

令和 5 年 5 月 30 日現在

機関番号：13302

研究種目：基盤研究(A) (一般)

研究期間：2020～2022

課題番号：20H00240

研究課題名(和文) 強誘電体分極ダイナミクスを利用した急峻スイッチトランジスタの基盤技術構築

研究課題名(英文) Investigation of steep-slope transistor using ferroelectric polarization dynamics

研究代表者

徳光 永輔 (Tokumitsu, Eisuke)

北陸先端科学技術大学院大学・先端科学技術研究科・教授

研究者番号：10197882

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 35,000,000円

研究成果の概要(和文)：本研究では「負性容量」により急峻なスイッチング特性が得られるとされている強誘電体ゲートトランジスタに関して、強誘電体の分極ダイナミクスに立ち戻ってその動作機構を検討した。RC回路のパルス応答解析、強誘電体・半導体積層構造での半導体表面ポテンシャルの計算等から、「負性容量」特性は従来から言われているランダウの相転移理論による解釈は必ずしも必要ではなく、強誘電体の分極反転に伴って発現する現象であることが強く示唆された。また酸化物チャネルを用いて良好なトランジスタ特性が得られた。さらに、ナノラミネート構造による物性制御、正圧電応答を用いた新たな測定技術など、新たな知見も得られた。

研究成果の学術的意義や社会的意義

半導体デバイスの低電圧動作、低消費電力化が求められる中、本研究では急峻なスイッチング特性が得られる強誘電体ゲートトランジスタに関して、従来から言われているランダウの相転移理論上の「負性容量」によるという解釈ではなく、強誘電体の分極反転に伴って発現する現象であることを強く示唆する結果が得られた。これは今後の低電圧動作デバイス設計に大きな指針を与える成果である。また上記に加えて、HfO<sub>2</sub>系強誘電体膜形成時の酸化状態制御、ナノラミネート構造による物性制御、正圧電応答を用いた新たな測定技術など、今後の当該分野の発展に向けてのいくつかの新たな研究成果が得られた。

研究成果の概要(英文)：In this research, we have investigated the operation mechanism of ferroelectric gate transistors, which have steep slope characteristics due to the “negative capacitance”, from the viewpoint of polarization domain dynamics. It is strongly suggested from pulse response analysis of RC circuits and calculation of surface potential of ferroelectric/semiconductor structures that the “negative capacitance” appears with the polarization reversal of the ferroelectric film. It is not always necessary to interpret this phenomenon according to Landau’s phase transition theory. In addition, we have obtained several important results, such as oxidation control during the formation of HfO<sub>2</sub>-based ferroelectric films, polarization control by nanolaminate structures, and new measurement technique using positive piezoelectric response.

研究分野：半導体デバイス

キーワード：強誘電体 分極ダイナミクス 急峻スロープトランジスタ 負性容量

## 1. 研究開始当初の背景

Internet of Things (IoT:モノのインターネット) 応用や高度化・多機能化するモバイル端末の発展に伴い、半導体集積回路にはこれまで以上に低消費電力化が求められている。特に集積回路中に数百億個搭載されるトランジスタの低消費電力化、低電圧動作は必須である。現在使われている金属/酸化物/半導体電界効果型トランジスタ (MOSFET) では、トランジスタがいかにか急峻にスイッチングするかを示すサブスレッショルド係数 (S 値) は室温 (300K) で 60mV/decade が理論的な下限であり、この値より小さくできないために更なる低電圧化の障害になっている。そこで近年では、より急峻なスイッチングが可能な (S 値の小さい) 新しい原理のトランジスタ (急峻スロープトランジスタ) の開発が強く求められるようになり、トンネル効果を利用したデバイスなどいくつかの提案がある。その中でも強誘電体をゲート絶縁膜として利用した強誘電体ゲートトランジスタは、シリコン MOSFET と整合性がよく既に MOSFET で使用されていた HfO<sub>2</sub> 系材料で強誘電性が発見されたこともあって有望視されている。提案されているモデルは、強誘電体の「負性容量」を利用するというもので、強誘電体の分極-電界 (P-E) ヒステリシス特性をランダウの相転移理論で記述した際に現れる「 $dQ/dV < 0$ 」となる負性容量領域を利用して急峻なスイッチング特性が得られると主張している。その後、実際に HfO<sub>2</sub> 系強誘電体材料をゲート絶縁膜として用いたシリコン MOSFET において 60mV/decade 以下の S 値が報告されている。しかし、ランダウの相転移理論は強誘電体を均質媒体と見なした現象論であり、不均質媒体の分極反転や反転電流の影響、強誘電体ドメインの挙動など、実際の強誘電体膜の分極ダイナミクスを記述するものではない。従って強誘電体ゲートトランジスタにおける急峻スイッチングの物理は必ずしも明確ではない。そこで本研究では、強誘電体の分極ダイナミクスに立ち戻り、それに基づいた新しいモデルを構築して低電圧駆動トランジスタに応用することを意図して研究を実施した。

## 2. 研究の目的

本研究の目的は、分極ダイナミクスに基づいて強誘電体の多様な振る舞いを正確に把握し、急峻スロープトランジスタの動作に対して新しいモデルを提示し、強誘電体ゲート絶縁膜を用いた次世代の低電圧動作トランジスタの基盤技術を構築することである。

## 3. 研究の方法

本研究は、ワークパッケージ WP1~WP3 の 3 グループを構成し、分極ダイナミクスを、WP1: 飽和ループから得られる飽和 (フル) 分極とデバイス応用、WP2: 微小分極とその制御、WP3: 半導体との分極相互作用と評価、の 3 つのカテゴリーに分類し、互いに連携 (試料提供、測定結果の共有、モデル構築の議論) しながら研究を実施した。これに対応してそれぞれ研究内容は、WP1 が基礎検討、WP2 が材料物性制御、WP3 が評価応用を含んでいる。

WP1 では強誘電体飽和ループを利用したフル分極のダイナミクスを明らかにし、負性容量発現の寄与を検討するとともに、酸化物半導体をチャンネルに用いた強誘電体ゲートトランジスタを試作した。WP2 では、スパッタ法により強誘電体 Hf-Zr-O (HZO) 膜を作製して他グループに試料提供するとともに、シリコンデバイス応用では微小分極が寄与することを考慮し、強誘電体薄膜の微細構造と新たにナノラミネート構造による分極制御技術について検討した。WP3 では半導体と強誘電体分極の相互作用という観点から負性容量が発現するモデルを提案した。さらに電圧を印加せずに圧電応答を得ることが可能な正圧電応答を用いて時間依存性を示すインプリント、及びウエイクアップ効果を精査するとともに、分極相互作用という観点から強誘電体ゲートトランジスタの分極反転挙動を強誘電性ドメインとそれ以外の静電的な効果とを区別して正確に見積もる手法を検討した。

## 4. 研究成果

### <WP1>

WP1 では、最初に強誘電体キャパシタと直列抵抗からなる簡単な RC 回路のパルス応答の解析を実施した。キャパシタを常誘電成分と純粋な強誘電成分に分けて考え、常誘電成分の充放電電流にフル分極が反転する際の反転電流を加えることで電流応答を計算した。強誘電体の分極反転モデルには、Kolmogorov-Avrami-Ishibashi (KAI) モデルを用い、HfO<sub>2</sub> 系強誘電体を想定したパラメータを設定して解析を実施した。電流の時間変化を計算すると、分極反転電流は常誘電成分の放電電流よりも遅れて生成するために、電流値は一旦低下してから上昇し、ピークを迎えて再度減少することが明らかとなった。これに伴い、強誘電体キャパシタ両端の電圧は一旦増加してから減少に転じ、再び上昇する。この強誘電体両端の電圧の減少が負性容量の回路動作的な発現に寄与している。図 1 は強誘電体の電圧の変化と、電荷量から再構成した強誘電体の分極-電圧 (P-V) 特性である。パラメータ  $n$  は KAI モデルにおいて分極ドメインの広がり方を表す次元因子であり、 $n=1$  から  $n=3$  になると、初期に停滞時間が存在した後、より急峻な分極 (電荷) 反転が起こる。再構成した P-V 特性より傾きが負の領域、すなわち負性容量特性が現れているこ

とが認められるが、これはランダウの相転移理論から計算されるS字曲線とは関係がない。また  $n=3$  となると反転電流がより遅れて急峻に生成されるため、負性容量の効果が顕著になる。以上のように、分極反転電流を考慮することで、ランダウモデルを用いずに回路的な負性容量特性が発現することが明らかとなった。強誘電体ゲート構造の場合は、強誘電体キャパシタと半導体容量の直列接続と近似できるが、この場合も分極反転に伴う電荷移動によって常誘電体容量側に電圧が生じるため、同様な動作になると考えられる。

次に WP1 ではフル分極を利用した酸化物チャネル強誘電体ゲート薄膜トランジスタを試作した。溶液プロセスにより形成した Y または La をドーブした Hf-Zr-O (HZO) 膜、WP2 より提供を受けたスパッタ HZO 膜をゲート絶縁膜に、 $\text{In}_2\text{O}_3$  または Sn ドープ  $\text{In}_2\text{O}_3$  (ITO) をチャネルに用いて、様々な形成条件、組成や膜厚等のデバイスパラメータを変化させて強誘電体ゲート薄膜トランジスタを試作し、その特性を評価した。Sn の組成を大きく変えた ITO をチャネルとしたデバイス試作では、Sn 濃度が 20% 以下の場合に良好なトランジスタ特性と小さい S 値が得られた。図 2 は ITO (Sn 濃度 5%) チャネル、Y-HZO ゲート絶縁膜の両方の層を溶液プロセスで形成して作製したデバイスの伝達特性の例である。大きなオンオフ比とメモリウインドウをもつ良好なトランジスタ特性が得られている。その他、WP1 では、 $\text{HfO}_2$  系薄膜形成時の酸化状態制御が、強誘電性を示す直方晶の形成に重要であり、原子状水素照射や酸素吸収層の導入で制御可能であること、さらに準安定相である強誘電性を示す直方晶の安定性が形成する手法 (スパッタ法と溶液プロセス) によって大きく異なるという新たな知見も得られている。

#### <WP2>

負性容量効果は、強誘電体が分極反転する際に生じる静電容量の非線形かつ急峻な応答によって引き起こされるものと考えられる。これをトランジスタのスイッチングに応用するためには、強誘電体薄膜の結晶相や電気特性の振る舞いを詳細に把握することが重要である。WP2 ではデバイス応用の期待が最も高まっている  $\text{HfO}_2\text{-ZrO}_2$  系材料を取り上げて結晶相や電気特性の特徴を調査した。

実験は  $\text{HfO}_2$  と  $\text{ZrO}_2$  を 0.25 nm の厚さで交互堆積したナノラミネート構造の試料と、従来と同様に  $\text{HfO}_2$  と  $\text{ZrO}_2$  を混合した膜について、膜厚を 12 nm に揃えて同じ熱処理を実施し、電気特性を比較した。代表的な結果を図 3 に示す。ナノラミネート構造膜の場合には良好な強誘電特性が出現している (実線)。一方の混合膜の場合には反強誘電的な特性が現れた (破線)。これは、単結晶を発現する傾向が強い  $\text{HfO}_2$  と正方晶を形成しやすい  $\text{ZrO}_2$  を層状に形成することで、両者の結晶相生成力が拮抗し、強誘電性が現れる直方晶の生成が促進されたためと考えられ、ナノスケールの構造設計が生成する結晶相に大きく影響を与えることを示している。負性容量効果をシリコントランジスタ応用する際、強誘電体に発生する自発分極電荷量がチャネルのポテンシャル変調に必要な電荷量に比べて 10 倍以上大きいという問題があるが、強誘電性と反強誘電性がバランスしたキャパシタを製作し、界面に現れる電荷量を自在に制御することができれば、この課題を克服でき、強誘電体ゲートの新しい材料設計の指針策定に貢献すると期待される。

次に  $\text{Hf}_{0.5}\text{Zr}_{0.5}\text{O}_2$  強誘電体キャパシタに電界を加えた際の電流特性を詳細に調べたところ、1 回目とそれ以降では電流の挙動が大きく異なることを見出した。フレッシュなキャパシタに電界を加え始めると、最初は電流が非常に小さくノイズレベルであるが抗電界を超えた付近から電流が急増する。そして一度電流が発生すると、それ以降は初回とは異なって小さな電界領域でも電流が観測されるようになった。この特性は絶縁膜中の電荷トラップを介した伝導機構を表す

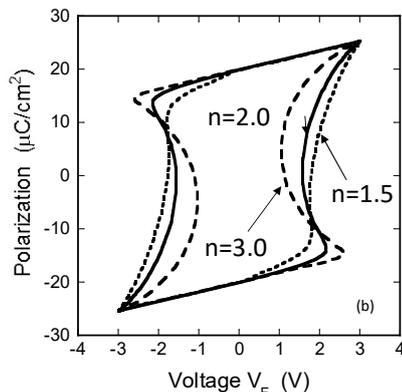


図 1 電流応答より再構成した分極—電圧 (P-V) 特性

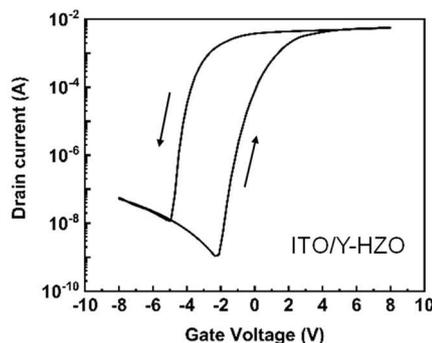


図 2 ITO/Y-HZO 強誘電体ゲート薄膜トランジスタの伝達特性

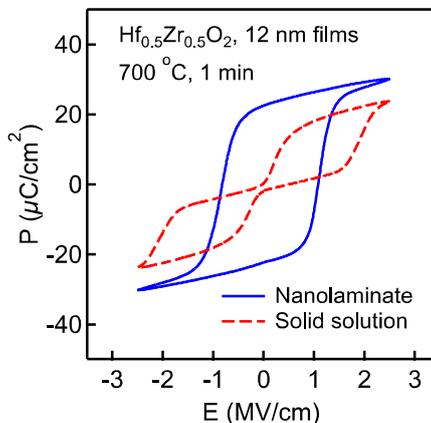


図 3 HZO ナノラミネート膜および混合膜の分極(P)-電界(E)特性。論文 (S. Migita, APEX 2021) に発表した図面を編集。

ールフレンケルプロットによく一致する (図 4)。2 回目以降のデータの傾きから解析したところ、電荷トラップは  $\text{HfO}_2$  系材料の伝導帯から 0.47 eV 程度のエネルギー深さに存在することが分かり、酸素欠損の発生が電流発生の原因であると推察している。 $\text{HfO}_2$  系薄膜を絶縁膜としてデバイス応用する場合と比較すると、強誘電体として利用する際には分極反転を引き起こすために大きな電界を印加する必要がある。この電界は膜の絶縁破壊を引き起こす電界よりは小さいものの、薄膜内部の弱い箇所にダメージを与えて酸素の脱離を促してしまっている可能性がある。今回見出した初回の電界印加後に現れる電流挙動の変化は、強誘電相生成の解釈や負性容量効果デバイスの実現に、重要な示唆をもたらすと我々は考えている。初回の電界印加によって電流挙動に大きな変化が現れるレベルの酸素欠損が生成しているのであれば、その時に  $\text{HfO}_2$  系結晶の構造相転移が起きている可能性がある。 $\text{HfO}_2$  系材料の結晶構造は含有酸素量でも敏感に変化するので、十分にありうる現象である。そうであるならば  $\text{HfO}_2$  系薄膜は、初回の電界を印加した後に初めて強誘電体として機能していることになる。この仮説が正しければ、負性容量効果を利用したトランジスタを実現するためには、最初に強誘電特性を発現させるような操作が必要と考えられる。トランジスタのゲートスタック構造には低誘電率な界面層が存在するために  $\text{HfO}_2$  系薄膜に十分な電界を印加できない状況であるが、上記の仮説に基づいた機能発現技術が今後の鍵となる。

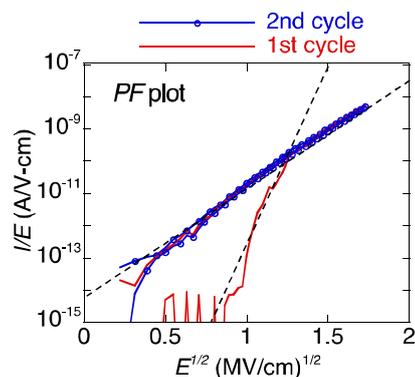


図 4  $\text{Hf}_{0.5}\text{Zr}_{0.5}\text{O}_2$  膜 (厚さ 10 nm) のキャパシタの電流(I)-電界(E)特性のプールフレンケルプロット。論文(Y. Morita, JJAP 2022)に発表した図面より抜粋。

### <WP3>

WP3 では強誘電体と半導体チャネルからなるトランジスタについて、負性容量の効果を解析した。前述のように急峻スロープトランジスタの実現においては、その動作原理、負性容量の発現の起源が不明瞭である。そのため、強誘電体ゲートトランジスタにおいて急峻スロープが実験的に確認されているものの、設計指針は構築されていない。また、 $\text{HfO}_2$  基強誘電体薄膜の問題として、強誘電性スイッチングの抗電界が大きく堅牢性に乏しいことが指摘されている。また、電界サイクルを行うことで強誘電性が向上するウエイクアップ効果や  $\text{HfO}_2$  膜中に存在する内部電界によって生じるインプリント現象等、デバイスの安定性や信頼性に影響を与える問題が顕在化しており、それらの現象の理解と解決が求められている。以上の背景を踏まえて、本研究では、 $\text{HfO}_2$  系強誘電体薄膜を用いた急峻スロープトランジスタやリザーバーコンピューティングなどの Beyond-CMOS デバイスとしての可能性を議論するために必要な基礎物性に関する検討を行った。

強誘電体ゲートトランジスタにおける急峻スロープ動作 (負性容量の発現) の物理的起源は、強誘電体の分極反転によって変化する半導体表面のポテンシャル変化に起因すると考え、強誘電体/半導体界面におけるポテンシャルの時間変化を計算した。その結果を図 5 に示す。強誘電体の分極反転によって半導体の表面ポテンシャルが変化し、蓄積→空乏→反転と変化する過程において、強誘電体の分極反転の直前には強誘電体の分極保持により、半導体からの減分極電界が生じ、印加電圧よりも大きな電圧が強誘電体に印加される。分極反転が進行し、半導体の表面ポテンシャルが減少することで、その減分極電荷が減少する。分極反転が進行する一方で強誘電体に印加される電圧が減少するため、 $\partial D_F / \partial V_F$  が負となり、負性容量状態が発現する。また、分極反転が生じ、半導体の表面状態が蓄積から空乏へと切り替わると、強誘電体に印加されていた電圧が半導体に分配される。その際、強誘電体の分極反転が進行する一方で強誘電体に印加されていた電圧が減少するために、 $\partial D_F / \partial V_F$  が負となり、ここでも負性容量状態が発現する。この様に、強誘電体の分極によって生じる減分極電界と分極スイッチングによって半導体の表面ポテンシャルが変化することによって、強誘電体/半導体接合においては、原理的に急峻スロープが発現することが明らかとなった。

実際の強誘電体/半導体接合に

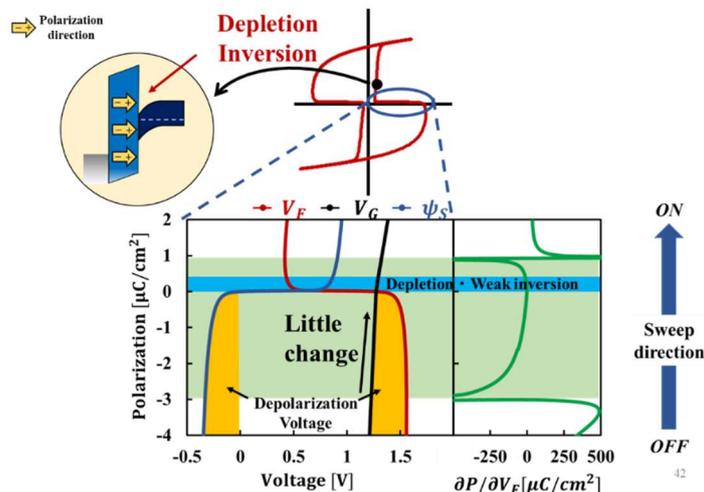


図 5 強誘電体ゲートトランジスタの分極と半導体表面ポテンシャルの計算結果

おいては、界面における低誘電率層の形成、極薄 HfO<sub>2</sub> 薄膜の電界印加によって生じるウエイクアップ効果やインプリント等の影響が重畳するため、その実験的な検証が難しい。従って、HfO<sub>2</sub> 系強誘電体薄膜において他の強誘電体と比べて特徴的な強誘電スイッチング特性として知られている時間依存性を示すインプリント現象やウエイクアップ効果に関して詳細に

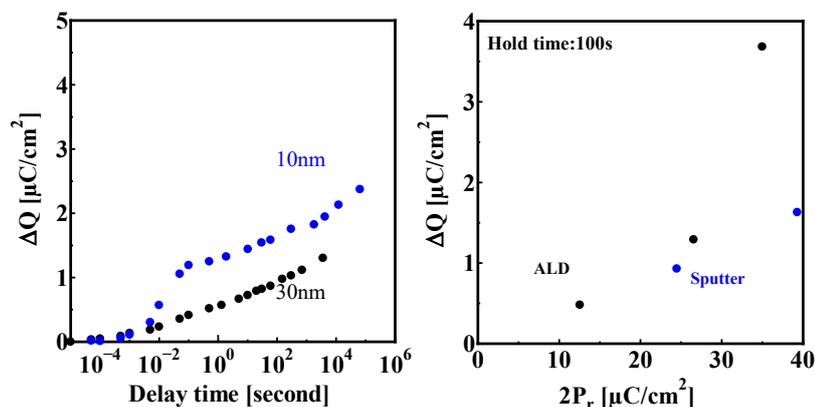


図6 正圧電応を用いて測定したインプリント時の電荷変化量

検討した。ウエイクアップ効果は電界印加サイクルによって酸素欠損などの欠陥が再分布され、ドメインのデピニングやそれに伴う内部バイアスの消失によって生じることが報告されている。しかし、作製手法や電極材料等様々な要因でその機構が変化するため、その評価手法が確立されていない。そこで本研究では、電圧を印加せずに圧電応答を得ることが可能な正圧電応答を用いて時間依存性を示すインプリント、及びウエイクアップ効果を精査した。その過程で、10nm という極薄膜 HZO の  $e_{31,f}$  定数がおよそ  $-0.4 \text{ C/m}^2$  であることを世界で初めて明らかにした。インプリント現象の時間依存性を詳細に評価したところ、図6に示す様に 10nm の HZO 膜においては数秒の間に  $1\mu\text{C/cm}^2$  以上の電荷の移動が生じていることが明らかとなった。また、誘電緩和とそれらの電荷の移動に相関があることが明らかとなり、膜中の欠陥がインプリント現象の主要因となっていることを明らかにした。また、ウエイクアップ過程における残留分極量の増加率と正圧電応答の増加率に大きな違いが生じていることから、正圧電応答による電流を妨げる常誘電相が HZO 膜と電極層の間に存在し、電界サイクルによって界面層が強誘電相へと相転移していることが示唆された。

さらに、分極相互作用という観点から、強誘電体ゲートトランジスタの分極反転挙動を強誘電性ドメインとそれ以外の静電的な効果を区別し、正確に見積もる手法を検討した。ゲート絶縁膜として用いる Hf 系強誘電体極薄膜のドメイン構造を、正圧電応答顕微鏡法(DPRM)による Hf 系強誘電体の分極ドメイン観察に取り組み、1.9 kHz の応力印加周波数、25 nm 程度のプローブ径で、HZO に印加される圧力の面内方向の分布の計算結果と実験結果から、空間分解能 40 nm 程度で測定可能であることが分かった。

#### <まとめ>

本研究では、「負性容量」により急峻なスイッチング特性が得られるとされている強誘電体ゲートトランジスタに関して、強誘電体の分極ダイナミクスに立ち戻ってその動作機構を検討した。RC回路のパルス応答解析、強誘電体と半導体との積層構造での半導体表面ポテンシャルの計算等から、「負性容量」特性は従来から言われているようなランダウの相転移理論による解釈は必ずしも必要ではなく、強誘電体の分極反転に伴って発現する現象であることが強く示唆された。さらに、本研究では HfO<sub>2</sub> 系材料における強誘電直方晶の安定性や酸化制御、ナノラミネート構造による物性制御等の材料的な側面からの新機軸の提案、正圧電応答を用いた新たな測定技術、酸化物チャネルデバイスへの応用など、本研究の枠を超えて将来の当該分野の発展に向けてのいくつかの重要な成果が得られたと考えている。

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 1件 / うちオープンアクセス 3件）

|  |                                 |
|--|---------------------------------|
| 1. 著者名<br>Hara Yuki, Mohit, Murakami Tatsuya, Migita Shinji, Ota Hiroyuki, Morita Yukinori, Tokumitsu Eisuke                                 | 4. 巻<br>60                      |
| 2. 論文標題<br>Impact of reduced pressure crystallization on ferroelectric properties in hafnium-zirconium dioxide films deposited by sputtering | 5. 発行年<br>2021年                 |
| 3. 雑誌名<br>Japanese Journal of Applied Physics  | 6. 最初と最後の頁<br>SFFB05 ~ SFFB05   |
| 掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子)<br>10.35848/1347-4065/ac1250  | 査読の有無<br>有                      |
| オープンアクセス<br>オープンアクセスとしている (また、その予定である)   | 国際共著<br>-                       |
| 1. 著者名<br>Morita Yukinori, Ota Hiroyuki, Migita Shinji   | 4. 巻<br>61                      |
| 2. 論文標題<br>Anomalous change of carrier transport property of ferroelectric Hf0.5Zr0.5O2 thin films in the first poling treatment             | 5. 発行年<br>2022年                 |
| 3. 雑誌名<br>Japanese Journal of Applied Physics  | 6. 最初と最後の頁<br>SC1070 ~ SC1070   |
| 掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子)<br>10.35848/1347-4065/ac48ce  | 査読の有無<br>有                      |
| オープンアクセス<br>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<br>-                       |
| 1. 著者名<br>Takada Kenshi, Takarae Shuya, Shimamoto Kento, Fujimura Norifumi, Yoshimura Takeshi  | 4. 巻<br>7                       |
| 2. 論文標題<br>Time Dependent Imprint in Hf0.5Zr0.5O2 Ferroelectric Thin Films   | 5. 発行年<br>2021年                 |
| 3. 雑誌名<br>Advanced Electronic Materials  | 6. 最初と最後の頁<br>2100151 ~ 2100151 |
| 掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子)<br>10.1002/aelm.202100151   | 査読の有無<br>有                      |
| オープンアクセス<br>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<br>-                       |
| 1. 著者名<br>Takada Kenshi, Murase Mikio, Migita Shinji, Morita Yukinori, Ota Hiroyuki, Fujimura Norifumi, Yoshimura Takeshi                    | 4. 巻<br>119                     |
| 2. 論文標題<br>Investigation of the wake-up process and time-dependent imprint of Hf0.5Zr0.5O2 film through the direct piezoelectric response    | 5. 発行年<br>2021年                 |
| 3. 雑誌名<br>Applied Physics Letters  | 6. 最初と最後の頁<br>032902 ~ 032902   |
| 掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子)<br>10.1063/5.0047104  | 査読の有無<br>有                      |
| オープンアクセス<br>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<br>-                       |

|  |                               |
|--|-------------------------------|
| 1. 著者名<br>Mohit, Haga Ken-ichi, Tokumitsu Eisuke   | 4. 巻<br>59                    |
| 2. 論文標題<br>Electrical properties of yttrium-doped hafnium-zirconium dioxide thin films prepared by solution process for ferroelectric gate insulator TFT application | 5. 発行年<br>2020年               |
| 3. 雑誌名<br>Japanese Journal of Applied Physics  | 6. 最初と最後の頁<br>SMMB02 ~ SMMB02 |
| 掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子)<br>10.35848/1347-4065/ab86de  | 査読の有無<br>有                    |
| オープンアクセス<br>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<br>-                     |

|  |                               |
|--|-------------------------------|
| 1. 著者名<br>Mohit, Murakami Tatsuya, Haga Ken-ichi, Tokumitsu Eisuke   | 4. 巻<br>59                    |
| 2. 論文標題<br>Impact of annealing environment on electrical properties of yttrium-doped hafnium zirconium dioxide thin films prepared by the solution process | 5. 発行年<br>2020年               |
| 3. 雑誌名<br>Japanese Journal of Applied Physics  | 6. 最初と最後の頁<br>SPPB03 ~ SPPB03 |
| 掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子)<br>10.35848/1347-4065/aba50b  | 査読の有無<br>有                    |
| オープンアクセス<br>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<br>-                     |

|   |                               |
|---|-------------------------------|
| 1. 著者名<br>Mohit, Miyasako Takaaki, Tokumitsu Eisuke   | 4. 巻<br>60                    |
| 2. 論文標題<br>Indium oxide and indium-tin-oxide channel ferroelectric gate thin film transistors with yttrium doped hafnium-zirconium dioxide gate insulator prepared by chemical solution process | 5. 発行年<br>2021年               |
| 3. 雑誌名<br>Japanese Journal of Applied Physics   | 6. 最初と最後の頁<br>SBBM02 ~ SBBM02 |
| 掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子)<br>10.35848/1347-4065/abd6da   | 査読の有無<br>有                    |
| オープンアクセス<br>オープンアクセスとしている (また、その予定である)  | 国際共著<br>-                     |

|   |                               |
|---|-------------------------------|
| 1. 著者名<br>Mohit, Migita Shinji, Ota Hiroyuki, Morita Yukinori, Tokumitsu Eisuke   | 4. 巻<br>14                    |
| 2. 論文標題<br>Thermal stability of ferroelectricity in hafnium-zirconium dioxide films deposited by sputtering and chemical solution deposition for oxide-channel ferroelectric-gate transistor applications | 5. 発行年<br>2021年               |
| 3. 雑誌名<br>Applied Physics Express   | 6. 最初と最後の頁<br>041006 ~ 041006 |
| 掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子)<br>10.35848/1882-0786/abebf4   | 査読の有無<br>有                    |
| オープンアクセス<br>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<br>-                     |

|   |                               |
|---|-------------------------------|
| 1. 著者名<br>Sasaki Keisuke, Mohit, Hashiguchi Sho, Tokumitsu Eisuke   | 4. 巻<br>61                    |
| 2. 論文標題<br>Electrical properties of ferroelectric Y-doped Hf-Zr-O thin films prepared by chemical solution deposition | 5. 発行年<br>2022年               |
| 3. 雑誌名<br>Japanese Journal of Applied Physics   | 6. 最初と最後の頁<br>SN1027 ~ SN1027 |
| 掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子)<br>10.35848/1347-4065/ac7fda   | 査読の有無<br>有                    |
| オープンアクセス<br>オープンアクセスとしている(また、その予定である)   | 国際共著<br>-                     |

|   |                                 |
|---|---------------------------------|
| 1. 著者名<br>Mohit, Murakami Tatsuya, Tokumitsu Eisuke   | 4. 巻<br>2022                    |
| 2. 論文標題<br>Fabrication of Ferroelectric Gate Thin Film Transistors with a Lanthanum Doped H <sub>2</sub> O Gate Insulator and Indium Tin Oxide Channel via a Solution Process | 5. 発行年<br>2022年                 |
| 3. 雑誌名<br>physica status solidi (RRL) Rapid Research Letters  | 6. 最初と最後の頁<br>2100581 ~ 2100581 |
| 掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子)<br>10.1002/pssr.202100581  | 査読の有無<br>有                      |
| オープンアクセス<br>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<br>-                       |

|  |                               |
|--|-------------------------------|
| 1. 著者名<br>Mohit, Wen Yuli, Hara Yuki, Migita Shinji, Ota Hiroyuki, Morita Yukinori, Ohdaira Keisuke, Tokumitsu Eisuke                    | 4. 巻<br>61                    |
| 2. 論文標題<br>Enhancement of ferroelectricity in sputtered H <sub>2</sub> O thin films by catalytically generated atomic hydrogen treatment | 5. 発行年<br>2022年               |
| 3. 雑誌名<br>Japanese Journal of Applied Physics  | 6. 最初と最後の頁<br>SH1004 ~ SH1004 |
| 掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子)<br>10.35848/1347-4065/ac5a95  | 査読の有無<br>有                    |
| オープンアクセス<br>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<br>-                     |

〔学会発表〕 計44件(うち招待講演 9件/うち国際学会 15件)

|  |
|--|
| 1. 発表者名<br>Mohit and Eisuke Tokumitsu  |
| 2. 発表標題<br>Preparation of ferroelectric lanthanum doped hafnium-zirconium oxide thin films by solution process                   |
| 3. 学会等名<br>The 8th International Symposium on Organic and Inorganic Materials and Related Nanotechnologies (EM-NANO 2021) (国際学会) |
| 4. 発表年<br>2021年  |

|  |
|--|
| 1. 発表者名<br>Mohit, Shinji Migita, Hiroyuki Ota, Yukinori Morita and Eisuke Tokumitsu  |
| 2. 発表標題<br>Comparison of electrical properties of indium-tin-oxide channel ferroelectric-gate thin film transistors using solution processed and sputtered Hf-Zr-O |
| 3. 学会等名<br>2021 International Conference on Solid State Devices and Materials (国際学会)   |
| 4. 発表年<br>2021年  |

|   |
|---|
| 1. 発表者名<br>Mohit, and Eisuke Tokumitsu  |
| 2. 発表標題<br>Ferroelectric gate thin film transistor with La-HZO gate insulator and indium-tin-oxide channel prepared by solution process |
| 3. 学会等名<br>European Materials Research Society (国際学会)   |
| 4. 発表年<br>2021年   |

|   |
|---|
| 1. 発表者名<br>Mohit, Yuli Wen, Yuki Hara, Shinji Migita, Hiroyuki Ota, Yukinori Morita, Keisuke Ohdaira and Eisuke Tokumitsu                       |
| 2. 発表標題<br>Enhancement of ferroelectricity in sputtered hafnium-zirconium oxide thin films by catalytically generated atomic hydrogen treatment |
| 3. 学会等名<br>2021 International Workshop on Dielectric Thin Films for Future Electron Devices: Science and Technology (国際学会)                      |
| 4. 発表年<br>2021年   |

|  |
|--|
| 1. 発表者名<br>Keisuke Sasaki, Mohit, and Eisuke Tokumitsu   |
| 2. 発表標題<br>Yttrium Doping Concentration Dependence on Ferroelectric Properties of Hafnium-Zirconium Oxide Prepared by Chemical Solution Deposition |
| 3. 学会等名<br>Materials Research Meeting 2021 (国際学会)  |
| 4. 発表年<br>2021年  |

|   |
|---|
| 1. 発表者名<br>佐々木啓介、モヒート、徳光永輔                            |
| 2. 発表標題<br>化学溶液プロセスによるYドーピングHfO <sub>2</sub> 薄膜の作製と評価 |
| 3. 学会等名<br>第82回応用物理学会秋季学術講演会                          |
| 4. 発表年<br>2021年                                       |

|  |
|--|
| 1. 発表者名<br>齋藤 瑞、Mohit、徳光永輔                               |
| 2. 発表標題<br>溶液プロセスによるCeO <sub>x</sub> / Hf-Zr-O積層構造の形成と評価 |
| 3. 学会等名<br>第82回応用物理学会秋季学術講演会                             |
| 4. 発表年<br>2021年  |

|   |
|---|
| 1. 発表者名<br>原 佑樹, モヒート, 右田 真司, 太田 裕之, 森田 裕史, 徳光 永輔 |
| 2. 発表標題<br>スパッタHf-Zr-O膜における強誘電性の安定性向上             |
| 3. 学会等名<br>第38回強誘電体会議                             |
| 4. 発表年<br>2021年                                   |

|   |
|---|
| 1. 発表者名<br>森田行則、太田裕之、右田真司   |
| 2. 発表標題<br>ポーリング処理前後における強誘電性Hf <sub>0.5</sub> Zr <sub>0.5</sub> O <sub>2</sub> 薄膜の不可逆的な伝導特性変化 |
| 3. 学会等名<br>第27回 電子デバイス界面テクノロジー研究会 (EDIT27)  |
| 4. 発表年<br>2022年   |

|  |
|--|
| 1. 発表者名<br>Yukinori Morita, Hiroyuki Ota, Shinji Migita  |
| 2. 発表標題<br>Carrier Transport properties of Ferroelectric Hf0.5Zr0.5O2 Thin Films in Poling Treatment |
| 3. 学会等名<br>2021 International Conference on Solid State Devices and Materials (国際学会)                 |
| 4. 発表年<br>2021年  |

|  |
|--|
| 1. 発表者名<br>Norifumi FUJIMURA   |
| 2. 発表標題<br>Why do the HfO2-based ferroelectric thin films show unique properties? - Negative Capacitance, Wake-up Process and Time-dependent Imprint - |
| 3. 学会等名<br>Materials Research Meeting 2021 (MRM2021) (招待講演) (国際学会)   |
| 4. 発表年<br>2021年  |

|  |
|--|
| 1. 発表者名<br>秋原 拓永, 森田 行則, 太田 裕之, 右田 真司, 藤村 紀文, 吉村 武 |
| 2. 発表標題<br>正圧電応答顕微鏡法によるHfO2薄膜の分極ドメイン構造の観察          |
| 3. 学会等名<br>第69回応用物理学会春季学術講演会                       |
| 4. 発表年<br>2022年                                    |

|  |
|--|
| 1. 発表者名<br>Mohit, Takaaki Miyasako and Eisuke Tokumitsu  |
| 2. 発表標題<br>Fabrication of Indium-Tin-Oxide Channel Ferroelectric-Gate Thin Film Transistors using Yttrium Doped Hafnium-Zirconium Dioxide by Chemical Solution Process |
| 3. 学会等名<br>2020 International Conference on Solid State Devices and Materials (国際学会)   |
| 4. 発表年<br>2020年  |

|  |
|--|
| 1. 発表者名<br>Mohit, S. Migita, H. Ota, Y. Morita, and E. Tokumitsu   |
| 2. 発表標題<br>Robustness of Ferroelectricity in Hafnium- Zirconium Dioxide Films Deposited By Sputtering and Chemical Solution Deposition for Ferroelectric Transistor Applications |
| 3. 学会等名<br>PRIME (Pacific Rim Meeting on Electrochemical & Solid State Science) 2020 ( 国際学会 )  |
| 4. 発表年<br>2020年  |

|   |
|---|
| 1. 発表者名<br>Mohit , Ken-Ichi Haga , Eisuke Tokumitsu   |
| 2. 発表標題<br>Effect of Annealing Environment on Ferroelectric Properties of Hf-Zr-O (HZO) Thin Films Prepared by Solution Process |
| 3. 学会等名<br>第37回強誘電体会議   |
| 4. 発表年<br>2020年   |

|   |
|---|
| 1. 発表者名<br>Mohit , Eisuke Tokumitsu   |
| 2. 発表標題<br>Ferroelectric Properties of Hafnium-Zirconium-Dioxide Prepared by Chemical Solution Process for MFM and MFS Structures |
| 3. 学会等名<br>第81回応用物理学会秋季学術講演会  |
| 4. 発表年<br>2020年   |

|   |
|---|
| 1. 発表者名<br>Mohit, Shinji Migita, Hiroyuki Ota, Yukinori Morita, Eisuke Tokumitsu  |
| 2. 発表標題<br>Fabrication of ferroelectric gate thin film transistors using CSD Y-HZO and sputtered HZO with sputtered ITO channel |
| 3. 学会等名<br>第68回応用物理学会春季学術講演会  |
| 4. 発表年<br>2021年   |

|   |
|---|
| 1. 発表者名<br>森田行則、太田裕之、右田真司                     |
| 2. 発表標題<br>強誘電体薄膜Hf0.5Zr0.5O2およびHfO2の強誘電特性の比較 |
| 3. 学会等名<br>2020年日本表面真空学会 学術講演会                |
| 4. 発表年<br>2020年                               |

|   |
|---|
| 1. 発表者名<br>Shuya Takarae, Kenshi Takada, Yuki Saho, Takeshi Yoshimura, Norifumi Fujimura  |
| 2. 発表標題<br>Formation Process of Metastable Phases of Al-Doped HfO2 Films Directly on Si by Atomic Layer Deposition  |
| 3. 学会等名<br>Joint Conference of the IEEE International Frequency Control Symposium & IEEE International Symposium on Applications of Ferroelectrics (国際学会) |
| 4. 発表年<br>2020年   |

|   |
|---|
| 1. 発表者名<br>佐保 勇樹, 宝栄 周弥, 高田 賢志, 吉村 武, 藤村 紀文 |
| 2. 発表標題<br>Si直上Y:HfO2エピタキシャル薄膜の界面誘電特性       |
| 3. 学会等名<br>第81回応用物理学会秋季学術講演会                |
| 4. 発表年<br>2020年                             |

|  |
|--|
| 1. 発表者名<br>宝栄 周弥, 桐谷 乃輔, 吉村 武, 芦田 淳, 藤村 紀文   |
| 2. 発表標題<br>ALD法を用いて作成したSi直上Al:HfO2準安定相の結晶化過程 |
| 3. 学会等名<br>第81回応用物理学会秋季学術講演会                 |
| 4. 発表年<br>2020年                              |

|  |
|--|
| 1. 発表者名<br>K. Takada, S. Takarae, T. Yoshimura, and N. Fujimura  |
| 2. 発表標題<br>Formation of the metastable phase of HfxZr1-xO2 ferroelectric films deposited by atomic layer deposition method |
| 3. 学会等名<br>第39回電子材料シンポジウム  |
| 4. 発表年<br>2020年  |

|  |
|--|
| 1. 発表者名<br>徳光永輔                                |
| 2. 発表標題<br>酸化物半導体デバイスへの期待—強誘電体ゲートトランジスタを中心として— |
| 3. 学会等名<br>第70回応用物理学会春季学術講演会（招待講演）             |
| 4. 発表年<br>2023年                                |

|  |
|--|
| 1. 発表者名<br>E. Tokumitsu, Y. Kubota, Mohit, K. Sasaki   |
| 2. 発表標題<br>Ferroelectric gate thin film transistors with Y-doped Hf-Zr-O gate insulator and In-Sn-O channel      |
| 3. 学会等名<br>14th Japan-China Symposium on Ferroelectric Materials and Their Applications (JCFMA-14) (招待講演) (国際学会) |
| 4. 発表年<br>2022年  |

|   |
|---|
| 1. 発表者名<br>久保田剛郎、徳光永輔                                     |
| 2. 発表標題<br>溶液プロセスによる In-Sn-O (ITO) 薄膜の形成と強誘電体薄膜トランジスタへの応用 |
| 3. 学会等名<br>第19回薄膜材料デバイス研究会                                |
| 4. 発表年<br>2022年   |

|   |
|---|
| 1. 発表者名<br>橋口 渉、徳光永輔                        |
| 2. 発表標題<br>化学溶液堆積法によるHf-Zr-O膜へのドーピングと強誘電性評価 |
| 3. 学会等名<br>第19回薄膜材料デバイス研究会                  |
| 4. 発表年<br>2022年                             |

|   |
|---|
| 1. 発表者名<br>Eisuke Tokumitsu   |
| 2. 発表標題<br>ITO Channel Thin Film Transistor using Solution-Derived Ferroelectric Gate Insulator |
| 3. 学会等名<br>13th Korea-Japan Conference on Ferroelectrics (招待講演) (国際学会)                          |
| 4. 発表年<br>2022年   |

|   |
|---|
| 1. 発表者名<br>齋藤 瑞、モヒート、東嶺孝一、徳光永輔  |
| 2. 発表標題<br>溶液プロセスによる薄膜CeO <sub>x</sub> /(Hf,Zr)O <sub>2</sub> /CeO <sub>x</sub> 積層構造の形成 |
| 3. 学会等名<br>日本ゾルゲル学会第20回討論会  |
| 4. 発表年<br>2022年   |

|  |
|--|
| 1. 発表者名<br>徳光永輔、モヒート、文 昱力、原 佑樹、右田真司、太田裕之、森田行則、大平圭介 |
| 2. 発表標題<br>原子状水素処理を用いたスパッタHf-Zr-O膜の強誘電特性改善         |
| 3. 学会等名<br>第19回Cat-CVD研究会 (招待講演)                   |
| 4. 発表年<br>2022年                                    |

|   |
|---|
| 1. 発表者名<br>佐々木啓介、モヒート、徳光永輔                |
| 2. 発表標題<br>YドーブHf-Zr-O薄膜の化学溶液堆積における仮焼成の効果 |
| 3. 学会等名<br>第39回強誘電体会議                     |
| 4. 発表年<br>2022年                           |

|   |
|---|
| 1. 発表者名<br>右田真司、太田裕之、浅沼周太郎、森田行則、鳥海 明                                      |
| 2. 発表標題<br>HfO <sub>2</sub> -ZrO <sub>2</sub> Nanolaminate構造における強誘電相の生成促進 |
| 3. 学会等名<br>第70回応用物理学会春季学術講演会（招待講演）  |
| 4. 発表年<br>2023年   |

|   |
|---|
| 1. 発表者名<br>森田行則、女屋 崇、浅沼周太郎、太田裕之、右田真司  |
| 2. 発表標題<br>製膜後の最初の電界印加によって誘起されるHf <sub>0.5</sub> Zr <sub>0.5</sub> O <sub>2</sub> 薄膜の伝導特性の変化および強誘電化 |
| 3. 学会等名<br>第70回応用物理学会春季学術講演会  |
| 4. 発表年<br>2023年   |

|   |
|---|
| 1. 発表者名<br>Shinji Migita  |
| 2. 発表標題<br>Perspective of ferroelectric-HfO <sub>2</sub> materials for electron device applications |
| 3. 学会等名<br>2022 Silicon Nanoelectronics Workshop（招待講演）（国際学会）  |
| 4. 発表年<br>2022年   |

|   |
|---|
| 1. 発表者名<br>右田真司、森田行則、浅沼周太郎、太田裕之、齊藤雄太                                      |
| 2. 発表標題<br>HfO <sub>2</sub> -ZrO <sub>2</sub> Laminate構造が強誘電性をアシストするメカニズム |
| 3. 学会等名<br>第83回応用物理学会秋季学術講演会  |
| 4. 発表年<br>2022年   |

|   |
|---|
| 1. 発表者名<br>Shinji Migita, Shurato Asanuma, Yuta Saito, Yukinori Morita, and Hiroyuki Ota  |
| 2. 発表標題<br>Transition of Ferroelectric and Antiferroelectric Properties in Atomic-Scale-Engineered HfO <sub>2</sub> and ZrO <sub>2</sub> Superlattice Films |
| 3. 学会等名<br>International Microprocesses and Nanotechnology Conference (国際学会)  |
| 4. 発表年<br>2022年   |

|                                       |
|---------------------------------------|
| 1. 発表者名<br>吉村 武、芳賀大樹、藤村紀文、神田健介、神野伊策   |
| 2. 発表標題<br>圧電MEMS振動子によるリザーバーコンピューティング |
| 3. 学会等名<br>第70回応用物理学会春季学術講演会          |
| 4. 発表年<br>2023年                       |

|   |
|---|
| 1. 発表者名<br>萩原拓永、トープラサートボン カシディット、高木信一、藤村紀文、吉村 武 |
| 2. 発表標題<br>正圧電応答顕微鏡法を用いた電極下分極ドメイン観察における空間分解能    |
| 3. 学会等名<br>第70回応用物理学会春季学術講演会                    |
| 4. 発表年<br>2023年                                 |

|                                      |
|--------------------------------------|
| 1. 発表者名<br>庄野 武洋, 芳賀 大樹, 藤村 紀文, 吉村 武 |
| 2. 発表標題<br>複数圧電振動子でのリザーブコンピューティング    |
| 3. 学会等名<br>第70回応用物理学会学術講演会           |
| 4. 発表年<br>2023年                      |

|   |
|---|
| 1. 発表者名<br>内藤 圭吾, 山口 晃一, 吉村 武, 藤村 紀文          |
| 2. 発表標題<br>ALD法によりGa2O3基板上に作製したHfZrO2薄膜の結晶化過程 |
| 3. 学会等名<br>第70回応用物理学会学術講演会                    |
| 4. 発表年<br>2023年                               |

|   |
|---|
| 1. 発表者名<br>市川 龍斗, 宝栄 周弥, 内藤 圭吾, 吉村 武, 藤村 紀文 |
| 2. 発表標題<br>基板近傍に成長空間を制限して作製したHfO2薄膜のALD成長機構 |
| 3. 学会等名<br>第70回応用物理学会学術講演会                  |
| 4. 発表年<br>2023年                             |

|  |
|--|
| 1. 発表者名<br>萩原 拓永, Kasidit Toprasertpong, 高木信一, 藤村 紀文, 吉村 武 |
| 2. 発表標題<br>正圧電応答顕微鏡法によるHfO2薄膜の分極ドメイン構造の観察                  |
| 3. 学会等名<br>第83回応用物理学会秋季学術講演会                               |
| 4. 発表年<br>2022年  |

|   |
|---|
| 1. 発表者名<br>内藤 圭吾, 山口 晃一, 吉村 武, 藤村 紀文          |
| 2. 発表標題<br>ALD法によりGa2O3基板上に作製したHfZrO2薄膜の結晶化過程 |
| 3. 学会等名<br>第83回応用物理学会秋季学術講演会                  |
| 4. 発表年<br>2022年                               |

|  |
|--|
| 1. 発表者名<br>藤村 紀文                           |
| 2. 発表標題<br>機能性セラミックス薄膜の新規なプロセッシングと物性制御     |
| 3. 学会等名<br>フルラス・岡崎記念会 2022年度定期総会・講演会（招待講演） |
| 4. 発表年<br>2022年                            |

|   |
|---|
| 1. 発表者名<br>N. Fujimura  |
| 2. 発表標題<br>Recent Progress of Hafnium Oxide based Ferroelectric Thin Films for Microelectronics   |
| 3. 学会等名<br>8th International Symposium on Transparent Conductive Materials & 12th International Symposium on Transparent Oxide and Related Materials for Electronics and Optics（招待講演）（国際学会） |
| 4. 発表年<br>2022年   |

〔図書〕 計0件

〔産業財産権〕

〔その他〕

-

6. 研究組織

|           | 氏名<br>(ローマ字氏名)<br>(研究者番号)                          | 所属研究機関・部局・職<br>(機関番号)                  | 備考 |
|-----------|--|--|----|
| 研究<br>分担者 | 藤村 紀文<br><br>(Fujimura Norifumi)<br><br>(50199361) | 大阪公立大学・大学院工学研究科 ・教授<br><br><br>(24405) |    |

6. 研究組織（つづき）

|       | 氏名<br>(ローマ字氏名)<br>(研究者番号)                        | 所属研究機関・部局・職<br>(機関番号)                                      | 備考 |
|-------|--|--|----|
| 研究分担者 | 森田 行則<br><br>(Yukinori Morita)<br><br>(60358190) | 国立研究開発法人産業技術総合研究所・エレクトロニクス・製造領域・上級主任研究員<br><br><br>(82626) |    |
| 研究分担者 | 太田 裕之<br><br>(Hiroyuki Ohta)<br><br>(70356640)   | 国立研究開発法人産業技術総合研究所・エレクトロニクス・製造領域・研究グループ長<br><br><br>(82626) |    |
| 研究分担者 | 右田 真司<br><br>(Shinji Migita)<br><br>(00358079)   | 国立研究開発法人産業技術総合研究所・エレクトロニクス・製造領域・総括研究主幹<br><br><br>(82626)  |    |

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 |
|---------|---------|
|         |         |