

# ●次世代圧電材料 AlN-ScN-GaN 膜の成膜検討と 圧電特性への影響

先端融合研究センター 先端材料研究所 無機電子材グループ

幸田陽一郎  
正能 大起  
上岡 義弘  
召田 雅実

## 1. 背景と目的

圧電材料は外部から機械的な力を加えることで電気を発生し、逆に電圧を加えることで機械的な変形を生じる特性を持つ材料である。この材料の応用範囲は、センサ、アクチュエータ、超音波発生器など多岐にわたるが、特に最近ではスマートフォンなどの移動体通信機器のバルク弾性波フィルタ（BAW フィルタ）用途で注目されている。BAW フィルタは、特定の周波数帯を選択的に通過させ、不要な信号を除去する役割を果たす。このため、複数の通信バンドを利用するスマートフォンなどの移動体通信機器において不可欠な部品である。特にスマートフォンでは多様な通信規格や周波数帯が利用されており、バンドごとに高性能なフィルタが要求される。さらに移動体通信の分野では、5G や今後の 6G などより高速かつ大容量の通信が求められていることから、使用される周波数帯も高周波化が進み、その結果従来以上に高い周波数のみを安定して通過させるフィルタ開発が重要である。

圧電材料の性能を表す指標に電気機械結合係数  $k^2$  というものが存在し、 $k^2 = d_{33}^2/s\epsilon$  で表される。ここで  $d_{33}$  [pC/N] は圧電定数、 $s$  [m<sup>2</sup>/N] は弾性コンプライアンス、 $\epsilon$  [F/m] は誘電率である。 $k^2$  が大きいほど BAW フィルタの帯域幅を広く設計できるメリットがあり、この値は圧電定数  $d_{33}^2$  に比例することから、高い圧電定数  $d_{33}$  を有する圧電材料が求められる。また周波数は材料の音速に比例するため、高周波数帯を利用する観点から材料の音速も高い方が望ましい。

このような背景から BAW フィルタとして実用化されている材に  $(Al, Sc)$  N がある。 $(Al, Sc)$  N は窒化アルミニウム (AlN) に Sc を添加した材料で、その構造は AlN と同じくウルツ鉱型構造であるが（図 1）、Sc を添加することで、AlN と比べて圧電定数が飛躍的に向上することが知られている<sup>(1)(2)</sup>。

また第一原理計算によると、AlN に約 70at%の Sc

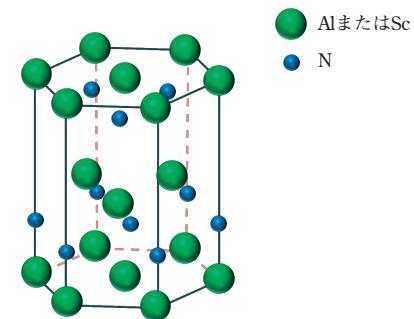


図 1  $(Al, Sc)$  N の結晶構造

を固溶させることで圧電定数が 100 pC/N 近くまで向上すると見積られているため<sup>(3)</sup>、圧電定数向上の余地が十分あるように見えるが、実際の薄膜でこの値は実現できていない。その理由として Sc の AlN に対する固溶量と構造変化が関係している。具体的には、ウルツ鉱型構造の AlN に対する Sc 固溶量は約 43at%が限界であることが知られており<sup>(1)</sup>、さらに Sc を添加すると ScN の結晶構造である NaCl 型に変化してしまうが、NaCl 型は中心対称構造のため、圧電性を有しないことから圧電定数が急激に低下するためである。したがって、圧電定数を向上させるにはウルツ鉱型構造を維持しつつ、膜中の Sc 量を増やすアプローチが求められる。

そこで今回我々は、 $(Al, Sc)$  N と同じくウルツ鉱型構造を有する  $(Ga, Sc)$  N が、 $(Al, Sc)$  N よりも ScN 固溶量の多い組成でウルツ鉱型が維持できるという理論計算の結果に着目し<sup>(4)</sup>、従来の  $(Al, Sc)$  N に Ga を加えることで、膜中 Sc 固溶限界量の増加とウルツ鉱型構造維持の両立を達成し、さらなる圧電特性向上が可能と考え、実際に成膜検討および物性評価を行った。なお、本技術の開発目的は産業と技術革新の基盤をつくることであり、本技術は高性能な BAW フィルタを社会に提供して社会貢献することを目指す。

## 2. 成膜検討と物性評価

### [1] 3元同時スパッタによる薄膜作製

成膜に関しては、Al ターゲット、Sc ターゲット、GaN ターゲットを用いた3元同時スパッタ法により実施した(図2)。また今回は組成の違いや Ga の添加による圧電特性の傾向を把握することが目的のため、各ターゲットの投入電力以外の条件は同条件に統一した。実際 Si 基板上への成膜は問題なく行うことができ、試料5つを作製した(図3)。

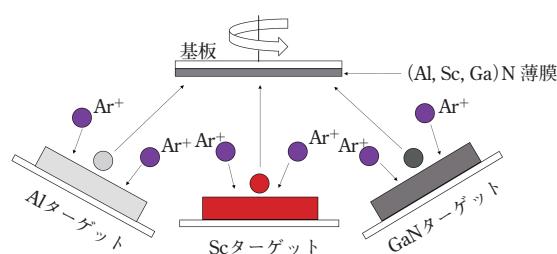


図2 3元同時スパッタ法模式図



図3 成膜試料外観

### [2] 組成解析

成膜試料の組成に関してはEDSによる確認を行った。その結果、想定していた組成からは差異が生じていることが明らかとなった(表1)。想定よりも実組成の値が大きかったものについては赤字で、小さかったものについては青字でそれぞれ示したが、具体的にAlは想定よりも実組成の値のほうが大きい傾向、反対にScは想定よりも実組成の値のほうが小さい傾向が見られた。これらの傾向は文献で報告されているターゲット組成と膜組成の差異の傾向とも一致した<sup>(5)</sup>。また、Gaの組成は概ね想定よりも実組成の値のほう

が小さくなる傾向であることが、本検討より明らかとなった。組成ずれの要因としては、テスト成膜はMgO基板上へ行い、XRFによる組成判定量を行うことで、成膜レートおよび組成の確認を行ったのに対し、実際の成膜はSi基板上へ行っていることや、今回窒化物の膜を作製するためにN<sub>2</sub>ガスを導入しているが、成膜時間が経過するにつれてScターゲット表面も窒化され、実質的なSc供給量が低下したことなどが考えられる。

### [3] 圧電特性( $d_{33}$ )評価

続いて、作製した5つの試料について圧電特性 $d_{33}$ を測定した。なお、膜全体での物性を評価するため、膜中20点を測定した平均値を測定値とした。Sc組成に対しては、値が増加するにつれて圧電特性 $d_{33}$ も向上し、最もSc組成が大きな試料で物性も最大となった(図4)。次にGa組成に対しては、13at%～20at%の領域で上昇傾向がみられるものの、全体としては組成が大きいほど物性は低下し、最もGa組成が小さい試料で物性が最大となった(図5)。 $(Al,Sc)N \cdot 2$ 元系膜の圧電定数 $d_{33}$ は、約27pC/Nが上限であることを踏まえると<sup>(6)</sup>、今回成膜した $(Al,Sc,Ga)N \cdot 3$ 元系膜は最大で32pC/Nを示したため、2元系膜の物性を上回る結果となった(図6)。

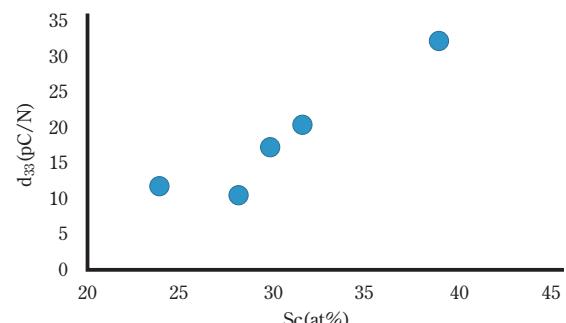


図4 Sc組成に対する圧電特性 $d_{33}$ の傾向

表1 各成膜試料の想定組成と実組成の比較

想定組成			実組成		
	Al(at%)	Sc(at%)	Al(at%)	Sc(at%)	Ga(at%)
組成①	49	34	53.5	29.9	16.5
組成②	38	36	49.8	28.2	21.9
組成③	38	40	48.9	31.7	19.4
組成④	49	38	62.2	24	13.8
組成⑤	49	43	53.3	39.1	7.6

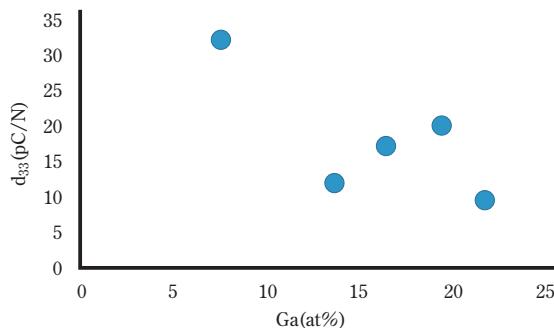
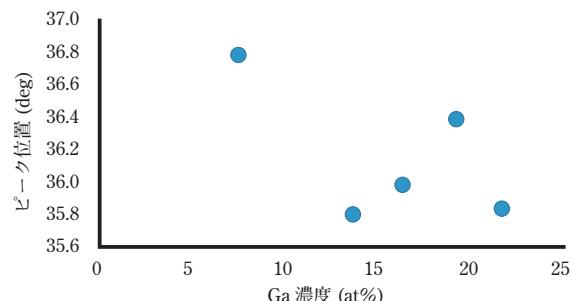
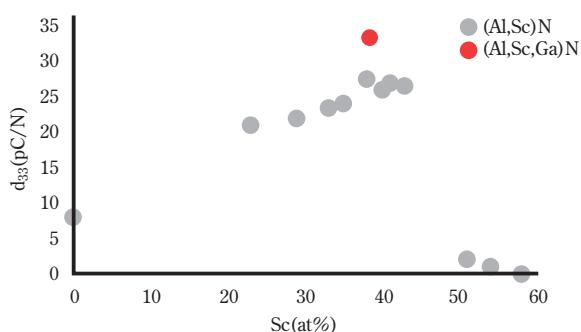
図5 Ga組成に対する圧電特性  $d_{33}$  の傾向

図8 Ga組成に対するピーク位置の傾向

図6 (Al, Sc)N と (Al, Sc, Ga)N の圧電特性  $d_{33}$  比較

#### [4] 構造解析 (XRD)

最後に試料のXRD測定を実施した(図7)。すべての試料においてウルツ鉱型構造の(002)ピークが観測されたが、試料を並び替えるとピークシフトの傾向が顕著に確認できた。ウルツ鉱型構造の異方性を表す指標にuパラメータというものが存在し、a軸の格子定数とc軸の格子定数を用いて $u = a^2/3c^2 + 0.25$ と表

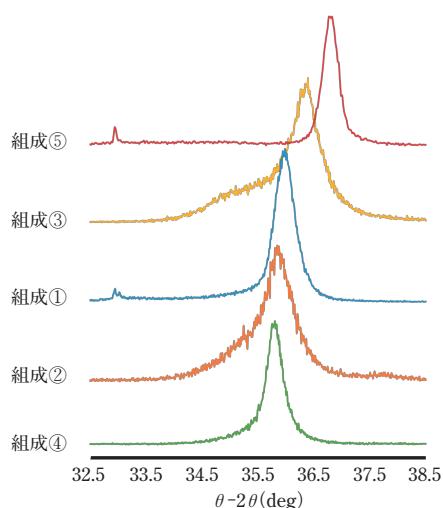


図7 成膜試料のXRD

現できるが、Gaの組成が大きいほどuの値が小さくなる傾向にあることが過去の研究結果で示されている<sup>(7)</sup>。これは式の右辺の分母、つまりはc軸長が大きくなっていることを意味し、c軸長が大きくなると一般的にピークは低角シフトするが、今回作製した試料も膜中のGa組成が大きくなるほど低角シフトする傾向が見られた(図8)。

#### 3.まとめと今後の展望

(Al,Sc,Ga)N・3元系膜の作製検討の結果、従来の(Al,Sc)N・2元系膜を上回る圧電特性を有する膜の作製に成功した。ただしすべての試料で想定よりもSc組成が小さくなつたことで、最大でも39at%程度しか添加ができなかつたため、本来の目的であったSc固溶限界量の増加とウルツ鉱型構造維持の両立による物性向上の確認ができなかつた。したがつて今後は、成膜条件を調整して再検討を実施予定である。また、本報告では成膜手法として3元同時スパッタ法を採用したが、同時スパッタ法では膜質再現性に課題があると考えている。3元合金ターゲットを使用することで膜組成を安定化できると考え、合金ターゲットの作製検討を開始し、現在は作製法の目途が立つた段階までできている。今後はそれを用いた成膜検討・物性評価も実施予定である。

謝辞：本研究における圧電特性評価装置に際し、国立大学法人東京科学大学舟窪研究室のご厚意により装置を使用させていただきました。ここに、同研究室の舟窪浩先生をはじめ、ご協力いただいた皆様に深く感謝申し上げます。

#### 4.参考文献

- 1) M. Akiyama *et al*, *Adv. Mater.*, **21** (5), 593 (2009)

- 2 ) M. Akiyama *et al*, *Appl. Phys. Lett.*, **95**(16), 162107  
(2009)
- 3 ) K.R. Talley *et al*, *Phys. Rev. Materials.*, **2**(6),  
063802 (2018)
- 4 ) M.A. Moram *et al*, *J. Mater. Chem. A.*, **2**, 6042  
(2014)
- 5 ) M. Sumisaka *et al*, *Jpn. J. Appl. Phys.*, **54**, 07HD06  
(2015)
- 6 ) O. Zywizki *et al*, *Surface & Coatings Technology.*,  
**309**, 417 (2017)
- 7 ) 太田怜佳 他、第 71 回応用物理学会春季学術講演  
会、24a-12H-6 (2024)