

令和 3 年 6 月 10 日現在

機関番号：82626

研究種目：基盤研究(C) (一般)

研究期間：2018～2020

課題番号：18K04918

研究課題名(和文) 元素添加で著しく圧電性能が高くなるAlNのナノファブリケーションと表面物性の研究

研究課題名(英文) Fabrication of Metal-Doped-AlN Piezoelectric Nanorod and Investigation on the Properties

研究代表者

上原 雅人 (Uehara, Masato)

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・主任研究員

研究者番号：10304742

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 3,400,000円

研究成果の概要(和文)：窒化アルミニウムは電気的エネルギーと力的エネルギーを変換できる物質(圧電材料)である。通信機器などに利用されている。その機能の向上が期待できるとされるナノロッド化に成功した。ナノロッドはナノメートル(1億分の1メートル)レベルの非常に微細であるが、今回、それらがナノメートルレベルで整然と並んだ構造体を作製できた。この技術は8インチサイズの広い面積の半導体ウエハ上でも作製可能であり、量産化も期待できる。さらに、窒化アルミニウムに異種の金属元素を混ぜることで性能を向上させることができることを見出した。

研究成果の学術的意義や社会的意義

窒化アルミニウムは電気的エネルギーと力的エネルギーを変換できる物質(圧電材料)である。通信機器などに利用されている。5G以降の通信システムで利用するには、圧電性能を一層高める必要がある。性能の向上の手段としてナノロッド化が提案されている。今回、ナノメートルレベルで整然と並ぶ構造列をシリコンウエハ上に作製できる技術を開発した。用いた方法はスパッタリング法であり、低コストである。さらに、本技術では8インチサイズの広い面積の半導体ウエハ上でも作製可能であることを実証できたので、今後、量産化も期待できる。

研究成果の概要(英文)：Aluminum nitride is a piezoelectric material that can convert electrical energy and mechanical energy. It is used in communication equipment. We have succeeded in fabricating the nanorod array, which is expected to improve the piezoelectric properties. Although the diameter and height of nanorods is extremely fine at the nanometer-level, the array can be fabricated on a silicon wafer with a large area of 8 inches in size using our developed technique in this study. This technique can be expected as a mass production process. It was also found that the piezoelectric properties can be improved by adding different kinds of metal element with aluminum nitride..

研究分野：材料工学

キーワード：窒化アルミニウム ナノロッド スパッタリング 圧電材料

様式 C-19、F-19-1、Z-19 (共通)

1. 研究開始当初の背景

窒素化合物のうち、ウルツ鉱型結晶である窒化アルミニウム(AIN)や窒化ガリウム(GaN)は圧電性を示す。これらは高い弾性率や低い誘電率、優れた熱的安定性、化学的安定性を持っていることから、圧電デバイスに利用されている。近年、これらに金属元素を添加することで圧電性能が飛躍的に増大することが見出されている[①②]。この金属添加材料はスマートフォン用高周波デバイスなどに用いられており、今後、先端的な圧電 MEMS デバイスへの応用が期待されている。また、GaN について、ナノロッド化による圧電性能の増大とともに表面分極挙動変化が報告されている[③]。一方、ナノロッドは酸化物系を中心に、液相法や MOCVD 法での作製例が多くある。しかし、窒化物系はあまりない。圧電材料としての AIN は製造コストの小さいスパッタリング法で作製されており、今後の社会実装のためには同等レベルのコストの方法で作製することが望ましい。

2. 研究の目的

本研究では、窒化物圧電材料について、圧電性能の増大が期待されるナノロッド化に取り組む。将来の量産化を可能にするために、スパッタリング法による製造方法を開発する。さらに新規の金属添加 AIN 材料の開発に取り組み、ナノロッド化を目指す。

3. 研究の方法

(1) ナノロッド群の作製

ウルツ鉱型結晶の AIN は c 軸方向に自発分極を有する。AIN はスパッタリング法により c 軸方向の配向膜が容易に得られる。さらにこの製造方法は CMOS プロセスとの親和性が高いので、AIN の圧電デバイスとしての応用にはこのスパッタリング法による配向膜が用いられる。本研究では、スパッタリング法でのナノロッド群の作製を行った。特に、基板にナノピラー群を加工し、斜入射スパッタリング法によって AIN ナノロッド群を作製した[④⑤]。ナノピラー群の加工におけるリソグラフィのパターン作製は、将来の量産化を見越し、ステッパーによるマスク露光法で試みた。

(2) 金属添加 AIN の開発

スカンジウム (Sc) 添加により AIN の圧電性能は飛躍的に増大する。これまでにクロム (Cr) やタンタル (Ta)、イットリウム (Y) やエルビウム (Er) などの元素添加の報告があるが、AIN の圧電性向上に対して十分な効果を実験的に実証されていない。結晶中の電荷バランスを考慮すると、Sc と同じの III 属元素が望ましいと考えられる。Y や Er 添加では十分な結晶性が得られていないが、これらのイオン半径が Sc に比べて非常に大きいことが原因と考えられる。今回、Sc よりも大きいものの、III 属元素で比較的イオン半径の小さいイッテルビウム (Yb) を選択し、その添加効果を調査した。2 元同時スパッタリング装置を用いて作製した。ターゲットには Al 金属 (5N) と Yb 金属 (3N) を用いて、アルゴン/窒素混合ガス中で反応性スパッタリング法により作製した。実験計画に基づいて、Yb 添加 AIN の作製条件を探索し、配向膜を作製した。圧電性能や結晶構造を評価し、その関係について調査した。

4. 研究成果

(1) ナノロッド群の作製

ナノロッドの基板となるナノピラー群の作製について、図 1 に示したプロセスで、直径 100nm のナノピラー群の作製を試みた。ステッパーを用いたフォトマスク方式で行った。フォトマスクをずらして二重露光することで、標準解像度限界 (500nm) 以下の、直径 320nm のレジストドットパターンを形成した。レジスト塗布前に形成するマスク酸化膜の厚さを検討した。50nm の薄い酸化膜にすることで、マスク酸化膜除去の際の直径の減少を抑えることができた。シリコン深堀およびマスク酸化膜除去により、ピラー直径を 120nm 程度にすることができた。その後、最終的なエッチング処理により直径を小さくした。このとき、ピラー上部に再度酸化膜を 15nm 程度作製することで、過度な直径減少を抑えた。その結果、直径 100nm と 200nm のナノピラー群を作ることができた。ピラー間隔は前者が 900nm、後者は 800nm である。図 2 に直径 100nm のナノピラーの SEM 写真を示す。SEM で測長した結果、この試料内のピラーはいずれも 100nm 以下の直径であった。このように、EB ではなく、ステッパーを用いたマスク露光法によって作製することに成功した。8 インチサイズでも加工できたので、量産化も可能であり、様々な応用に期待できる。

次に、直径 100nm(ピッチ 900nm)と直径 200nm(ピッチ 800nm)のナノピラー群を作製した基板に、スパッタリング法で AIN ナノロッドの作製を行った。スパッタ粒子の斜入射によるシャドウイング効果を利用した。いずれの試料も直径 200nm であった。直径 100nm(ピッチ 900nm)のピラー群ではピッチが広いためにシャドウイング効果が十分でなかった可能性がある。一方、直径 200nm(ピッチ 800nm)を用いた場合、図 3 に示すような、下地のピラーと同等の直径 200nm ナノ

ロッドを作製することができた。

(2) 金属添加 AlN の開発

実験計画に基づいて、Yb 添加 AlN の作製条件を探索した結果、良好な結晶を得ることができた。X 線による広域逆格子像を得ることで、結晶相を同定した結果、Al に対して Yb 添加量が 37at% までの物質はウルツ鉱型の結晶であることが分かった。副生成物は広域逆格子像でも確認されなかった。002 回折のロックンクカーブは $2\sim 3^\circ$ であり、良好な配向性であった。格子定数は Yb 添加により線形的に増加した。しかし、c 軸の増加率に比べて a 軸の増加率が大きく、格子定数比 c/a は減少した。これは Sc 添加と類似の挙動である。図 4 に示すように、圧電定数は Yb 量に依存し、最大で AlN の 2 倍の圧電定数を示す物質を得ることができた。これまで Sc 以外で圧電性能が 2 倍以上向上した添加元素は Mg 系の 2 元素同時添加しかなく、単独元素添加では Sc に次ぐ効果であることが分かった。Sc の代替元素として期待できる。

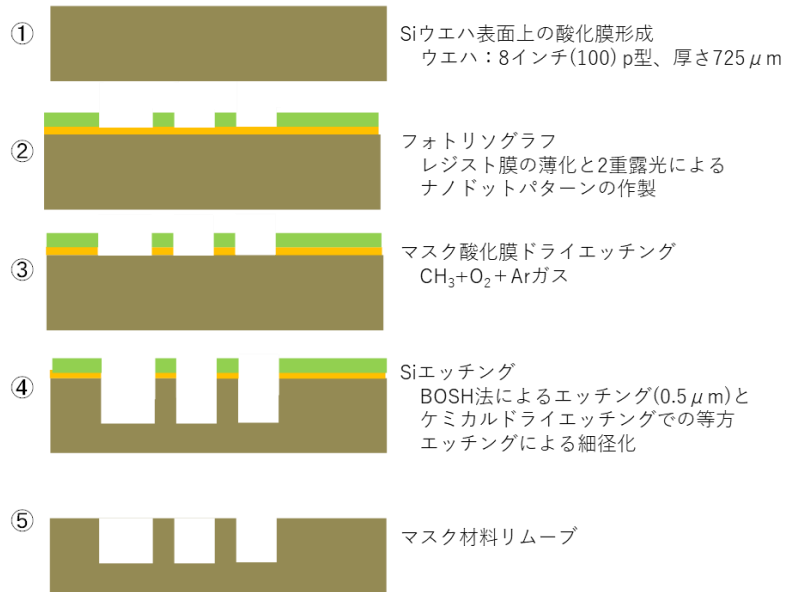


図 1 基板に用いたナノピラー群の加工プロセス

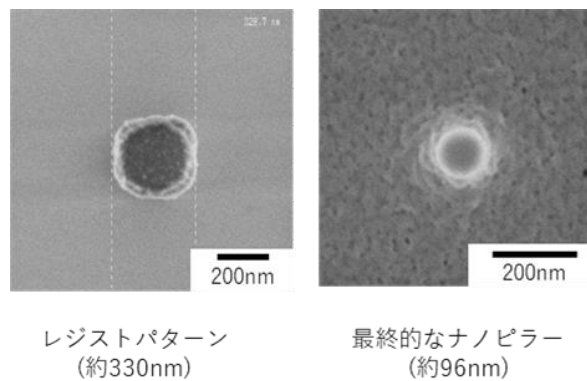


図 2 ナノピラー群加工におけるフォトリソと最終的なピラーの SEM 写真

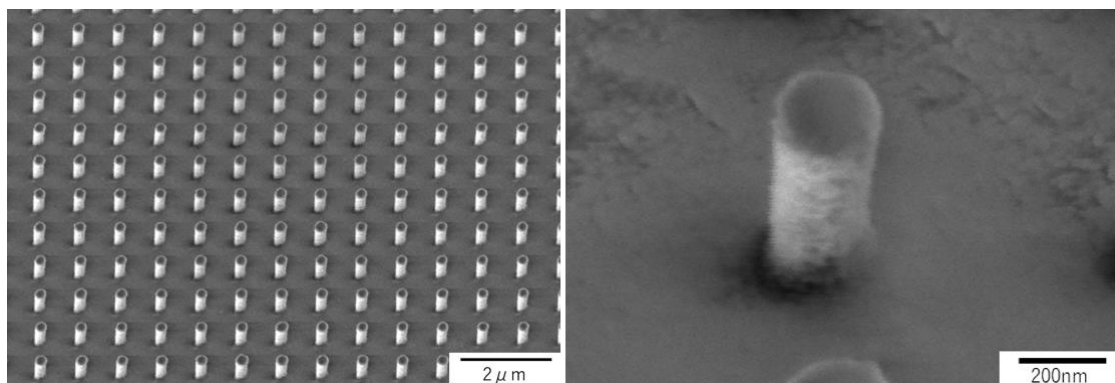


図3 ナノピラー群(直径 200nm/ピッチ 800nm)上に作製したナノロッド群の SEM 写真

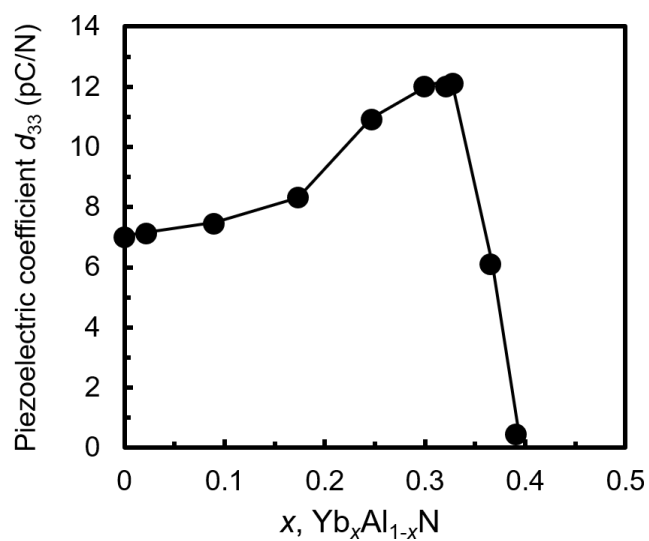


図4 AlN の圧電性能への Yb 添加の影響

<引用文献>

- ①Akiyama et al., Adv. Mater., 21, 2009, 593-596
- ②M. Uehara et al., Appl. Phys. Lett., 111, 2017, 112901
- ③M. Minary-Jolandan et al., Nano Lett. 2012, 12, 970-976
- ④Karabacak et al., J. Vac. Sci. Technol. A, 22, 2004, 1778-1784
- ⑤井上ら, 2007年精密工学会秋季大会学術講演会講演論文集, 2007, 235-236

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計1件（うち査読付論文 1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 Masato Uehara, Yuki Amano, Sri Ayu Anggraini, Kenji Hirata, Hiroshi Yamada and Morito Akiyama	4. 巻 47
2. 論文標題 Preparation of YbAlN piezoelectric thin film by sputtering and influence of Yb concentration on properties and crystal structure	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 Ceramics International	6. 最初と最後の頁 16029-16036
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1016/j.ceramint.2021.02.177	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15件（うち招待講演 9件 / うち国際学会 6件）

1. 発表者名 上原雅人
2. 発表標題 IoT社会に向けた複合窒化物圧電薄膜の開発
3. 学会等名 第11回セラミックス研究交流セミナー（招待講演）
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 上原雅人
2. 発表標題 ウルツ鉱型窒化物への元素添加による圧電材料の開発
3. 学会等名 セラミックコーティング研究体研究会（招待講演）
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 Masato Uehara et al.
2. 発表標題 Development of Aluminum Nitride Piezoelectric Thin Film by Doping
3. 学会等名 4th Pacific Rim Engineering Ceramics Summit（招待講演）（国際学会）
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 Masato Uehara et al.
2. 発表標題 Effect of Yb doping on piezoelectric properties and crystal structure of AlN piezo thin film
3. 学会等名 2019 MRS Fall Meeting (国際学会)
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 Masato Uehara et al.
2. 発表標題 Doping Effect on Properties of Piezoelectric Nitride Thin Films
3. 学会等名 19th US-Japan Seminar on Dielectric and Piezoelectric Ceramics (招待講演) (国際学会)
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 Masato Uehara et al.
2. 発表標題 Preparation of Yb-doped AlN Piezoelectric Thin Film
3. 学会等名 PACRIM13 (国際学会)
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 天野雄貴、上原雅人ら
2. 発表標題 c軸配向したYbxAl1-xN圧電薄膜のXRDによる結晶構造解析
3. 学会等名 第80回応用物理学会秋季学術講演会
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 Masato Uehara et al.
2. 発表標題 Ternary and Quaternary Nitride Piezoelectric Thin Film
3. 学会等名 2019 ISAF-ICE-EMF-IWPM-PFM Joint Conference (招待講演) (国際学会)
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 上原雅人ら
2. 発表標題 金属元素添加による窒化アルミニウム圧電薄膜の結晶構造の変化
3. 学会等名 第37強誘電体応用会議
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 天野雄貴、上原雅人ら
2. 発表標題 Yb添加によるAlN薄膜の圧電性の向上
3. 学会等名 第66回応用物理学会春季学術講演会
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 上原雅人
2. 発表標題 センサネットワーク社会に向けた窒化物圧電薄膜の開発
3. 学会等名 出前シンポジウムin熊本 (招待講演)
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 上原雅人
2. 発表標題 元素添加によるAlN系圧電薄膜の開発
3. 学会等名 日本学術振興会 第166委員会第81回研究会(招待講演)
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 Masato Uehara, Sri Ayu Angg raini, Horoshi Yamada, Morito Akiyama
2. 発表標題 Influence of Metal Element Addition on Crystal Structure of AlN Piezoelectric Thin Film
3. 学会等名 2018 Materials Research Society Fall Meeting(国際学会)
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 Masato Uehara
2. 発表標題 Recent Progress in Piezoelectric Nitride Thin Film
3. 学会等名 10th Japan-China Symposium on Ferroelectric Materials and Their Applications(招待講演)
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 上原雅人
2. 発表標題 窒化物圧電薄膜の構造制御
3. 学会等名 ものづくり工学教育研究センター10周年記念セミナー(招待講演)
4. 発表年 2018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
---------	---------