

研究助成報告書（中間・終了）

No.1

整理番号	2023-J-016	報告者氏名	小林 篤
------	------------	-------	------

研究課題名 強誘電性窒化物半導体の創成

<代表研究者> 機関名：東京理科大学 職名：准教授 氏名：小林篤

<共同研究者> 機関名： 機関名： 氏名：
機関名： 機関名： 氏名：
機関名： 機関名： 氏名：
機関名： 機関名： 氏名：

<研究内容・成果等の要約>

現代社会におけるデータ流通量の爆発的増加に伴い、情報処理デバイスの消費電力削減は喫緊の課題である。従来のシリコン半導体の微細化限界を突破する技術として、不揮発性メモリ機能を持つ強誘電体ゲート・トランジスタ(FeFET)が注目されている。本研究では、高耐圧・高速動作に優れた窒化ガリウム(GaN)半導体と、それに対して高い格子整合性と強誘電性を併せ持つ新規材料、窒化スカンジウムアルミニウム(ScAlN)に着目した。特に、ScAlNの結晶成長において課題とされていた高Sc組成域での相分離問題を解決し、高品質な単結晶薄膜を作製するとともに、その強誘電性を実証することを目的とした。

研究期間を通じて、超高真空対応スパッタ装置を用いた独自の低温エピタキシャル成長プロセスを確立した。従来の高温成長法では困難であった高Sc組成領域においても、成長温度を600°C以下に制御し、かつスパッタ粒子の高い運動エネルギーを活用することで、熱力学的な相分離を抑制することに成功した。その結果、GaNテンプレート上に原子レベルで平坦かつ均質なウルツ鉱型ScAlN薄膜の合成を実現した。詳細な構造解析の結果、ScAlNのc軸格子定数が組成比に対して特異な非線形変化を示すことを発見し、これが基板からの圧縮歪みによるコヒーレント成長効果と、組成依存的な弾性定数の変化が複合的に作用した結果であることを示した。

さらに、デバイス応用の最大の障壁であったリーク電流の問題に対し、膜厚の最適化および成膜時の窒素流量の増加による欠陥低減策を講じた。これによりトンネル電流を効果的に抑制し、ScAlN/GaNヘテロ構造において明確な分極・電場ヒステリシス曲線を観測することに成功した。本成果は、メモリ機能と演算機能を一体化した次世代インテリジェント・パワー・デバイスの実現に道を開くものであり、将来の低消費電力AIチップや高効率電力変換モジュールへの応用が強く期待される。

<研究発表（口頭、ポスター、誌上別）>

学術論文

1. S. Fukuda, T. Kawahara, K. Makiyama, K. Nakata, A. Kobayashi, "Structural evolution in sputter-epitaxial ScAlN films on GaN/SiC substrates," Japanese Journal of Applied Physics 64, 090901 (2025).
2. T. Okuda, S. Ota, T. Kawahara, K. Makiyama, K. Nakata, T. Maeda, A. Kobayashi, "Sputter epitaxy of ScAlN films on GaN high electron mobility transistor structures," Applied Physics Letters 126, 052105 (2025).
3. A. Kobayashi, T. Maeda, T. Akiyama, T. Kawamura, Y. Honda, "Sputter Epitaxy of Transition Metal Nitrides: Advances in Superconductors, Semiconductors, and Ferroelectrics," Physica Status Solidi A 222, 2400896 (2025).
4. T. Okuda, S. Ota, K. Kubota, Y. Wakamoto, S. Hashimoto, T. Seki, S. Toyama, N. Shibata, T. Kawahara, K. Makiyama, K. Nakata, K. Ikeda, T. Maeda, A. Kobayashi, "Enhanced transport properties in GaN heterostructures with sputter-epitaxy-grown ScAlN barriers via thermal annealing," Applied Physics Letters 127, 182103 (2025).
5. S. Ota, T. Okuda, K. Kubota, Y. Wakamoto, T. Maeda, T. Kawahara, K. Makiyama, K. Nakata, A. Kobayashi, "Effect of growth temperature on the structural and electrical properties of sputter-epitaxial ScAlN on AlGaN/AlN/GaN heterostructures," APL Materials 13, 081112 (2025).
6. A. Kobayashi, Y. Honda, T. Maeda, T. Okuda, K. Ueno, H. Fujioka, "Structural characterization of epitaxial ScAlN films grown on GaN by low-temperature sputtering," Applied Physics Express 17, 011002 (2024).

口頭発表

1. Atsushi Kobayashi, Yoshio Honda, Takuya Maeda, Kohei Ueno, Hiroshi Fujioka, "Structural Properties of Epitaxial ScAlN Films Grown by Sputtering: Experimental and Machine Learning Approaches," 14th International Conference on Nitride Semiconductors (ICNS-14), ヒルトン福岡シーホーク (2023年11月16日).
2. 小林 篤, "窒化物半導体・超伝導体・強誘電体のエピタキシャル融合," 第4回半導体ナノフォトニクス研究会, 上智大学 (2023年11月22日).
3. Atsushi Kobayashi, Takuya Maeda, Yoshio Honda, "Epitaxial Growth of Transition Metal Nitrides on Nitride Semiconductors," LEDIA 2024, パシフィコ横浜 (2024年4月25日).
4. Atsushi Kobayashi, Takuya Maeda, Toru Akiyama, Takahiro Kawamura, Yoshio Honda, "Sputter Epitaxy of Transition Metal Nitrides on Nitride Semiconductors," E-MRS 2024 Fall Meeting, Warsaw University of Technology (2024年9月16日).
5. 奥田 朋也, 太田 隼輔, 河原 孝彦, 牧山 剛三, 中田 健, 前田 拓也, 小林 篤, "エピタキシャルScAlN/AlGaN/GaNへのテロ構造の作製," 第85回応用物理学会秋季学術講演会, 朱鷺メッセ (2024年9月16日).
6. 太田 隼輔, 奥田 朋也, 久保田 航瑛, 前田 拓也, 河原 孝彦, 牧山 剛三, 中田 健, 小林 篤, "AlGaN/GaN上へのScAlN薄膜の低温エピタキシャル成長," 第72回春季応用物理学会学術講演会, 東京理科大学 野田キャンパス (2025年3月17日).
7. 奥田 朋也, 太田 隼輔, 久保田 航瑛, 前田 拓也, 河原 孝彦, 牧山 剛三, 中田 健, 小林 篤, "アニール処理を施したScAlN/AlGaN/GaNへのテロ構造の特性," 第72回春季応用物理学会学術講演会, 東京理科大学 野田キャンパス (2025年3月17日).
8. Atsushi Kobayashi, Tomoya Okuda, Shunsuke Ota, Takahiko Kawahara, Kozo Makiyama, Ken Nakata, Kouei Kubota, Yusuke Wakamoto, Takuya Maeda, "Sputter Epitaxy of ScAlN Films on MOCVD-Grown GaN HEMT Structures," 15th International Conference on Nitride Semiconductors (ICNS-15), Malmo, Sweden (2025年7月11日).
9. 佐藤 早和紀, 若本 裕介, 前田 拓也, 舟窪 浩, 上野 耕平, 藤岡 洋, 池田 和久, 小林 篤, "スパッタ法でn型GaN上にエピタキシャル成長させたScAlNの強誘電性," 第86回秋季応用物理学会学術講演会, 名城大学 天白キャンパス (2025年9月9日).
10. 奥田 朋也, 前田 拓也, 河原 孝彦, 牧山 剛三, 中田 健, 池田 和久, 小林 篤, "ScAlN/AlGaN/AlN/GaNへのテロ構造の電気特性へのScAlN成長温度の影響," 第86回秋季応用物理学会学術講演会, 名城大学 天白キャンパス (2025年9月9日).

ポスター発表

1. 奥田 朋也, 太田 隼輔, 河原 孝彦, 牧山 剛三, 中田 健, 前田 拓也, 小林 篤, "AlGaN/GaN HEMT構造上のScAlN薄膜エピタキシャル成長," 第16回ナノ構造・エピタキシャル成長講演会, 高知県立県民文化ホール (2024年5月31日).
2. 池田 和久, 上向井 正裕, 谷川 智之, 片山 竜二, 小林 篤, "スパッタ法によるN極性GaN上へのScAlN薄膜のエピタキシャル成長," 第17回ナノ構造エピタキシャル成長講演会, 利尻富士町・総合交流促進施設りふら (2025年7月18日).

<研究の目的、経過、結果、考察（5000字程度、中間報告は2000字程度）>

1. 研究の背景と目的

現代社会は、AI技術やIoTの爆発的な普及により、データ流通量が指数関数的に増大している。これに伴い、データセンター やエッジデバイスにおける情報処理に伴う消費電力の削減は、カーボンニュートラル実現のための最重要課題の一つとなっている。

長年、情報処理の主役を担ってきたシリコン(Si)集積回路は、ムーアの法則に従う微細化によって高性能化と低消費電力化を両立してきた。しかし、トランジスタの加工寸法が原子レベルに近づくにつれ、短チャネル効果によるリーク電流の増大や、配線抵抗による遅延といった物理的限界が顕在化している。特に、電源電圧の低減は動作速度の低下を招くため、従来のMOSFET(金属-酸化膜-半導体電界効果トランジスタ)の構造では、これ以上のエネルギー効率の向上は極めて困難な状況にある。いわゆるボルツマンの限界と呼ばれる、サブスレッシュホールド係数(SS値)の下限(室温で約60mV/dec)を打破する新しい動作原理のデバイスが求められている。

この閉塞感を打破するゲームチェンジャーとして期待されているのが、強誘電体(Ferroelectrics)をゲート絶縁膜に用いた「強誘電性電界効果トランジスタ(FeFET)」や、負性容量効果を利用した「負性容量トランジスタ(NCFET)」である。強誘電体が持つ自発分極の履歴特性(ヒステリシス)を利用すれば、電源を切っても情報を保持できる不揮発性メモリ機能を実現できるだけでなく、分極反転に伴う急峻なスイッチング特性により、SS値を理論限界以下に低減し、超低電圧駆動が可能となる。

一方で、パワー半導体や高周波デバイスの分野では、シリコンを凌駕する材料として、窒化ガリウム(GaN)などの窒化物ワイドギャップ半導体の実用化が進んでいる。GaNは高い絶縁破壊電界と高い電子移動度を併せ持ち、高耐圧・高速動作に適している。もし、このGaNプラットフォーム上に強誘電体機能を統合できれば、パワー制御とロジック演算、さらにはメモリ機能を一体化した次世代の多機能インテリジェント・パワーデバイスが実現する。

窒化物半導体と整合性の良い強誘電体材料として、近年急速に注目を集めているのがScAlNである。2009年に高い圧電性が報告され、2019年には窒化物系材料として初めて明確な強誘電性が実証された。ScAlNは、従来のAlN(窒化アルミニウム)のAlサイトの一部をSc(スカンジウム)で置換した混晶であり、ウルツ鉱型構造を維持しつつ、高い強誘電性を発現する。

しかし、ScAlNは比較的新しい材料であり、その結晶成長技術には未解明な点が多い。特に、高い強誘電性を得るためににはSc濃度を高める必要があるが、Sc濃度が増加すると結晶構造が不安定になり、非強誘電相である岩塩型構造への相分離が生じやすくなるという課題がある。また、GaN基板上へのエピタキシャル成長においては、格子不整合による欠陥生成や、界面反応による特性劣化が懸念されている。

本研究では、量産性に優れるスパッタリング法を用いた独自の低温エピタキシャル成長技術を開発し、以下の3点の達成を目的とした。

1. 高Sc濃度領域でも相分離を抑制し、GaN基板上に高品質な単結晶ScAlN薄膜を形成する技術を確立する。
2. 結晶構造(格子定数、歪み)と成長パラメータ(温度、組成)の相関を、実験と理論の両面から解明する。
3. ScAlN/GaNヘテロ構造において、明確な強誘電性ヒステリシス動作を実証し、その発現条件を特定する。

2. 実験方法

本研究では、スパッタ法によるScAlNのエピタキシャル成長を行った。スパッタ法は、ターゲット材料にイオンを衝突させ、弾き飛ばされた粒子(スパッタ粒子)を基板に堆積させる物理気相成長(PVD)法の一種である。この手法を選択した最大の理由は、スパッタ粒子が高い運動エネルギーを

持つことにある。このエネルギーが基板表面での原子のマイグレーション（表面拡散）を促進するため、比較的低い基板温度でも結晶化が可能となり、熱平衡的に不安定な高 Sc 濃度組成においても、相分離（スピノーダル分解）を速度論的に抑制できると考えたからである。

実験には、超高真空対応の多元スパッタ装置を使用した。チャンバー内には金属 Sc ターゲットと金属 Al ターゲットを独立したカソードに設置し、それぞれの RF 電源への投入電力を精密に制御することで、任意の組成比 ($\text{Sc}/(\text{Sc}+\text{Al})$) を実現した。到達真空度は 10^{-7} Pa 台を維持し、残留不純物の混入を極限まで低減した。基板には、サファイア基板上に MOCVD 法であらかじめ成膜された n 型 GaN テンプレート（厚さ数 μm ）を用いた。成膜前の基板表面は、有機洗浄および酸洗浄により清浄化した。スパッタガスには高純度（6N 以上）のアルゴン（Ar）と窒素（N₂）の混合ガスを用いた。Ar はスパッタリングの主媒体として、N₂は反応性ガスとして機能する。特に、窒素分圧（流量）は、膜中の窒素空孔の生成や結晶品質に大きく影響するため、重要な制御パラメータとした。基板温度は、250～700°C の範囲で変化させ、成長温度が結晶品質と相安定性に与える影響を調査した。

作製した薄膜に対して、構造、形態、組成、および電気的特性の観点から多角的な評価を実施した。まず結晶構造解析においては、高分解能 X 線回折（HR-XRD）装置を用い、 $2\theta - \omega$ スキャンによる相同定およびロッキングカーブ（XRC）測定による配向性の評価を行った。さらに、逆格子マッピング（RSM）測定を行うことで、a 軸および c 軸の格子定数を独立して算出し、コヒーレント成長か格子緩和かといった膜の歪み状態を詳細に解析した。表面形態については、反射高速電子線回折（RHEED）により成長中の表面結晶性をその場観察（in-situ）するとともに、原子間力顕微鏡（AFM）を用いて表面ラフネス（RMS）やモフォロジーを観察した。また、膜中の Sc および Al の組成比は、エネルギー分散型 X 線分光法（EDX）を用いて定量した。最後に電気的特性評価については、ScAlN 膜上に白金（Pt）または金（Au）の上部電極を蒸着し、下地の n-GaN を共通電極とする MIM キャパシタ構造を作製した上で実施した。具体的には、強誘電体テスタを用いて分極・電場（P-E）特性を測定し、あわせて容量・電圧（C-V）測定を行うことで、誘電率やキャリア応答を評価した。

3. 結果および考察

研究初期段階において、700°C 以上の高温で成膜を試みたところ、XRD スペクトルにおいてピークの分裂やブロード化が観測された。また、AFM 像には深い溝やクラックが確認された。これは、高温環境下において原子拡散が活発になりすぎた結果、ScAlN 混晶が熱力学的に安定な ScN リッチ相と AlN リッチ相へと分離しようとするスピノーダル分解の前駆現象が生じたためと考えられる。また、GaN 基板と ScAlN 膜の熱膨張係数差に起因する引張応力が、冷却過程でクラックを誘発した可能性も示唆された。

これに対し、基板温度を 450°C～600°C の範囲に設定すると、劇的な品質改善が見られた。RHEED パターンは明瞭なストリームを示し、二次元的な層状成長が進行していることが確認された。AFM による表面粗さ RMS は 1nm 以下となり、原子レベルで平坦な表面が得られた。これは、スパッタ粒子の運動エネルギーが熱エネルギーの不足分を補い、低温でも十分な表面マイグレーションを実現しつつ、過剰な熱拡散による相分離を抑制するという、本手法独自のメカニズムが有効に機能したこととしている。

一般に、半導体混晶の格子定数は、構成元素の組成比に対して直線的に変化するベガード則に従うとされる。しかし、本研究で作製した ScAlN 膜の c 軸格子定数は、Sc 組成の増加に対して上に凸の非線形な増大を示し、ベガード則から大きく逸脱した。

(10-15)面などの非対称面を用いた逆格子マップ測定の結果、Sc 組成が 20% を超える高濃度領域においても、ScAlN 膜の a 軸格子定数は下地 GaN の a 軸格子定数と完全に一致していることが判明した。これは、膜厚が数十 nm に達してもミスフィット転位による格子緩和が生じず、基板の結晶格子に合わせてコヒーレント成長していることを意味する。

ScAlN が GaN 上にコヒーレント成長すると面内方向（a 軸）に応力がかかる。ポアソン比の関係から、面内圧縮応力を受けると、垂直方向（c 軸）に結晶が伸びることになる。本研究では、ScAlN の弾性スティフネス定数が Sc 組成によって変化するモデルを採用し、実験値を解析した。その結果、

観測されたc軸格子定数の変化は、この組成依存する弾性定数とコヒーレント歪みの相乗効果によって、定量的に説明できた。また、機械学習（ニューラルネットワーク）を用いた解析も並行して行い、スパッタ法による低温プロセスが、準安定なウルツ鉱構造の存在領域を拡張し、他手法では到達困難な高Sc組成領域での結晶合成を可能にしていることを実証した。

強誘電性の実証に関しては、多くの技術的ハードルが存在した。特に研究初期の中間報告段階では、膜厚30nm程度の薄膜において電圧印加時に過大なリーク電流が発生し、明確なヒステリシスループが得られないという問題に直面した。中間報告時点では、膜厚30nm程度の薄膜において、電圧印加時に過大なリーク電流が発生し、明確なヒステリシスループが得られないという問題に直面した。詳細な解析の結果、正電圧印加時にScAlNのバンドが傾斜し、GaN界面のエネルギー障壁が実効的に低下することで、電子がトンネル効果により障壁を通過してしまうことが主因であると結論付けられた。また、窒素流量が少ない条件(6 sccm)では絶縁破壊に至ったことから、膜中の結晶品質の劣化もリークの一因であると考えられた。

そこで、これらの課題を克服するためにプロセス条件の抜本的な見直しを行った。具体的には、まずトンネル確率を低減するために膜厚を80~100nm程度まで厚膜化した上で、スパッタガス中の窒素比率を10 sccm以上へと高めることで、窒素空孔の生成を抑制し、膜の化学量論比（ストイキオメトリ）を改善した。加えて、結晶粒径を増大させてリークパスとなる粒界密度を低減するために、600°C付近での成長条件を確立するという複合的な対策を講じた。

これらの最適化の結果、特定条件下で作製したScAlN/GaN構造において、明確な強誘電性ヒステリシスループの観測に成功した。得られた残留分極値は実用レベルに達しており、抗電界についてもSc組成に応じた適切な値が得られている。

また、本研究の成果に至る過程では、多くの失敗と試行錯誤を繰り返した。例えば、Scターゲットは劣化しやすく、スパッタ中に放電が不安定になる異常放電現象が頻発するという課題があつたが、これに対してはターゲット表面のプレスピッタ雰囲気を調整することで改善を図った。さらに、スパッタ装置内の防着板への膜堆積が進行すると、脱ガスによる不純物汚染や電位分布の変化に伴う成膜レートの変動が見られたため、定期的なメンテナンスサイクルを確立するとともに、チャンバー状態のモニタリングを強化することで、再現性の高いデータを安定して取得できる体制を整えた。

4. 結論と今後の展望

本研究では、窒化物半導体エレクトロニクスの飛躍的な進化を目指し、スパッタ法を用いたScAlN強誘電体薄膜のエピタキシャル成長技術を確立した。その主な成果として、まず600°C以下の低温スパッタ成長プロセスを採用することで、相分離反応を回避しながら、GaN基板上に高品質なウルツ鉱型ScAlNをコヒーレント成長させることに成功した点が挙げられる。また、構造特性評価の観点からは、機械学習モデルを援用することで、ScAlNが示す特異な格子定数変化の挙動を解明した。この知見は、今後のデバイス設計において重要な指針となるものである。さらに、デバイス応用上の最大の焦点であった強誘電性の実証については、プロセス条件の最適化によりリーク電流を抑制し、GaN上でのスイッチング動作を確認することに成功した。これにより、GaNベースのFeFET実現が期待される。

本研究で得られた成果を基に、今後は実用化に向けた研究をさらに加速させる。具体的には、今回作製したScAlN/GaNヘテロ構造を用いて実際にFeFET構造を作製し、ゲート電圧によるドレン電流の変調およびしきい値電圧のシフトに基づくメモリ動作の実証に取り組む。あわせて、デバイスの信頼性向上とさらなるリーク電流低減を目指し、ScAlNとGaNの界面に数原子層のAlNスペーサー層を挿入するといった界面エンジニアリングに取り組む。学術的な側面からは、走査透過型電子顕微鏡(STEM)を用いた原子分解能観察により、分極反転時の原子変位を直接可視化し、スイッチングメカニズムの物理的詳細を明らかにする予定である。これらの研究成果は、次世代の低消費電力AIチップや高効率EV用パワーモジュール、5G/6G通信用高周波フィルタなど、持続可能な社会を支える基盤技術として広範に応用されることが期待される。