イオンプレーティング法による 窒化アルミニウム薄膜の作製*

岡野 寛^{*1}・増田 知弘^{*1}・道久 明宏^{*1}・長谷川弘治^{*2}

(受理2003年11月13日, 掲載決定2004年2月14日)

Preparation of Aluminum Nitride Thin Films
by RF Reactive Ion Plating.

Hiroshi OKANO^{*1}, Tomohiro MASUDA^{*1},
Akihiro MICHIIHISA^{*1} and Koji HASEGAWA^{*2}

^{*1}Takamatsu National College of Technology, 355 Chokushi, Takamatsu, Kagawa, 761-8058, Japan

^{*2}Department of Electrical and Electronic Engineering, Muroran Institute of Technology,
27-1 Mizumoto-cho, Muroran, 050-8585, Japan)

(Received November 13, 2003, Accepted February 14, 2004)

Aluminum nitride (AlN) thin films are very promising materials for piezoelectric devices. It is found from computed results that the layered structure, c-axis oriented AlN thin film on SiO₂/(100)Si, will exhibit high phase velocity (4760 m/s) with high coupling coefficient (0.0075), whose value is more than that of quartz (0.0011). AlN thin films were deposited on glass substrate by RF reactive ion plating system. It was confirmed that the transmittance and deposition rate of AlN thin films depend on distance of antenna-substrate greatly. Deposition rate became small when distance of antenna-substrate was enlarged. Transmittance of AlN increases with increasing deposition rate at the deposition rate of less than 0.4 nm/s.

1. はじめに

携帯電話や無線 LAN などの移動体無線機器で使用される周波数が現在の 2 GHz 帯から 3~5 GHz 帯へ移行していくことが予想され, それに対応した無線 RF 部のバンドパスフィルタの開発が必要である. 現在無線 RF 部のバンドパスフィルタには弾性表面波 (SAW) フィルタが使用されており, また次世代のフィルタとして圧電薄膜共振子の研究が盛んである^{1,2)}. どちらの素子も高品質な圧電材料を得ることが重要であり, SAW フィルタの高周波数化には, 高音速な弾性表面波を伝搬させ

ることが重要である.

窒化アルミニウム (AlN) は物理的・化学的に非常に安定であり, また圧電性を有するため, 有機 EL 素子などのパッシベーション膜や各種超音波素子用材料として有望視されてきた^{3,4)}. しかし AlN は SAW の電気機械結合係数が小さいため SAW フィルタに利用する場合, 電極設計上の課題が多く実用化には至っていない. 近年盛んに研究されている圧電薄膜共振子の場合, 求められる材料特性として, 膜厚変動時の周波数変動を最小限に抑えるため, バルク波の音速が大きいこと, 更にバルク波の電気機械結合係数が大きいこと, 温度変動時の音速の変動が小さいこと, などが上げられる¹⁾. AlN の場合, バルク波の音速は 11300 m/s, 電気機械結合係数は 6.5%, 温度係数は -25 ppm/°C であり理想的な材料¹⁾である. また, AlN は圧電体の中では最も高音速な SAW

* 平成15年11月13日 第44回真空に関する連合講演会で発表

^{*1} 高松工業高等専門学校 (〒761-8058 香川県高松市勸使町355番地)

^{*2} 室蘭工業大学 電気電子工学科 (〒050-8585 北海道室蘭市水元町27番1号)

を伝搬することが可能であるため SAW フィルタ用材料としても再度検討する価値がある。

AlN 薄膜の作製は、各種スパッタ法⁵⁻⁷⁾、CVD 法^{8,9)}等により報告されている。今回、SAW デバイスの製造現場に必ず存在する、抵抗加熱蒸着装置に、RF アンテナ（ループアンテナ）を追加した、低コストな薄膜形成手法であるイオンプレーティング法により AlN 薄膜の作製を試みた。

イオンプレーティング法により高品位な薄膜を作製するには、RF パワー、反応圧力、基板温度、基板—蒸着源間距離等の最適化が必要であると指摘されており多くの研究報告¹⁰⁾がある。このうち、RF パワーや基板—蒸着源間距離はプラズマ中の電磁界分布に大きく影響を与えており、それが膜質に影響していることが予想される。しかし、チャンパー内の電磁界分布に影響するアンテナの位置、すなわち誘導結合型プラズマを発生させる際の RF アンテナと基板との位置関係が膜質に及ぼす影響についてはあまり報告がない。本論文では主に電磁界分布に大きく影響を与える RF アンテナと基板、蒸着源の位置関係や RF パワーが膜質に与える影響を考察した。

また同時に、SAW フィルタに応用する際の基本構造の 1 つである AlN/SiO₂/Si 構造における、SAW 特性を Matix Method によりシミュレーションし、AlN 薄膜上の SAW 伝搬特性を試算した。

2. 実験方法

2.1 SAW 特性のシミュレーション

SiO₂/Si (100) 基板上的 AlN 薄膜の SAW 特性は、Matrix Method¹¹⁾によりシミュレーションを行った。電気機械結合係数は、AlN/SiO₂/Si (100) 構造の表面をメタライズした場合と、フリーの場合の SAW の伝搬速度の差から算出した。また、伝搬速度の計算結果としては、表面がフリーな場合の計算結果を示した。

2.2 AlN 薄膜の作製と評価

AlN 薄膜は、イオンプレーティング法により作製した。RF アンテナの位置は基板の位置からの距離を基準に変化させた。Table 1 に作製条件を示す。基板はアース電位とし、電圧は印加していない。Fig. 1 に装置の概略図を示す。基板—アンテナ間距離はアンテナの位置を移動することで 2~7 cm の間で変化させた。基板—蒸着源間の距離は 11 cm である。またシャッターの位置は固定した。

薄膜の組成はオージェ電子分光法、結晶性は X 線回折分析により評価した。透過率は、430, 550, 700 μm での測定値を平均した値を使用した。

Table 1 Deposition conditions of aluminam thin films

Substrate	Corning 7059
Deposition Source	Aluminum (99.999%)
Substrate Temperature	Room Temperature
Reactive Pressure	0.1~0.4 Pa
RF Power	100~500 W
N ₂ Flow Rate	3~5 SCCM
Back Pressure	5 × 10 ⁻⁵ Pa

Fig. 1 Apparatus of the ion plating system used in this experiment.

3. 結果及び考察

3.1 SAW 特性のシミュレーション

シミュレーションを行った素子構造は、基板に (100) Si を使用し、中間層として SiO₂ を挿入し最上部に AlN 膜が位置する構成である。AlN の成長方位は一番安定に再現性良く形成可能な c 面を仮定し、SAW の伝搬方向は a 軸方向である。中間層 SiO₂ の相対膜厚を $h_{\text{SiO}_2}/\lambda = 0, 0.1, 0.2$ として AlN の相対膜厚と伝搬速度及び電気機械結合係数の関係をシミュレーションした。

Fig. 2 に伝搬速度、Fig. 3 に電気機械結合係数の計算結果を示す。 h_{AlN}/λ が 0.2 以上の場合、 h_{AlN}/λ の増加とともに伝搬速度及び電気機械結合係数は向上した。Fig. 4 に AlN の相対膜厚 (h_{AlN}/λ) を 0.4 に固定した場合の、中間層 SiO₂ の膜厚と音速及び電気機械結合係数の関係を示す。音速は Si 基板と AlN の間に SiO₂ 層を挿入することにより、10~15% 程度低下 (5180→4760 m/s) するが、電気機械結合係数は、SiO₂ 層を挿入することにより、20~30% 改善 (0.0050→0.0075) することが分かった。また SiO₂ の有無にかかわらず電気機械結合係数は水晶の電気機械結合係数 (0.0011)¹²⁾を上回り、AlN 薄膜が SAW フィルタ用材料として十分実用化可能なことが分かった。

Fig. 2 Computed results of phase velocity for AlN/SiO₂/(100)Si.

Fig. 3 Computed results of coupling coefficient for AlN/SiO₂/(100)Si.

Fig. 4 Computed results of phase velocity and coupling coefficient for AlN/SiO₂/(100)Si at h_{AlN}/λ of 0.4.

3.2 AlN 薄膜の作製

始めに、窒素ガス雰囲気中で抵抗加熱によりアルミニウムを蒸発させ AlN の作製を試みた。Fig. 5 に製膜時間と膜厚の関係を示す。膜厚は製膜時間に比例し製膜時間を制御することで膜厚を制御可能なが分かった。しかしオージェ電子分光法により、組成分析を行った結果、得られた薄膜は純アルミニウムであり全く窒化していないことが分かった。

Fig. 5 Relationship between the deposition time and film thickness.

Fig. 6 Dependence of transmittance for AlN thin films on antenna-substrate distance at the RF power of 100, 300 and 500 W.

次に、RF (13.56 MHz) 印加による窒素プラズマ中で AlN 薄膜の作製を試みた。プラズマはループ状アンテナを使用した誘導結合型プラズマである。このような手法で化合物薄膜を形成するには RF パワー、反応圧力、基板温度、基板—蒸着源間距離等が膜質に大きく影響を与えることが知られている。このうち、RF パワーや基板—蒸着源間距離はプラズマ中の電磁界分布に大きく影響を与えており、それが膜質に影響していることが予想される。本研究では RF を印加する際の、アンテナの位置（基板—アンテナ間距離）と RF パワーを変化させ AlN 薄膜を作製し膜質、主に可視光透過率への影響を検討した。Fig. 6 に RF パワーが 100, 300, 500 W の時の基板—アンテナ間距離と可視光透過率の関係を示す。透過率は基板—アンテナ間距離に大きく依存し基板—アンテナ間距離が 3~5 cm の時最大となった。基板—アンテナ間距離を 5 cm 以上とすると急激に透過率は低下した。また、基板—アンテナ間距離を 2 cm、すなわちアンテナを基板側に近寄づけても透過率は低下した。

Fig. 7 に基板—アンテナ間距離を変化させた場合の RF パワーと可視光透過率の関係を示す。基板—アンテナ間距離が 6 cm 以上の場合、すなわちアンテナを基板から大きく離し蒸着源に近づけた場合は、透過率は RF

Fig. 7 Dependence of transmittance for AlN thin films on RF power at the different antenna-substrate distance.

Fig. 8 Dependence of deposition rate for AlN thin films on antenna-substrate distance at the RF power of 100, 300 and 500 W.

パワーに依存し、RF パワーを大きくするほど透過率は向上した。基板—アンテナ間距離が 5 cm 以内の場合、透過率は RF パワーに依存せず、RF パワーが 100 W の場合でも、90% 以上の透過率が得られた。ここまでの結果より、透過率は基板—アンテナ間距離に依存し、また透過率の低い条件では、RF パワー依存性があることが分かった。

Fig. 8 に基板—アンテナ間距離と製膜速度の関係を示す。製膜速度は基板—アンテナ間距離に依存し Fig. 6, すなわち基板—アンテナ間距離と透過率の関係に類似していることが分かった。Fig. 9 に製膜速度と透過率の関係を示す。製膜速度が比較的遅い領域、すなわち 4 nm/s 以下の場合、透過率は製膜速度に比例し、製膜速度が大きいほど、透過率は向上した。本研究における製膜速度は一般のイオンプレーティング法での値に比較して比較的小さな値¹⁰⁾である。基板—アンテナ間距離を大きくすると、すなわち蒸着源にアンテナを近づけると、蒸着源であるアルミニウムの表面が窒化しやすく、アルミニウムの表面に高融点の窒化アルミニウム層が形成され、蒸発速度が極端に低下すると予想される。この時蒸着源からは表面の AlN が昇華モードで蒸発すると予想される。また一部蒸発したアルミニウム粒子も基板上ではな

Fig. 9 Dependence of transmittance on deposition rate for AlN thin films.

く蒸発直後に気相上で窒化する割合が増加する。高融点の AlN の状態で低温の基板に到達する粒子の割合が増加すると、基板表面での原子の再配列が進まず、結果として透過率の低下につながったものと思われる。

尚、今回作製した全ての薄膜は X 線回折分析の結果非晶質であることが分かった。

4. まとめ

Matrix Method 法により (001) AlN/SiO₂/(100) Si 構造の SAW 特性を計算した。また、プレーティング法により AlN 薄膜を作製し RF アンテナと基板、蒸着源の位置関係や RF パワーが膜質に与える影響を考察した結果、次の結論を得た。

(1) 音速は Si 基板と AlN の間に SiO₂ 層を挿入することにより、10~15% 程度低下 (5180→4760 m/s) するが、電気機械結合係数は、SiO₂ 層を挿入することにより、20~30% 改善 (0.0050→0.0075) される。また SiO₂ の有無にかかわらず電気機械結合係数は水晶の電気機械結合係数 (0.0011) を上回った。

(2) 基板—アンテナ間距離が得られた薄膜の透過率に大きく影響する。

(3) 製膜速度は基板—アンテナ間距離に依存しており、比較的製膜速度の低い領域 (0.4 nm/s 以下) では、製膜速度が大きくなると透過率は向上した。これは蒸着源の窒化と大きく関連しているものと予想される。

謝辞

本研究の一部は、財南海育英会及び山陽放送学術文化財団の支援を受けなされています。関係各位に感謝いたします。

〔文 献〕

- 1) K. M. Lakin: Proc. IEEE Ultrasonics Sympo. (2001) p. 827-831.
- 2) T. W. Grudkowski: Appl. Phys. Lett. 37, p. 993,

- (1980).
- 3) T. Shiosaki, T. Yamamoto, T. Oda, K. Hrade and K. Kawabata: Proc. Ultrasonics Symp. (IEEE, New York, 1980) p. 451.
 - 4) J. S. Wang, K. M. Lakin and R. Landin: Proc. 37th Annu. Frequency Control Symp. (IEEE, New York, 1983) p. 878.
 - 5) H. Okano, T. Tanaka, K. Shibata and S. Nakano: Jap. J. Appl. Phys. 31 (1992) 3017.
 - 6) H. Okano, Y. Takahashi, T. Tanaka, K. Shibata and S. Nakano: Jap. J. Appl. Phys. 31 (1992) 3346.
 - 7) L. Xinjiao, X. Zechuan, H. Ziyu, C. Huazhe, S. Wuda, C. Zhongcai, Z. Feng and W. Ebguang: Thin Solid Films 139, 361 (1986).
 - 8) T. Tsubouchi and Mikoshiba: IEEE Trans. Sonics Ultrason. SU-32, 634 (1985).
 - 9) F. Hasegawa, T. Takahashi, K. Kubo and Y. Nannichi: Jap. J. Appl. Phys. 26 (1987) 1555.
 - 10) K. Oumi, K. Kashiwagi, H. Kokai and Y. Murayama: Jap. J. Appl. Phys. 40 (2001) L468-70.
 - 11) E. L. Adler: IEEE Trans. Ultrason., Ferroelec., Freq. Contr., 37 (1990) 485.
 - 12) N. Tanaka, Y. Hirao, Y. Kobayashi, H. Okano, T. Usuki, K. Shibata, K. Niki, T. Kameoka and M. Ikeda: Proc. IEEE Frequency Control Symp. (1998) p. 87-90.