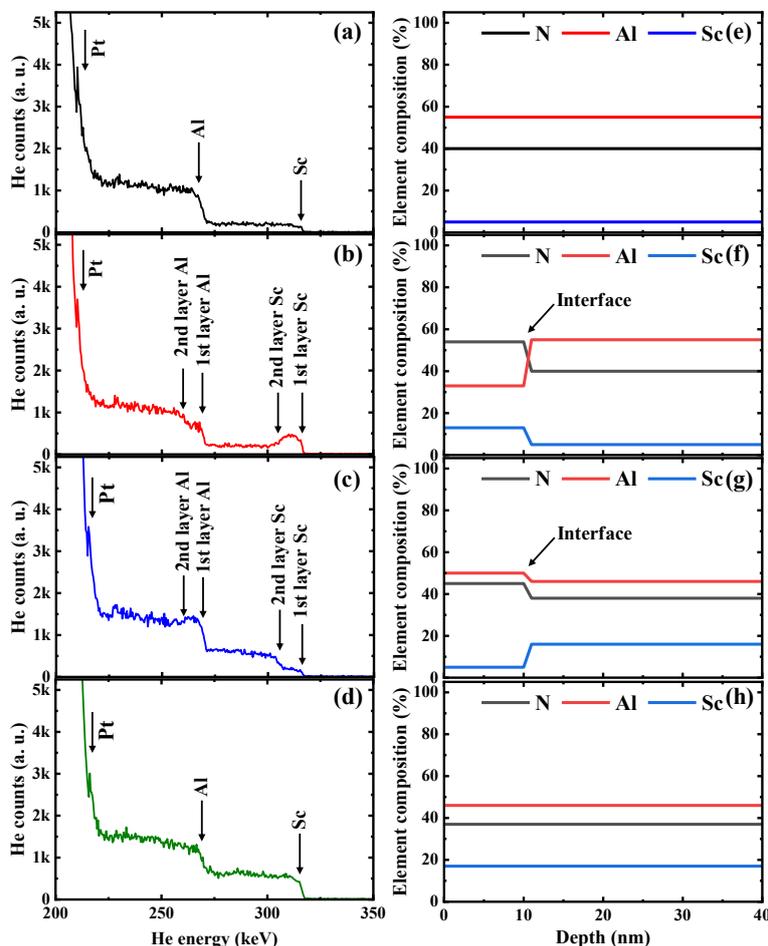


図3. 作製した(Al, Sc)N 薄膜のラザフォード後方散乱分光スペクトルとそれに基づく組成の深さプロファイル。

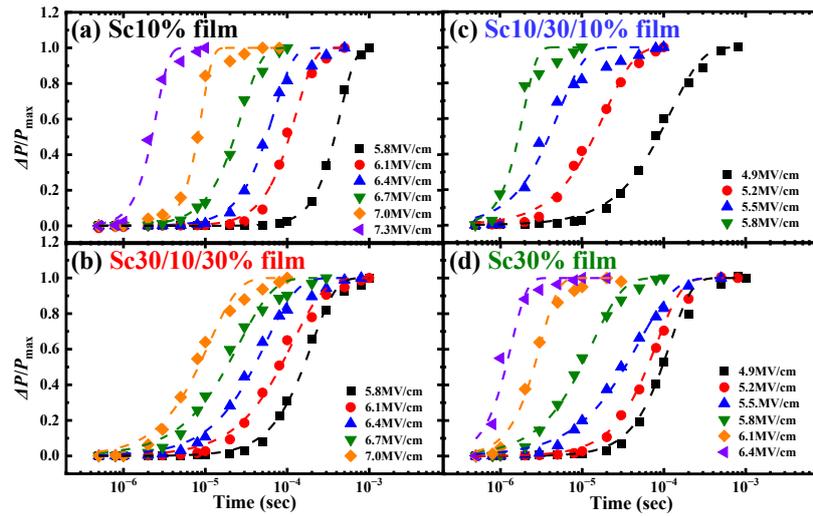


図4 電界印加時間に対する分極反転割合の変化。印加電界強度を変え複数プロットをおこなった。

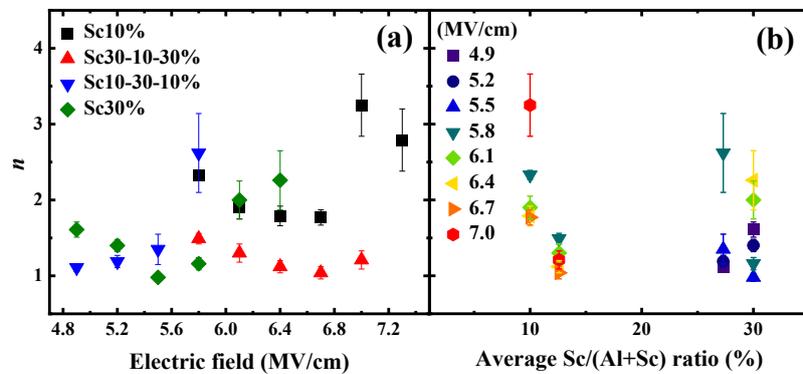


図5 KAI モデルにより得られた指数  $n$  の印加電界強度及び平均組成比  $Sc/(Al+Sc)$  に対する依存性。

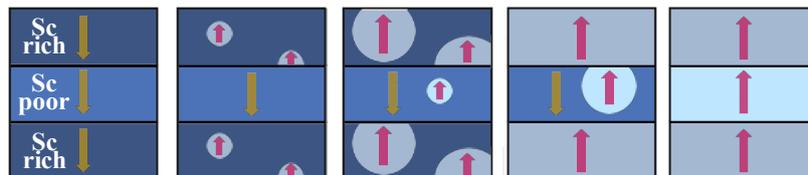


図6 積層膜における分極反転過程の概略図。

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計2件（うち査読付論文 0件／うち国際共著 0件／うちオープンアクセス 0件）

1. 著者名 Yasuoka Shinnosuke, Mizutani Ryoichi, Ota Reika, Shiraishi Takahisa, Shimizu Takao, Okamoto Kazuki, Uehara Masato, Yamada Hiroshi, Akiyama Morito, Funakubo Hiroshi	4. 巻 123
2. 論文標題 Invariant polarization switching kinetics in an (Al <sub>0.8</sub> Sc <sub>0.2</sub> )N film with frequency and temperature	5. 発行年 2023年
3. 雑誌名 Applied Physics Letters	6. 最初と最後の頁 202902
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1063/5.0171108	査読の有無 無
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 Ota Reika, Yasuoka Shinnosuke, Mizutani Ryoichi, Shiraishi Takahisa, Okamoto Kazuki, Kakushima Kuniyuki, Koganezawa Tomoyuki, Sakata Osami, Funakubo Hiroshi	4. 巻 134
2. 論文標題 Scalable ferroelectricity of 20?nm-thick (Al <sub>0.8</sub> Sc <sub>0.2</sub> )N thin films sandwiched between TiN electrodes	5. 発行年 2023年
3. 雑誌名 Journal of Applied Physics	6. 最初と最後の頁 214103
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1063/5.0166288	査読の有無 無
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

〔学会発表〕 計8件（うち招待講演 0件／うち国際学会 2件）

1. 発表者名 岡本一輝, 安岡慎之介, 大田怜佳, 舟窪浩, 松井尚子, 入澤寿和, 恒川孝二
2. 発表標題 水素ガス熱処理が(AI,Sc)N薄膜の強誘電特性へ及ぼす影響
3. 学会等名 第83回応用物理学会 秋季学術講演会
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 安岡慎之介, 大田怜佳, 岡本一輝, 石濱圭佑, 清水荘雄, 舟窪浩
2. 発表標題 NbN電極上に作製したエピタキシャル(AI,Sc)N膜の電気特性評価
3. 学会等名 第70回応用物理学会 春季学術講演会
4. 発表年 2023年

1. 発表者名 安岡慎之介, 大田怜佳, 岡本一輝, 石濱圭佑, 清水荘雄, 角嶋邦之, 上原雅人, 山田浩志, 秋山守人, 小金澤智之, L. S. Kumara, O. Seo, 坂田修身, 舟窪浩
2. 発表標題 メモリ応用に向けた(AI,Sc)N 膜の薄膜化の検討
3. 学会等名 第83回応用物理学会 秋季学術講演会
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 安岡慎之介、岡本一輝、清水荘雄、松井尚子、入澤寿和、恒川孝二、舟窪浩
2. 発表標題 種々の組成の(AI, Sc)N多層膜のスitchング特性評価
3. 学会等名 第84回応用物理学会秋季学術講演会
4. 発表年 2023年

1. 発表者名 Kazuki Okamoto, Reika Ota, Shinnosuke Yasuoka, Yoshihiro Ueoka, Yoshiro Kususe, Masami Mesuda, and Hiroshi Funakubo
2. 発表標題 Crystal structure and electrical properties of (Al, Ga, Sc)N ternary thin films prepared by RF sputtering
3. 学会等名 MNC 2023 (36th International Microprocesses and Nanotechnology Conference) (国際学会)
4. 発表年 2023年

1. 発表者名 1740)Shinnosuke Yasuoka, Kazuki Okamoto, Takao Shimizu, Hiroshi Funakubo
2. 発表標題 Characterization of Ferroelectric Switching Properties for (Al,Sc)N Films with Various Composition
3. 学会等名 2023 MRS Fall Meeting & Exhibit (国際学会)
4. 発表年 2023年

1. 発表者名 Nana Sun, Kazuki Okamoto, Shinnosuke Yasuoka, Naoko Matsui, Toshikazu Irisawa, Koji Tsunekawa, Hiroshi Funakubo
2. 発表標題 Effect of gas annealing on the ferroelectric property of (Al <sub>0.8</sub> Sc <sub>0.2</sub> )N thin film
3. 学会等名 第62回セラミックス基礎科学討論会
4. 発表年 2024年

1. 発表者名 Nana Sun, Kazuki Okamoto, Shinnosuke Yasuoka, Naoko Matsui, Toshikazu Irisawa, Koji Tsunekawa, Soshun Doko and Hiroshi Funakubo
2. 発表標題 High stability of ferroelectricity against hydrogen gas in (Al,Sc)N thin films
3. 学会等名 第71回応用物理学会春季学術講演会
4. 発表年 2024年

〔図書〕 計0件

〔産業財産権〕

〔その他〕

-

6. 研究組織

氏名 (ローマ字氏名) (研究者番号)	所属研究機関・部局・職 (機関番号)	備考
---------------------------	-----------------------	----

7. 科研費を使用して開催した国際研究集会

〔国際研究集会〕 計0件

8. 本研究に関連して実施した国際共同研究の実施状況

共同研究相手国	相手方研究機関
---------	---------