

令和 6 年 6 月 10 日現在

機関番号：82108

研究種目：基盤研究(B)（一般）

研究期間：2020～2023

課題番号：20H02189

研究課題名（和文）原子レベルで酸素欠損制御したナノラミネート複合機能膜と巨大誘電率の発現メカニズム

研究課題名（英文）Nanolaminate multifunctional film with the atomic-level oxygen vacancy control and its mechanism of giant dielectric constant

研究代表者

生田目 俊秀（NABATAME, TOSHIHIDE）

国立研究開発法人物質・材料研究機構・ナノアーキテクトニクス材料研究センター・特命研究員

研究者番号：10551343

交付決定額（研究期間全体）：（直接経費） 13,500,000円

研究成果の概要（和文）：原子層堆積法(ALD)を用いて、2種類の金属酸化物を原子レベルで交互に積層させたナノラミネート構造からなる機能性複合酸化物膜を作製して、その特性を調べた。(HfO₂)_m/(ZrO₂)_nナノラミネート膜では、ALDのm/nサイクル比を調整する事でHf/Zr組成を制御できた。GaNパワーデバイスの絶縁膜として、(HfO₂)_m/(Al₂O₃)_nナノラミネート構造から作製したHfAlO_x膜が優れた信頼性特性を示した。今回、採用したALDによる2種類の金属酸化物からなるナノラミネート構造は、新たなナノ材料設計の点で有望な手法の一つと言える。

研究成果の学術的意義や社会的意義

本研究で試みた原子層堆積法を用いて原子レベルで制御した2種類の酸化物を積層させて作製したナノラミネート構造は、組合せ及び組成比を幅広く変える事ができ、その結果、ナノレベルでの材料設計ができた。この手法で得られたナノラミネート膜からの構造変化で、その電気的な特性を評価する事で、学術的に有意義な知見を得られた。また、幅広いアプリケーションの一つであるGaNパワーデバイスで、(HfO₂)_m/(Al₂O₃)_nナノラミネート構造から作製したHfAlO_x膜が優れた信頼性特性を示したことから、ゲート絶縁膜として有望な候補材料である事を示せたことは社会的に貢献できたと思う。

研究成果の概要（英文）：We investigated characteristics of multifunctional oxide films with a nanolaminate structure which two types of metal oxides are alternately layered at the atomic level using atomic layer deposition. In the (HfO₂)_m/(ZrO₂)_n laminate films, the Hf/Zr ratio could be controlled by changing ALD m/n cycles. HfAlO_x film which fabricated from (HfO₂)_m/(Al₂O₃)_n nanolaminate structure exhibited superior reliability characteristics. Nanolaminate structures consisting of two types of metal oxides by ALD is one of the promising methods for designing new nanomaterials.

研究分野：半導体分野

キーワード：原子層堆積法 ナノラミネート構造 機能性複合酸化物膜 高誘電率 HfAlO_x膜 HfZrO_x膜 GaNパワーデバイス

科研費による研究は、研究者の自覚と責任において実施するものです。そのため、研究の実施や研究成果の公表等については、国の要請等に基づくものではなく、その研究成果に関する見解や責任は、研究者個人に帰属します。

1. 研究開始当初の背景

金属酸化物を絶縁膜として用いたコンデンサー、Dynamic random access memory (DRAM)及びパワーデバイス等の電子デバイスでは、低消費電力を達成するために低電圧動作で低リーク電流が望まれ、それを実現するためには金属酸化物の物性で、大きなバンドギャップ(B_g)を維持したまま、高い誘電率(k)が要求されている。代表的な金属酸化物の B_g と k 値の関係を図1に示す。 B_g 値は報告値を用いた[1,2]。一般に誘電率が高くなるに従って B_g が小さくなるトレードオフの関係にある事が分かる。HfO₂ 及び ZrO₂ は k 値に幅があるのは、結晶相に対応して誘電率が変わるためである。現状、DRAM の絶縁膜としては、ZrO₂/Al₂O₃/ZrO₂ の3層構造で、結晶化した ZrO₂ は高誘電率層として、アモルファスな Al₂O₃ 層は大きな B_g を利用したリーク電流を抑制する層として働いている。この様に、個々の金属酸化物及びそれらを積層した ZrO₂/Al₂O₃/ZrO₂ の k 値及び結晶構造は材料物性の範疇にあり、未知な物性を有する新規な機能性複合酸化物材料の設計は難しい状況であった。また、Al₂O₃/(Ta/Nb)O_x/Al₂O₃ 構造のチャージトラップメモリでは、Al₂O₃ 層と(Ta/Nb)O_x 層のコンダクションバンド(E_c)の差から、注入された電荷が(Ta/Nb)O_x 層に蓄積される結果を報告した[3]。そして、(Ta/Nb)O_x 層に酸素欠損(V_o)などの電気的な欠陥があると、この電荷の蓄積が増加する知見を得た。これを踏まえて、TiO₂ 層と Al₂O₃ 層の積層構造は、TiO₂ 層の V_o と Al₂O₃ との E_c の差から電荷蓄積が生じ、その結果、容量増加と k 値の増加が期待できる。しかし、この容量はバイアス電圧を反転させる事で容易に電荷の蓄積/放出するために、絶縁膜としての不安定性が懸念されると共に、真の物性を意味していないと考えられる。

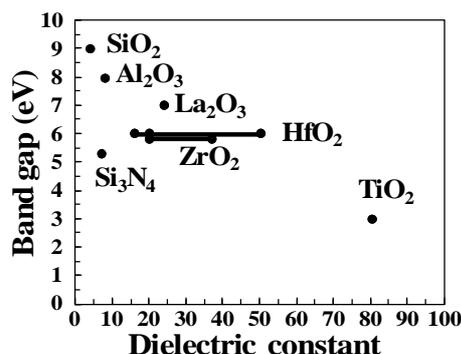


図1 代表的な金属酸化物の B_g と k 値の関係

2. 研究の目的

本提案では、新規な機能性複合酸化物材料の設計として、2種類の金属酸化物を原子レベルで交互に積層させて作製する新たなナノラミネート構造に着目した。手法としては、オングストロームオーダーの原子レベルで制御できる原子層堆積法(Atomic layer deposition: ALD)を用いて、機能性複合酸化物の創成を試みて、得られた膜の結晶構造及び誘電率及び耐圧の電気特性を調べた。

3. 研究の方法

目的とする2種類の金属酸化物から構成されるナノラミネート構造の機能性複合酸化膜として、(HfO₂)_m/(ZrO₂)_n、(HfO₂)_m/(Al₂O₃)_n、(HfO₂)_m/(SiO₂)_n 及び (NbO_x)_m/(ZrO₂)_n の4種類を選択した。機能性複合酸化膜の作製方法としてALDを用いて、 m/n のALDサイクル比率を変える事で各機能性複合酸化膜の組成を制御した。ALD原料として、HfO₂ は Hf[(N(CH₃)₂)₄] (TDMAHf) 及び (C₅H₅)Hf[(N(CH₃)₂)₃] (HfCp) の2種類、ZrO₂ は (C₅H₅)Zr[(N(CH₃)₂)₃] (ZrCp)、SiO₂ は SiH[(N(CH₃)₂)₂]₃ (TDMAS)、Al₂O₃ は Al(CH₃)₃ (TMA) 及び NbO_x は (tert-C₄H₉)N=Nb[N(C₂H₅)₂]₃ (TBTDENb) を選択した。手順としては、先ず、各々の原料と酸化剤として H₂O または O₂ plasma ガスを用いたALDで、ALDサイクルと得られた各々の酸化膜の膜厚(分光エリプソ測定)の関係性を調べた。全ての酸化膜が直線関係を満足することより、その傾きより各々の酸化膜の成長速度(Growth per cycle: GPC)を求めた。そして、このGPCを元に2種類の金属酸化物から成るナノラミネート膜を設計した。例として、(HfO₂)_m/(SiO₂)_n ナノラミネート構造の模式図を図2に示す。ALDのHfO₂及びSiO₂層のサイクル比と作製した(HfO₂)_m/(SiO₂)_n ナノラミネート膜のHf/Si組成比(TEM+EDS分析データ)は直線関係を満足する事が分かった。ALDのサイクル比(m/n)が1/1、2/1及び3/1の場合の膜の組成比は、各々、Hf_{0.44}Si_{0.56}O_x、Hf_{0.57}Si_{0.43}O_x 及び Hf_{0.63}Si_{0.37}O_x であった。他の(HfO₂)_m/(ZrO₂)_n、(HfO₂)_m/(Al₂O₃)_n 及び (NbO_x)_m/(ZrO₂)_n ナノラミネート膜の組成比も同様にALDサイクルを変えて制御できた。

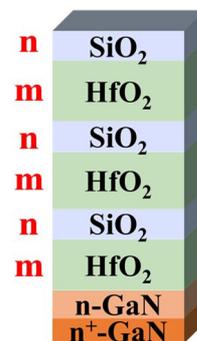


図2 (HfO₂)_m/(SiO₂)_n ナノラミネート構造の模式図

(HfO₂)_m/(ZrO₂)_n 及び (NbO_x)_m/(ZrO₂)_n ナノラミネート膜の電気特性を調べるために、TiN/絶縁膜/TiNのMetal-Insulator-Metal (MIM)構造を用いた。比較として、HfO₂及びZrO₂膜もこのMIM構造を用いた。また、Al₂O₃、HfO₂及び(HfO₂)_m/(SiO₂)_n及び(HfO₂)_m/(Al₂O₃)_n ナノラミネート膜については、GaNパワーデバイスのゲート絶縁膜としての有効性を調べるために、n-GaN/絶縁膜/PtのMetal-Insulator-Semiconductor (MIS)構造を用いた。

4. 研究成果

(1) $(\text{HfO}_2)_m/(\text{ZrO}_2)_n$ ナノラミネート膜の検討

$(\text{HfO}_2)_m/(\text{ZrO}_2)_n$ ナノラミネート膜の m/n 比を変えた場合の結晶構造を調べるために、HfCp 及び ZrCp 原料及び H_2O ガスを用いた成長温度 300 の ALD で、p-Si/ SiO_2 基板上へ膜厚 10nm 成膜した。 $m/n=0/1 \sim 1/4$ の Zr リッチな範囲では、XRD 測定より $2\theta = 30.3^\circ$ 付近にブロードなピークが認められた。これは、 ZrO_2 の tetragonal、orthorhombic 及び cubic 相 ($t, o, c\text{-ZrO}_2$) のいずれかの結晶相である。一方、 $m/n=1/3 \sim 1/0$ の Hf 組成が多くなると、先程のピークを含めていずれのピークも認められず、ラミネート構造を維持したアモルファス膜である事が分かった。これは、ZrCp 原料の ALD では as-grown で ZrO_2 膜が結晶化するのに対して、HfCp 原料の ALD で作製した as-grown の HfO_2 膜はアモルファス構造になったが、同じ Cp 配位子にも係わらず、異なる原料の分解酸化結晶化工程である事を示している。そこで、 $m/n=1/2$ のナノラミネート膜について、熱処理 (Post deposition anneal: PDA) による膜の構造変化について調べた。ここで、 HfO_2 と ZrO_2 膜の ALD 成長速度から求められた $m/n=1/2$ の Hf/Zr 組成は $\text{Hf}_{0.36}\text{Zr}_{0.64}\text{O}_x$ であった。PDA 温度を 300 ~ 500 と変えた場合の XRD パターンを **図3** に示す。As-grown 及び 300 の膜は如何なるピークも認められない事よりアモルファス構造だったが、400 で $t, o, c\text{-ZrO}_2$ 起因のブロードなピークが現れ、この温度で結晶開始することが分かった。そして、500 と高温にしてもブロードなピークのみであり、結晶化が促進される傾向は認められなかった。

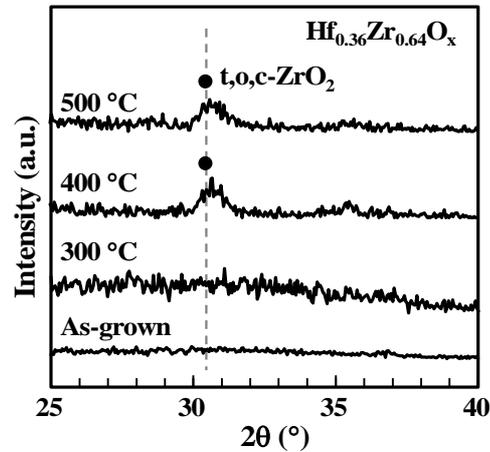


図3 PDA温度300 ~ 500 と変えた場合の $\text{Hf}_{0.36}\text{Zr}_{0.64}\text{O}_x$ 膜のXRDパターン

次に、 $(\text{HfO}_2)_m/(\text{ZrO}_2)_n$ ナノラミネート膜の Hf/Zr 組成、ナノラミネート構造のアモルファス及び結晶構造が電気特性へ及ぼす影響を調べた。p⁺-Si/TiN/ $(\text{HfO}_2)_m/(\text{ZrO}_2)_n$ ナノラミネート膜 (10nm)/TiN の MIM キャパシタを作製した。周波数 10kHz で、電圧を +3 ~ -3V でスイープした C-V 測定から、0V の容量値を求めて、 k 値を算出した。**図4** に $(\text{HfO}_2)_m/(\text{ZrO}_2)_n$ ナノラミネート膜の Hf 濃度と k 値の関係を示す。Hf 濃度 0% (ZrO_2) の As-grown 膜の k 値は 27 であった。そして、Hf 濃度が高くなるに従って k 値が減少する傾向を示した。また、Hf22% 及び 36% のキャパシタを比較して、急激な k 値の変化が認められない事より、 $t, o, c\text{-ZrO}_2$ 結晶相とラミネート構造を維持したアモルファスの結晶構造の影響は小さいと考えられる。PDA300 は、As-grown と同じ k 値であった。しかし、PDA400 では、Hf 濃度が 36% まで k 値が急激に増加した。Hf22% 以下では $t, o, c\text{-ZrO}_2$ 起因の XRD ピークがブロードからシャープに変化して、結晶化が促進した事が分かった。また、Hf36% は、**図4** で説明した様にアモルファス構造から $t, o, c\text{-ZrO}_2$ 構造へ結晶化した。一方、Hf53% はアモルファス構造を維持しており、PDA300 と同じ k 値を示した。PDA500 になると、いずれの Hf 濃度でも k 値は高くなり、約 34 を示した。この PDA 温度になると、Hf53% も $t, o, c\text{-ZrO}_2$ 相が認められ、結晶化した事が確認できた。これは、 $(\text{HfO}_2)_m/(\text{ZrO}_2)_n$ ナノラミネート膜では、結晶性が k 値を決定する主な因子である事を示している。 $(\text{HfO}_2)_m/(\text{ZrO}_2)_n$ ナノラミネート膜の Hf 濃度と絶縁破壊電界 (Breakdown electric field: E_{BD}) の関係を調べた結果を **図5** に示す。リーク電流 ($J = 1 \times 10^{-2} \text{Acm}^{-1}$) での電圧をゲート絶縁膜の膜厚で割った値を E_{BD} とし

As-grown 及び 300 の膜は如何なるピークも認められない事よりアモルファス構造だったが、400 で $t, o, c\text{-ZrO}_2$ 起因のブロードなピークが現れ、この温度で結晶開始することが分かった。そして、500 と高温にしてもブロードなピークのみであり、結晶化が促進される傾向は認められなかった。

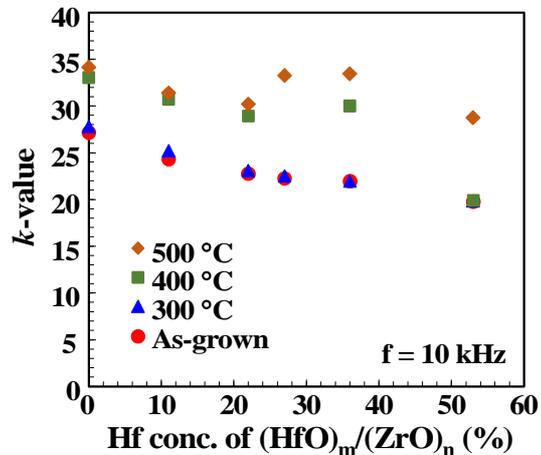


図4 $(\text{HfO}_2)_m/(\text{ZrO}_2)_n$ ナノラミネート膜の Hf 濃度と k 値の関係

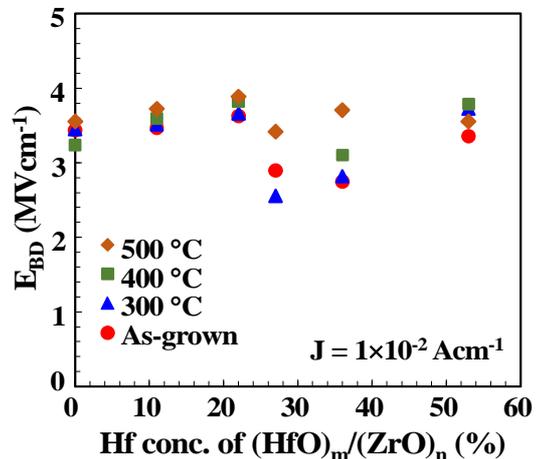


図5 $(\text{HfO}_2)_m/(\text{ZrO}_2)_n$ ナノラミネート膜の Hf 濃度と E_{BD} 値の関係

た。Hf27 及び 36% キャパシタは、PDA400 以下で、 E_{BD} 値が約 3.0MVcm^{-1} 以下と小さな値を示した。しかし、この両キャパシタも、PDA500 になると E_{BD} 値が 3.4MVcm^{-1} まで改善した。一般に、多結晶構造の絶縁膜では、結晶の粒界で耐圧が低下する事が挙げられており、このキャパシタも同様の理由であると推察している。Hf22% まで E_{BD} 値が増加する傾向を示しており、図4の k 値とはトレードオフの関係にあった。これは、目的とするデバイスに対して、 $(\text{HfO}_2)_m/(\text{ZrO}_2)_n$ ナノラミネート膜の Hf/Zr 組成を調整する事で対応できる事を意味している。

(2) GaN デバイスのゲート絶縁膜の検討

GaN パワーデバイスのゲート絶縁膜としては、高電圧のアプリケーションから、高 k 値及びアモルファス構造が望まれている。従来は、 k 値が 3.9 の SiO_2 ゲート絶縁膜であり、物理膜厚を厚くできる高 k 値な材料が期待されていた。ゲート絶縁膜として、 HfSiO_x 膜、 HfAlO_x 膜、 HfO_2 膜及び Al_2O_3 膜の 4 種類を準備した。

n^+ -GaN/ n -GaN エピ/ゲート絶縁膜/Pt の MIS キャパシタは次の手順で作製した。まず、 n^+ -GaN/ n -GaN エピ基板の表面へ付着した有機物の不純物等を除去するために SPM 及び BHF 溶液を用いて洗浄した。 HfSiO_x 膜は図2で説明した様に、成長温度 300°C 、 O_2 plasma ガスを用いた ALD で、 $(\text{HfO}_2)_m/(\text{SiO}_2)_n$ ($m/n=2/1$ 及び $3/1$) ナノラミネート膜を n^+ -GaN/ n -GaN エピ基板へ成膜した。 HfAlO_x 膜も同様に 300°C の ALD で、 $(\text{HfO}_2)_m/(\text{Al}_2\text{O}_3)_n$ ($m/n=2/1$) ナノラミネート膜を成膜した。 HfO_2 膜及び Al_2O_3 膜は、 H_2O ガスを用いた 300°C の ALD で、成膜した。

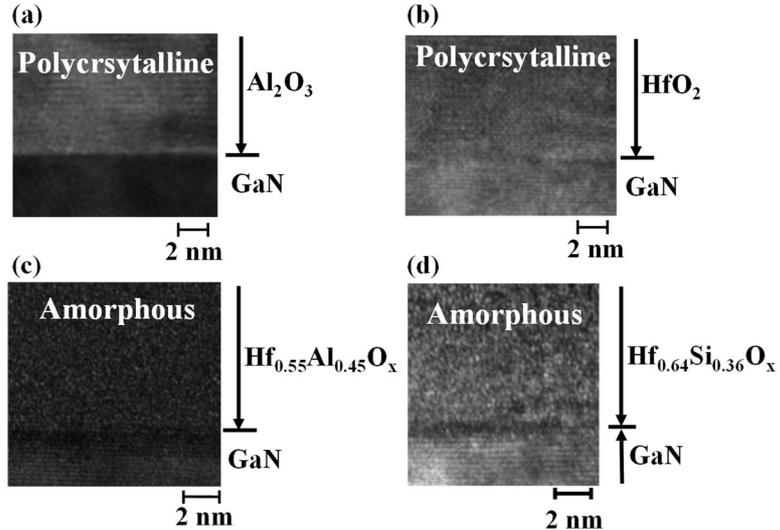


図6 (a) Al_2O_3 、(b) HfO_2 、(c) $\text{Hf}_{0.55}\text{Al}_{0.45}\text{O}_x$ 及び (d) $\text{Hf}_{0.64}\text{Si}_{0.36}\text{O}_x$ 膜の断面TEM像

続いて、 N_2 雰囲気中、PDA800 で熱処理した。PDA800 で熱処理した後の4種類の膜の断面TEM像を図6に示す。図6(a) Al_2O_3 膜は、格子パターンが観察されており、電子線回折像でも Al_2O_3 膜の結晶に伴うスポットが観察され、結晶化している事が分かった。結晶構造は γ - Al_2O_3 相であった。図6(b) HfO_2 膜の格子パターン及び電子線回折像のスポットより結晶化している事が分かった。結晶構造は Monoclinic 相であった。一方、図6(c) $\text{Hf}_{0.55}\text{Al}_{0.45}\text{O}_x$ 及び 6(d) $\text{Hf}_{0.64}\text{Si}_{0.36}\text{O}_x$ 膜は、電子線回折像で如何なるスポットも観察されなかった

より、アモルファス構造であった。一方、アモルファス構造の Al_2O_3 膜を作製するために PDA 処理を実施しなかった。最後に、Pt ゲート電極はゲート絶縁膜上にスパッタリング法で成膜して、Ti/Pt オーミック電極は n^+ -GaN 裏面へスパッタリング法で成膜して、MIS キャパシタを作製した。 Al_2O_3 キャパシタは、 N_2 雰囲気中、 300°C で熱処理した。次に、 $\text{Hf}_{0.55}\text{Al}_{0.45}\text{O}_x$ 、 $\text{Hf}_{0.57}\text{Si}_{0.43}\text{O}_x$ 及び Al_2O_3 ゲート絶縁膜の信頼性を議論するために、Positive bias stress (PBS) でのフラットバンド電圧 (V_{fb}) のシフトを調べた。 V_{fb} 値からのストレス実効電界 (Effective E (E_{eff}) from V_{fb}) を印可したまま、ストレス時間を $0 \sim 300\text{s}$ と変えた。ストレス時間 300s における E_{eff} from V_{fb} と V_{fb} シフトの関係を図7に示す。 Al_2O_3 膜はストレス電界が大きくなるに従って、 V_{fb} シフトも急激に増大する傾向を示した。 E_{eff} from V_{fb}

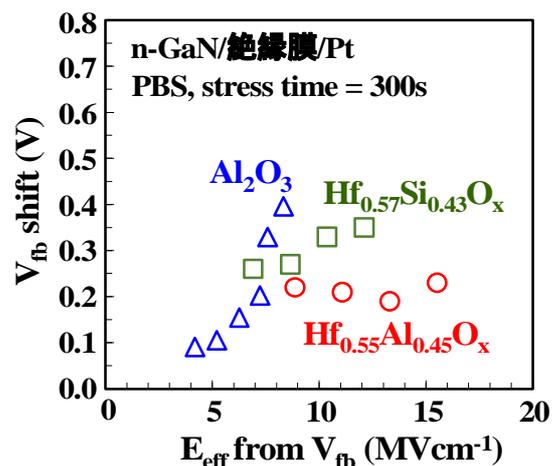


図7 Al_2O_3 、 $\text{Hf}_{0.55}\text{Al}_{0.45}\text{O}_x$ 及び $\text{Hf}_{0.57}\text{Si}_{0.43}\text{O}_x$ 膜のPBSでの V_{fb} シフト

が約 8.2MVcm^{-1} での V_{fb} シフトは、 Al_2O_3 (0.4V) > $\text{Hf}_{0.57}\text{Si}_{0.43}\text{O}_x$ (0.25V) > $\text{Hf}_{0.55}\text{Al}_{0.45}\text{O}_x$ (0.2V) の順で大きくなった。また、 $\text{Hf}_{0.55}\text{Al}_{0.45}\text{O}_x$ 膜は、 E_{eff} from V_{fb} が 15MVcm^{-1} でも、 V_{fb} シフト値が 0.25V と非常に小さく、優れた信頼性特性を示す事が分かった。これより、GaN パワーデバイスのゲート絶縁膜の候補材料として、 k 値も 17.2 と大きい HfAlO_x 膜が有望である事が分かった。

(3) 単一金属酸化物膜及び複合酸化物膜の誘電率特性

ナノラミネート構造膜の研究及び GaN パワーデバイス用ゲート絶縁膜の研究から、得られた単一金属酸化物膜としての Al_2O_3 、 HfO_2 及び ZrO_2 及び複合酸化物膜としての HfSiO_x 、 HfAlO_x 及び ZrNbO_x の k 値と B_g の関係を既に説明した図 1 に再プロットした図 8 に示す。赤字のシンボルが本研究で得られた k 値のデータである。 ZrNbO_x の B_g 値は、 ZrO_2 と Nb_2O_5 の B_g より推定した値を用いた。結晶化した ZrO_2 膜が最も大きな k 値を示した。また、GaN パワーデバイスで要求されるアモルファス構造で比較的大きな k 値を考慮すると、 HfAlO_x が有望である事がこの図からも分かる。今後も、デバイスのアプリケーションに対応した絶縁膜の材料開発は必要であり、今回、採用した ALD による 2 種類の金属酸化物からなるナノラミネート構造の作製は、新たなナノ材料設計の点で有望な手法の一つと言える。

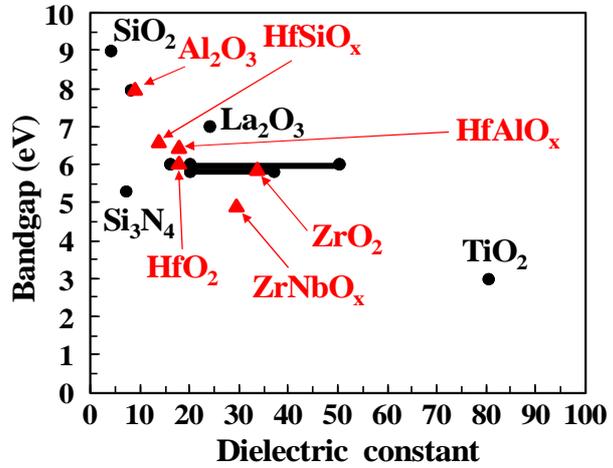


図8 本研究で得られた単一金属酸化物膜及び複合酸化物膜の B_g と k 値の関係

<引用文献>

- [1] S. Miyazaki et al., Appl. Sur. Sci. 113/114, 585(1997).
- [2] J. Robertson, J. Appl. Phys. 100, 014111(2006).
- [3] T. Nabatame et al., J. Vac. Sci. Technol. A 33, 01A118(2014).

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計12件（うち査読付論文 12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 Onaya Takashi, Nabatame Toshihide, Inoue Mari, Sawada Tomomi, Ota Hiroyuki, Morita Yukinori	4. 巻 10
2. 論文標題 Wake-up-free properties and high fatigue resistance of HfxZr1-xO2-based metal-ferroelectric-semiconductor using top ZrO2 nucleation layer at low thermal budget (300 °C)	5. 発行年 2022年
3. 雑誌名 APL Materials	6. 最初と最後の頁 051110 ~ 051110
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1063/5.0091661	査読の有無 有
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 生田目 俊秀	4. 巻 74
2. 論文標題 電子デバイスへ向けた原子層堆積法で作製した金属酸化膜の研究	5. 発行年 2023年
3. 雑誌名 表面技術	6. 最初と最後の頁 137 ~ 140
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) なし	査読の有無 有
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 Nabatame Toshihide, Maeda Erika, Inoue Mari, Hirose Masafumi, Irokawa Yoshihiro, Ohi Akihiko, Ikeda Naoki, Onaya Takashi, Shiozaki Koji, Ochi Ryota, Hashizume Tamotsu, Koide Yasuo	4. 巻 39
2. 論文標題 Influence of HfO2 and SiO2 interfacial layers on the characteristics of n-GaN/HfSiOx capacitors using plasma-enhanced atomic layer deposition	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 Journal of Vacuum Science & Technology A	6. 最初と最後の頁 062405 ~ 062405
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1116/6.0001334	査読の有無 有
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 Onaya Takashi, Nabatame Toshihide, Inoue Mari, Sawada Tomomi, Ota Hiroyuki, Morita Yukinori	4. 巻 104
2. 論文標題 Study of SiO2 Interfacial Layer Growth during Fabrication Process of Ferroelectric HfxZ1-xO2-Based Metal-Ferroelectric Semiconductor	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 ECS Transactions	6. 最初と最後の頁 129 ~ 135
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1149/10404.0129ecst	査読の有無 有
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 Nabatame Toshihide, Maeda Erika, Inoue Mari, Hirose Masafumi, Ochi Ryota, Sawada Tomomi, Irokawa Yoshihiro, Hashizume Tamotsu, Shiozaki Koji, Onaya Takashi, Tsukagoshi Kazuhito, Koide Yasuo	4. 巻 104
2. 論文標題 (Invited) Study of HfO ₂ -Based High-k Gate Insulators for GaN Power Device	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 ECS Transactions	6. 最初と最後の頁 113 ~ 120
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1149/10404.0113ecst	査読の有無 有
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 Sawada Tomomi, Nabatame Toshihide, Onaya Takashi, Inoue Mari, Ohi Akihiko, Ikeda Naoki, Tsukagoshi Kazuhito	4. 巻 104
2. 論文標題 Importance of Annealing Step on Dielectric Constant of ZrO ₂ Layer of MIM Capacitors with Al ₂ O ₃ /ZrO ₂ and ZrO ₂ /Al ₂ O ₃ Stack Structures	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 ECS Transactions	6. 最初と最後の頁 121 ~ 128
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1149/10404.0121ecst	査読の有無 有
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 Onaya Takashi, Nabatame Toshihide, Inoue Mari, Jung Yong Chan, Hernandez-Arriaga Heber, Mohan Jaidah, Kim Harrison Sejoon, Sawamoto Naomi, Nagata Takahiro, Kim Jiyoung, Ogura Atsushi	4. 巻 98
2. 論文標題 Improvement of Ferroelectricity and Fatigue Property of Thicker Hf _x Zr _{1-x} O ₂ /ZrO ₂ Bi-layer	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 ECS Transactions	6. 最初と最後の頁 63 ~ 70
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1149/09803.0063ecst	査読の有無 有
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 Onaya Takashi, Nabatame Toshihide, Inoue Mari, Jung Yong Chan, Hernandez-Arriaga Heber, Mohan Jaidah, Kim Harrison Sejoon, Sawamoto Naomi, Nagata Takahiro, Kim Jiyoung, Ogura Atsushi	4. 巻 117
2. 論文標題 Improvement in ferroelectricity and breakdown voltage of over 20-nm-thick Hf _x Zr _{1-x} O ₂ /ZrO ₂ bilayer by atomic layer deposition	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 Applied Physics Letters	6. 最初と最後の頁 232902 ~ 232902
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1063/5.0029709	査読の有無 有
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 Hirose Masafumi, Nabatame Toshihide, Irokawa Yoshihiro, Maeda Erika, Ohi Akihiko, Ikeda Naoki, Sang Liwen, Koide Yasuo, Kiyono Hajime	4. 巻 39
2. 論文標題 Interface characteristics of -Ga2O3/Al2O3/Pt capacitors after postmetallization annealing	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 Journal of Vacuum Science &Technology A	6. 最初と最後の頁 012401 ~ 012401
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1116/6.0000626	査読の有無 有
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 Kobayashi Riku, Nabatame Toshihide, Onaya Takashi, Ohi Akihiko, Ikeda Naoki, Nagata Takahiro, Tsukagoshi Kazuhito, Ogura Atsushi	4. 巻 60
2. 論文標題 Comparison of characteristics of thin-film transistor with In2O3 and carbon-doped In2O3 channels by atomic layer deposition and post-metallization annealing in O3	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 Japanese Journal of Applied Physics	6. 最初と最後の頁 030903 ~ 030903
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.35848/1347-4065/abde54	査読の有無 有
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 Onaya Takashi, Nabatame Toshihide, Jung Yong Chan, Hernandez-Arriaga Heber, Mohan Jaidah, Kim Harrison Sejoon, Sawamoto Naomi, Nam Chang-Yong, Tsai Esther H. R., Nagata Takahiro, Kim Jiyoung, Ogura Atsushi	4. 巻 9
2. 論文標題 Correlation between ferroelectricity and ferroelectric orthorhombic phase of HfxZr1-xO2 thin films using synchrotron x-ray analysis	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 APL Materials	6. 最初と最後の頁 031111 ~ 031111
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1063/5.0035848	査読の有無 有
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 Kobayashi Riku, Nabatame Toshihide, Onaya Takashi, Ohi Akihiko, Ikeda Naoki, Nagata Takahiro, Tsukagoshi Kazuhito, Ogura Atsushi	4. 巻 60
2. 論文標題 Influence of adsorbed oxygen concentration on characteristics of carbon-doped indium oxide thin-film transistors under bias stress	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 Japanese Journal of Applied Physics	6. 最初と最後の頁 SCCM01 ~ SCCM01
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.35848/1347-4065/abe685	査読の有無 有
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29件（うち招待講演 6件 / うち国際学会 17件）

1. 発表者名 Takashi Onaya, Toshihide Nabatame, Yukinori Morita, Hiroyuki Ota, Shinji Migita, Koji Kita, Takahiro Nagata, Kazuhito Tsukagoshi
2. 発表標題 Ferroelectric HfxZr1-xO2-based capacitors with controlled-oxidation surface of TiN bottom-electrode
3. 学会等名 MNC 2022, 35th International Microprocesses and Nanotechnology Conference. 2022 (国際学会)
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 Tomomi Sawada, Toshihide Nabatame, Makoto Takahashi, Kazuhiro Ito, Takashi Onaya, Yoshihiro Irokawa, Yasuo Koide, Kazuhiro Tsukagoshi
2. 発表標題 Structural change of Ga2O3 film on GaN(0001) substrate by atomic layer deposition and post-deposition annealing
3. 学会等名 MNC 2022, 35th International Microprocesses and Nanotechnology Conference. 2022 (国際学会)
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 Toshihide Nabatame
2. 発表標題 Study of gate insulator for GaN power device using atomic layer deposition
3. 学会等名 MNC 2022, 35th International Microprocesses and Nanotechnology Conference. 2022 (招待講演) (国際学会)
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 Toshihide Nabatame, Tomomi Sawada, Makoto Takahashi, Kazuhiro Ito, Takashi Onaya, Yoshihiro Irokawa, Yasuo Koide, Kazuhiro Tsukagoshi
2. 発表標題 Growth of Ga2O3 films on Si and GaN substrates by atomic layer deposition and post-deposition annealing
3. 学会等名 Visual-JW 2022 & DEJI2MA-2 (招待講演) (国際学会)
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 女屋 崇, 生田目 俊秀, 長田 貴弘, 上田 茂典, Y. C. Jung, H. Hernandez-Arriaga, J. Mohan, J. Kim, C.-Y. Nam, E. H. R. Tsai, 喜多 浩之, 右田 真司, 太田 裕之, 森田 行則
2. 発表標題 異なる酸化剤を用いた原子層堆積法により作製した 強誘電体HfxZr1 - xO2/TiNの構造評価
3. 学会等名 2022年 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 澤田 朋実, 生田目 俊秀, 高橋 誠, 伊藤 和博, 女屋 崇, 色川 芳宏, 小出 康夫, 塚越 一仁
2. 発表標題 GaN(0001)基板上でのアモルファスGa2O3膜の熱処理による高配向結晶成長
3. 学会等名 第28回 電子デバイス界面テクノロジー研究会
4. 発表年 2023年

1. 発表者名 女屋 崇, 生田目 俊秀, 森田 行則, 太田 裕之, 右田 真司, 喜多 浩之, 長田 貴弘, 塚越 一仁, 松川 貴
2. 発表標題 TiN下部電極の表面酸化による強誘電体TiN/HfxZr1 - xO2/TiNキャパシタの分極疲労の抑制
3. 学会等名 第28回 電子デバイス界面テクノロジー研究会
4. 発表年 2023年

1. 発表者名 生田目 俊秀
2. 発表標題 酸化物半導体デバイスにおける原子層堆積技術の最前線.
3. 学会等名 2023年 第70回応用物理学会春季学術講演会 (招待講演)
4. 発表年 2023年

1. 発表者名 女屋 崇, 長田 貴弘, 生田目 俊秀, 山下 良之, 塚越 一仁, 森田 行則, 太田 裕之, 右田 真司, 喜多 浩之
2. 発表標題 分極疲労時の強誘電体Hf _x Zr _{1-x} O ₂ /TiN界面反応に起因した酸素欠損生成の起源
3. 学会等名 2023年 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 Toshihide Nabatame, Erika Maeda, Mari Inoue, Ryota Ochi, Yasuhiro Irokawa, Tamotsu Hashizume, Koji Shiozaki, Yasuo Koide
2. 発表標題 Study of HfSiO _x film as gate insulator for GaN power device
3. 学会等名 20th International Workshop on Junction Technology 2021 (招待講演) (国際学会)
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 Takashi Onaya, Toshihide Nabatame, Naomi, Sawamoto, Akihiko Ohi, Naoki Ikeda, Takahiro Nagata, Atsushi Ogura
2. 発表標題 Effect of Ti Scavenging Layer on Ferroelectricity of Hf _x Zr _{1-x} O ₂ Thin Films Fabricated by Atomic Layer Deposition Using Hf/Zr Cocktail Precursor
3. 学会等名 AVS 21st International Conference on Atomic Layer Deposition (ALD 2021) (国際学会)
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 Toshihide Nabatame, Mari Inoue, Erika Maeda, Takashi Onaya, Masashi Hirose, Riku Kobayashi, Akihiko Ohi, Naoki Ikeda, Kazuhito Tsukagoshi
2. 発表標題 Study of SiO ₂ growth mechanism between a single SiO ₂ and (HfO ₂)/(SiO ₂) nanolaminate formation by ALD using TDMAS and H ₂ O gas
3. 学会等名 21st International Conference on Atomic Layer Deposition. 2021 (国際学会)
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 Toshihide Nabatame, Erika Maeda, Mari Inoue, Masashi Hirose, Ryota Ochi, Yasuhiro Irokawa, Tamotsu Hashizume, Koji Shiozaki, Yasuo Koide
2. 発表標題 Investigation of HfSiOx gate insulator formed by changing fabrication process conditions for GaN power device
3. 学会等名 2021 Asia-Pacific Workshop on Fundamentals and Applications of Advanced Semiconductor Devices (AWAD 2021) (招待講演) (国際学会)
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 女屋 崇, 生田目 俊秀, 井上 万里, 澤田 朋実, 太田 裕之, 森田 行則
2. 発表標題 TiN/HfZr1-xO2/Si-MFS作製におけるSiO2界面層成長の抑制
3. 学会等名 第82回応用物理学会秋季学術講演会
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 Takashi Onaya, Toshihide Nabatame, Mari Inoue, Tomomi Sawada, Hiroyuki Ota, Yukinori Morita
2. 発表標題 Study of SiO2 Interfacial Layer Growth during Fabrication Process of Ferroelectric HfZr1-xO2-Based Metal-Ferroelectric-Semiconductor
3. 学会等名 240th ECS Meeting (国際学会)
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 Sawada Tomomi, Nabatame Toshihide, Onaya Takashi, Inoue Mari, Ohi Akihiko, Ikeda Naoki, Tsukagoshi Kazuhito
2. 発表標題 Importance of Annealing Step on Dielectric Constant of ZrO2 Layer of MIM Capacitors with Al2O3/ZrO2 and ZrO2/Al2O3 Stack Structures
3. 学会等名 240th ECS Meeting (国際学会)
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 Nabatame Toshihide, Maeda Erika, Inoue Mari, Hirose Masafumi, Ochi Ryota, Sawada Tomomi, Irokawa Yoshihiro, Hashizume Tamotsu, Shiozaki Koji, Onaya Takashi, Tsukagoshi Kazuhito, Koide Yasuo
2. 発表標題 Study of HfO ₂ -based High-k gate insulators for GaN power device
3. 学会等名 240th ECS Meeting (国際学会)
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 女屋 崇, 生田目 俊秀, 長田 貴弘, 上田 茂典, Yong Chan Jung, Heber Hernandez-Arriaga, Jaidah Mohan, Jiyoung Kim, Chang-Yong Nam, Esther H. R. Tsai, 太田 裕之, 森田 行則
2. 発表標題 強誘電性の向上へ向けたTiN/Hf _x Zr _{1-x} O ₂ 界面のTiO _x Ny層の重要性
3. 学会等名 第27回 電子デバイス界面テクノロジー研究会. 2022
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 Toshihide Nabatame, Takashi Onaya, Erika Maeda, Masashi Hirose, Yoshihiro Irokawa, Koji Shiozaki, Yasuo Koide
2. 発表標題 Study of ALD HfO ₂ -based high-k for GaN power devices and Ferroelectric devices
3. 学会等名 20th International conference on Atomic Layer Deposition (ALD/ALE 2020) (招待講演) (国際学会)
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 小林 陸, 生田目 俊秀, 女屋 崇, 大井 暁彦, 池田 直樹, 長田 貴弘, 塚越 一仁, 小椋 厚志
2. 発表標題 Air及びN ₂ 雰囲気のパイアストレスによるアモルファスCarbon-doped In ₂ O ₃ TFTのトランジスタ特性
3. 学会等名 第81回応用物理学会秋季学術講演会
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 前田 瑛里香, 生田目 俊秀, 廣瀬 雅史, 井上 万里, 大井 暁彦, 池田 直樹, 塩崎宏司, 橋詰保, 清野肇
2. 発表標題 GaNパワーデバイス用HfAlO _x , HfSiO _x , AlSiO _x , Al ₂ O ₃ 及びHfO ₂ 絶縁膜の特性比較
3. 学会等名 第81回応用物理学会秋季学術講演会
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 女屋 崇, 生田目 俊秀, 井上 万里, Yong Chan Jung, Heber Hernandez-Arriaga, Jaidah Mohan, Harrison S. Kim, 澤本 直美, 長田 貴弘, Jiyoung Kim, 小椋 厚志
2. 発表標題 HfxZr1 - xO2/ZrO2積層構造による強誘電体厚膜の強誘電性の向上
3. 学会等名 第81回応用物理学会秋季学術講演会
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 Takashi Onaya, Toshihide Nabatame, Mari Inoue, Yong Chan Jung, Heber Hernandez-Arriaga, Jaidah Mohan, Harrison S Kim, Naomi Sawamoto, Takahiro Nagata, Jiyoung Kim, Atsushi Ogura
2. 発表標題 Improvement of Ferroelectricity and Fatigue Property of Thicker HfxZr1 - xO2/ZrO2 Bi-layer
3. 学会等名 Pacific Rim Meeting on Electrochemical and Solid-State Science 2020 (PRIME 2020) (国際学会)
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 Toshihide Nabatame, Tomoji Oishi, Mari Inoue, Makoto Takahashi, Kazuhiro Ito, Naoki Ikeda, Akihiko Ohi
2. 発表標題 Characteristic of flexible ReRAM with Al ₂ O ₃ /TiO ₂ active layer by ALD and PDA process at low temperature
3. 学会等名 Pacific Rim Meeting on Electrochemical and Solid-State Science 2020 (PRIME 2020) (国際学会)
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 Riku Kobayashi, Toshihide Nabatame, Takahsi Onaya, Akihiko Ohi, Naoki Ikeda, Takahiro Nagata, Kazuhito Tsukagoshi, Atsusi Ogura
2. 発表標題 Influence of Adsorbed O ₂ on The Gate-Bias Stress Stability of Back-Gate-Type TFT with Carbon-Doped In ₂ O ₃ Channel
3. 学会等名 33rd International Microprocesses and Nanotechnology Conference 2020 (国際学会)
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 Takashi Onaya, Toshihide Nabatame, Mari Inoue, Yong Chan Jung, Heber Hernandez-Arriaga, Jaidah Mohan, Harrison Sejoon Kim, Naomi Sawamoto, Takahiro Nagata, Jiyoung Kim, Atsushi Ogura
2. 発表標題 Possibility of Above 20-nm-Thick HfxZr _{1-x} O ₂ /ZrO ₂ and HfxZr _{1-x} O ₂ /HfO ₂ Bilayers for High Polarization and Breakdown Voltage
3. 学会等名 51th IEEE Semiconductor Interface Specialists Conference. 2020 (国際学会)
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 女屋 崇, 生田目 俊秀, Yong Chan Jung, Heber Hernandez-Arriaga, Jaidah Mohan, Harrison Sejoon Kim, 澤本 直美, 長田 貴弘, Jiyoung Kim, 小椋 厚志
2. 発表標題 Study on Ferroelectric Switching Properties and Fatigue Mechanism of Low-Temperature Fabricated HfxZr _{1-x} O ₂ Thin Films using Pulse Measurement
3. 学会等名 第26回 電子デバイス界面テクノロジー研究会 - 材料・プロセス・デバイス特性の物理 - (EDIT26). 2021
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 Takashi Onaya, Toshihide Nabatame, Naomi Sawamoto, Akihiko Ohi, Naoki Ikeda, Takahiro Nagata, Atsushi Ogura
2. 発表標題 Control of ferroelectric phase formation in HfxZr _{1-x} O ₂ thin films using nano-ZrO ₂ nucleation layer technique
3. 学会等名 MANA International Symposium 2021 (国際学会)
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 女屋 崇, 生田目 俊秀, Yong Chan Jung, Heber Hernandez-Arriaga, Jaidah Mohan, Harrison Sejoon Kim, 澤本 直美, Chang-Yong Nam, Esther H. R. Tsai, 長田 貴弘, Jiyoung Kim, 小椋 厚志
2. 発表標題 放射光X線による低温形成したHfxZr1 - xO2薄膜の直方晶相同定の検討
3. 学会等名 第68回応用物理学会春季学術講演会
4. 発表年 2021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
研究分担者	池田 直樹 (IKEDA NAOKI) (10415771)	国立研究開発法人物質・材料研究機構・技術開発・共用部門・主任エンジニア (82108)	
研究分担者	大井 暁彦 (OHI AKIHIKO) (20370364)	国立研究開発法人物質・材料研究機構・技術開発・共用部門・主任エンジニア (82108)	
研究分担者	塚越 一仁 (TSUKAGOSHI KAZUHI TO) (50322665)	国立研究開発法人物質・材料研究機構・ナノアーキテクトニクス材料研究センター・グループリーダー (82108)	

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
---------	---------