

### 13. 結果および考察

図13-1は蒸着速度の逆数に対しアルミニウムの窒化率をプロットしたものである。窒化率の測定にはEPMAを使用した。どちらの温度も(380°C, 450°C)5 s/Å (0.2 Å/s)付近で最大値となった。そのため、5 s/Åで化学量論比のAlNが出来ると決めた。450°Cに関しては10 s/Å (0.1 Å/s)では窒化率が低下した。

次にアルミニウムの窒化率の基板温度依存性を調べるために基板温度380 °C, 450 °C, 500 °C 及び 550 °Cで薄膜を合成した。蒸着速度は5 s/Å (0.2 Å/s)、RF 500 Wとした。図13-2が示すように、この温度域において (380 °C ~ 550 °C) アルミニウムの窒化率に大きな差はみられなかった。これより、窒化にはこの範囲において基板温度の寄与はなく、窒素ラジカルは基板上のアルミニウムと全て反応していると考えられる。

ここで、アルミニウムの窒化率 (N/Al) が窒素ラジカルフラックスに依存するとすれば、以下の式が成り立つ。

$$N/Al = F / (A \cdot B \cdot \cos(55^\circ))$$

ここでFはラジカルビームフラックス (radicals/cm<sup>2</sup>・s)、Aはアルミニウムの蒸着速度 (Å/s)、Bは金属Alの単位体積あたりの原子数 (atoms/Å・cm<sup>3</sup>)、cos55°はラジカルビーム源の基板に対する角度補正である。蒸着速度は5 s/Å (0.2 Å/s)のとき、全てのAlとNが反応してN/Al=1となるとすると、上記の式より窒素ラジカルビームフラックスは  $F=2.1 \times 10^{14}$  (radicals/cm<sup>2</sup>・s) となる。

基板温度380 °C、RF 500 Wでアルミニウムの蒸着速度を変化させて薄膜を合成したXRDの結果 (図13-3) をみると、蒸着速度の増加と共に、Al(200)のピークが大きくなってきている。蒸着速度の遅い側 (0.1 Å/s, 0.2 Å/s) では透明な薄膜が合成され、逆に蒸着速度の速い側 (0.5 Å/s~2.0 Å/s) では金属光沢をもった薄膜が合成された。これはラジカルビーム源の強度は一定である

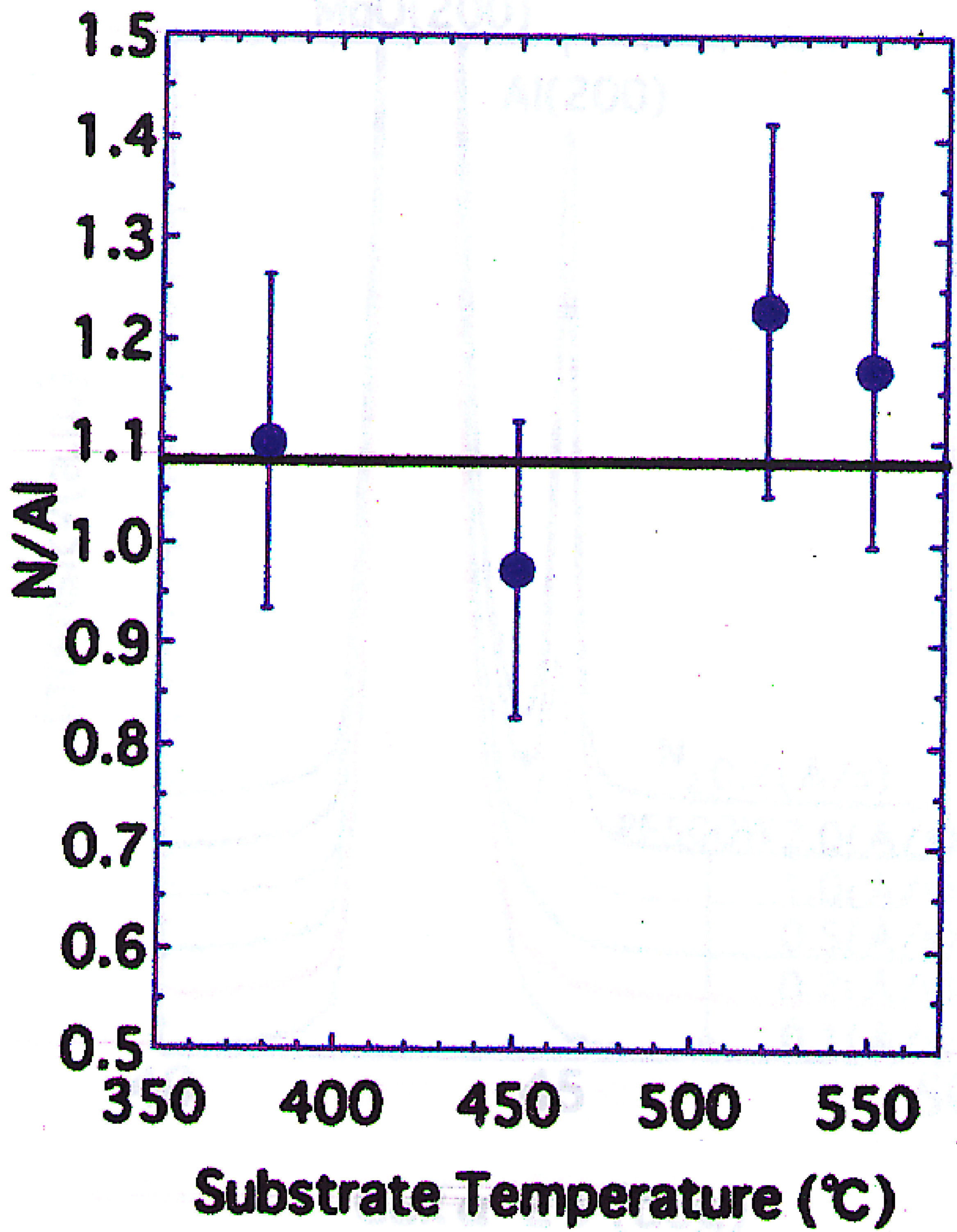


図 13-2 蒸着時間30分、蒸着速度 0.2 Å/s  
基板 MgO(100)、RF 500 W

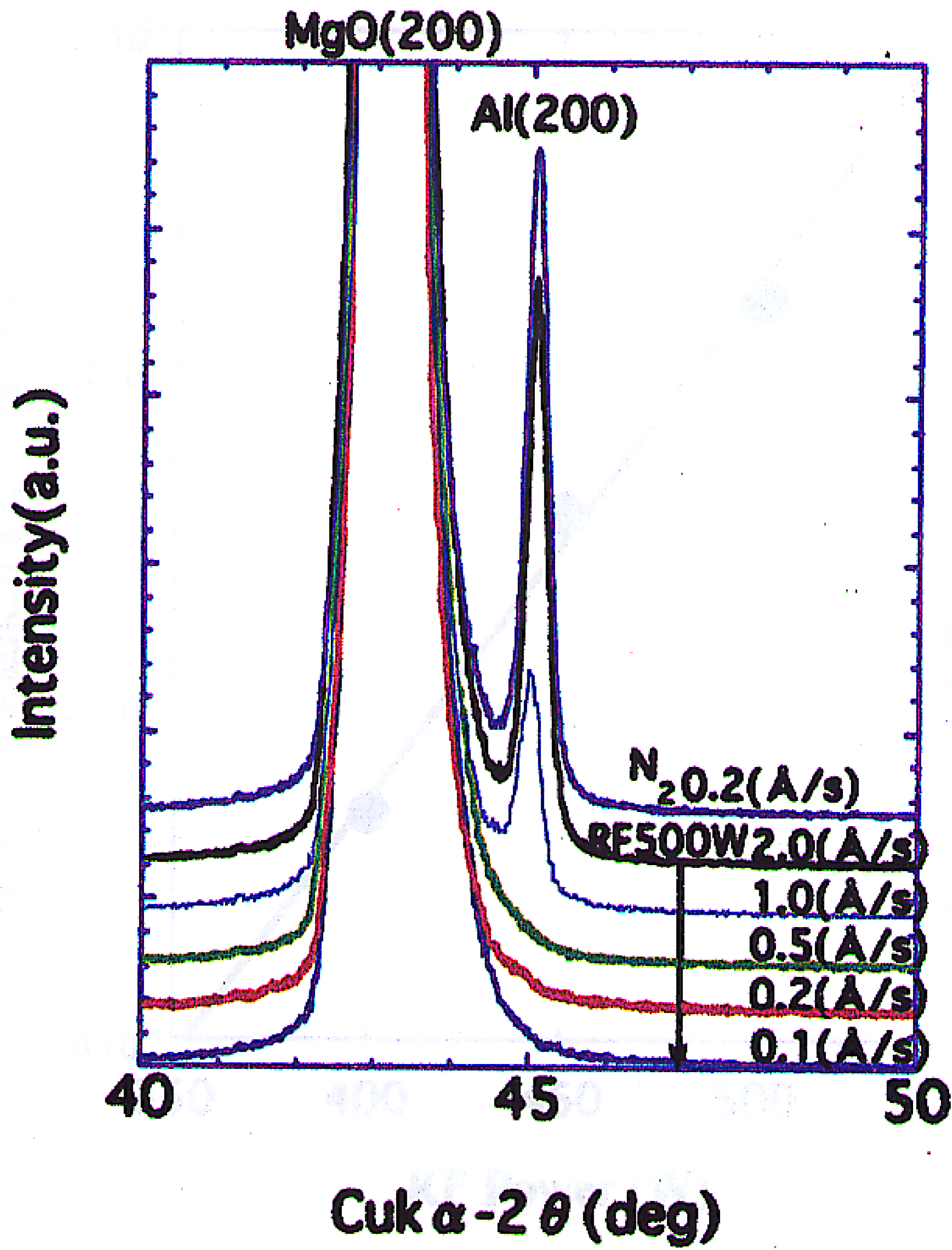


图 13-3 蒸着時間30分、基板温度380℃

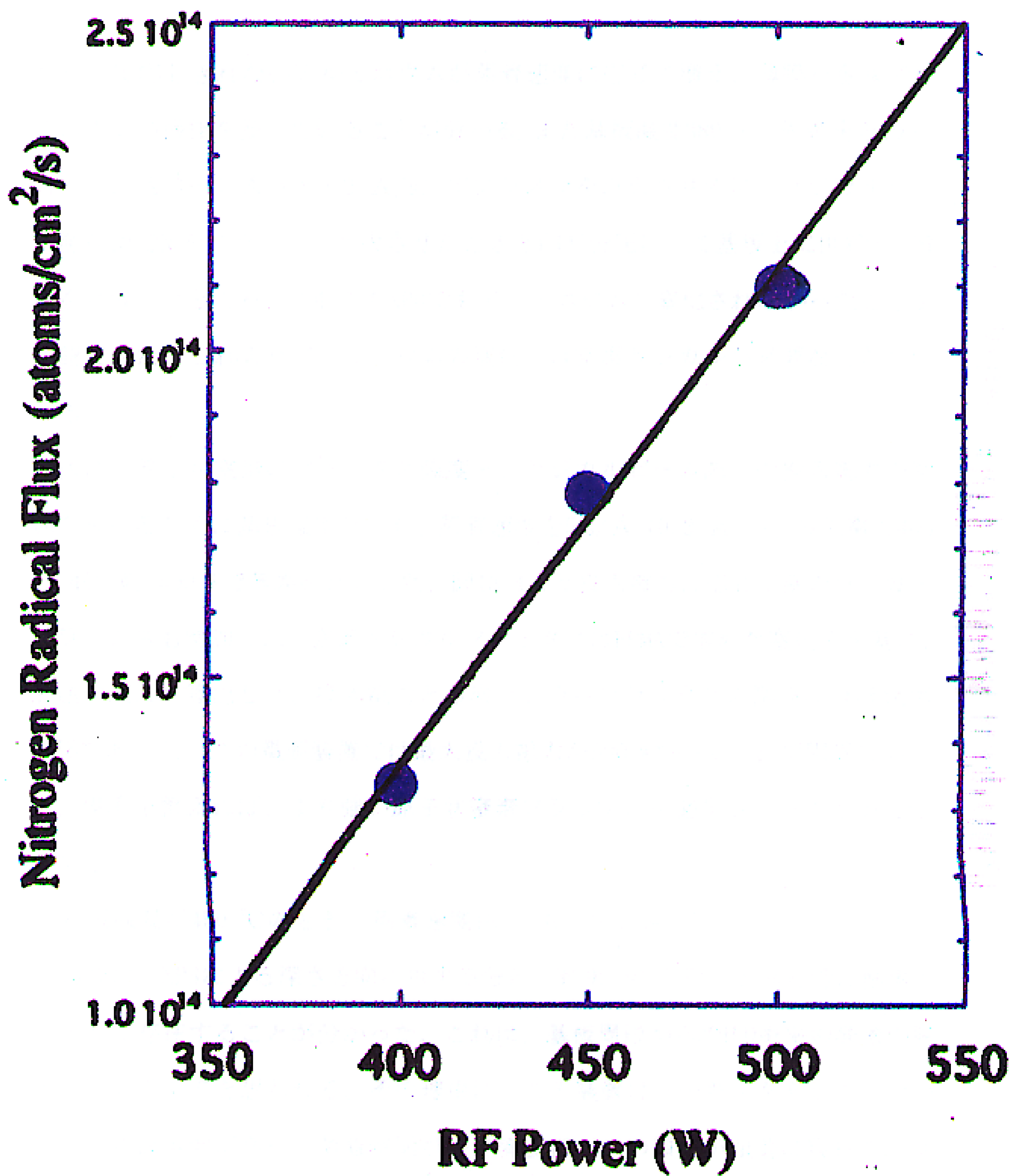


圖 13-4 蒸着時間30分、蒸着速度0.2 Å/s  
基板溫度380°C、基板MgO(100)

ため、反応しきれないアルミニウムが蒸着速度に応じて増え、薄膜が金属アルミニウムの様相を呈していることが分かる。また基板温度380 °C、蒸着速を10 s/Åと5 s/Å (0.1 Å/sと0.2 Å/s) でプラズマを点火させずに、ラジカルビーム源経由でN<sub>2</sub>をプラズマを点火させたときと同じ分圧にして基板上に供給し、薄膜を合成したところ、EPMAでもXRDでもアルミニウムが窒化されなかったことが確認できた。これよりアルミニウムの窒化には窒素ラジカルが必要なことがいえる。

次に、原子状窒素のフラックス強度と、ラジカルビーム源への投入電力の関係を調べるために基板温度380 °C、蒸着速度を5 s/Å (0.2 Å/s)、投入電力400 W、450 W、500 Wで薄膜を合成した。図13-4より投入電力に応じて窒素ラジカルフラックスも増加した。窒素ラジカルフラックスはEPMAで求めた窒化率を基に、前述の式より算出した。投入電力と窒素ラジカルフラックスの関係はほぼ比例関係であった。この電源装置では最大投入電力が500 Wなのでこれで限界であるが、環境を整えれば、より強い原子状窒素フラックスを発生させることが可能である。

基板温度が450 °Cのとき、蒸着速度10 s/Å (0.1 Å/s)、RF 500 Wで合成した薄膜は、XPSによる深さ方向に対する分析の結果(図13-5)、表面近傍に酸素が集中して存在することが分かった。これは、基板周辺からのH<sub>2</sub>O由来の酸素の脱ガスによるものと思われる。その理由に、この装置はベーキングをしていないため、基板温度が高く、蒸着時間が長い実験ほどこの傾向が顕著に現れた。基板温度が500 °C、550 °Cの薄膜は透明な薄膜が合成された。しかし合成されたセラミックスはXPSの測定結果より酸化アルミニウムと窒化アルミニウムの複合物ではないかと思われる。

EPMAによる定性分析の結果、合成した薄膜には窒素、アルミニウムの他に炭

# 深さ方向の元素分析

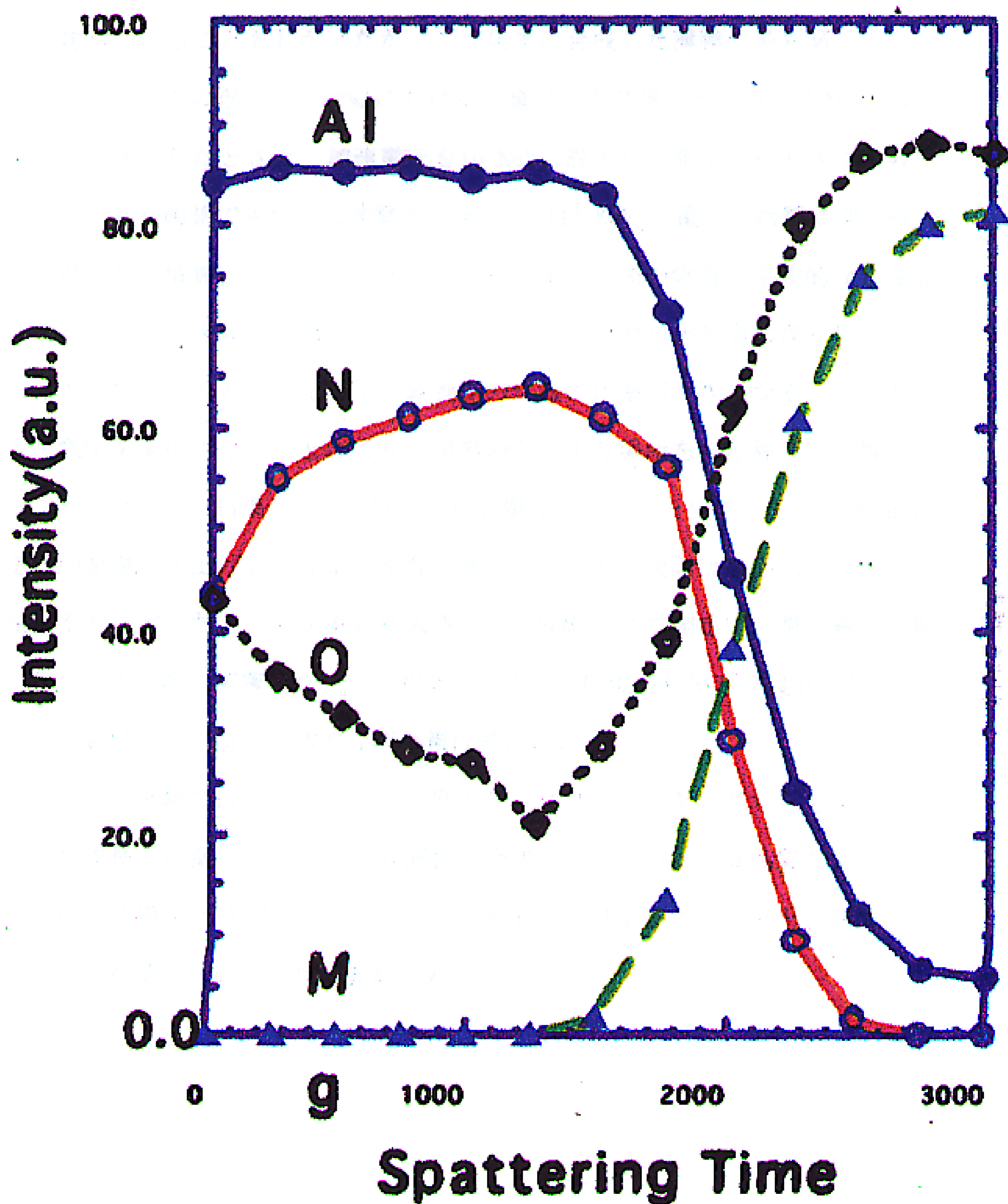


図 13-5 蒸着時間30分、蒸着速度0.1 Å/s  
RF 500 W、基板MgO(100)

素を含んでいることもわかったが、この炭素は合成した薄膜の最外層のみに存在している。この理由は、EPMAにおける定量分析の結果、加速電圧を15 KeVに設定して測定したときと、加速電圧を10 KeVに設定して測定したときで比較することにより確認できた。加速電圧が高いと（15 KeV）、電子は物質に深く侵入し、得られる情報は表面から、侵入した深さまでの間の物質の平均的な定量値となる。一方加速電圧が低いと（10 KeV）、電子はそれほど物質に深く侵入しないため、15 KeVのときに比べて、最表面の情報の比率が大きくなる。そのため加速電圧を変化させることにより、炭素の存在する場所をある程度まで推定することができる。結果として今回は、加速電圧を下げると炭素の割合が増加し、逆に加速電圧を上げると炭素の割合が減少したため、炭素は表面により多く存在すると決定した。この炭素の侵入原因は、EPMA内にて測定中に電子線を照射するが、その際に被覆されている可能性が高い（EPMA分析室真空度 $10^{-6}$  Torr）。これは装置上の問題で具体的な解決策は特にない。

またこの実験では、ウルツァイト型もジンクブレンド型のどちらもエピタキシャル成長した窒化アルミニウム薄膜は合成できなかった。高品質な窒化アルミニウム薄膜を合成するには、基板温度を550 °C以上にすることと、脱ガスによる酸素の混入を防ぐことが重要である。