17p-C5-11

AlN 溶液成長における化学平衡計算を用いた実験条件の決定

Determination of experimental condition using chemical equilibrium calculations in AlN solution growth

名大院工，　°永冶 仁，陳 鳴宇，渡邊 将太，竹内 幸久，
原田 俊太，田川 美穂，宇治原 徹

Nagoya Univ., °Msashi Nagaya, Mingyu Chen, Shota Watanabe, Yukihisa Takeuchi,
Shunta Harada, Miho Tagawa and Toru Ujihara
E-mail: nagaya@sic.numse.nagoya-u.ac.jp

AlN 単結晶は深紫外発光デバイスやパワーデバイスなどへの応用が期待されている。現在、バルク AlN 単結晶の作製には昇華法や HVPE 法などの気相法が用いられているが、さらなる高品質な AlN 単結晶を得るために、より平衡に近い状態で成長できる溶液法の確立が望まれている。我々は、Al の蒸発を抑制でき、高い窒素溶解度が期待できる Fe-Cr-Al 溶媒を用いた AlN 溶液成長に着目した。AlN 溶液成長では、気相中の窒素を溶解させ、基板上を過飽和にすることで AlN を成長させる。しかし、溶媒表面も過飽和となり AlN が析出すると、基板上への成長が阻害される。そのため、溶液中に未飽和と過飽和状態をつくる必要がある。そこで本研究では、化学平衡計算から溶媒表面が未飽和状態、基板上が過飽和状態となる実験条件を決定し、Fe-Cr-Al 溶媒を用いた AlN の溶液成長を行った。

実験条件を決定するためには、溶媒中の窒素濃度（N_{liquid}）および AlN が析出し始める窒素濃度（N_{AlN}）を求める必要がある。そこで、1 atm の窒素ガス、溶媒および AlN のギブス自由エネルギーを求め、化学平衡計算をすることによって、N_{liquid} と N_{AlN} を算出した。Fig 1.に、Fe-15 mol% Cr -3 mol% Al 溶媒中の各温度における N_{liquid} および N_{AlN} の計算結果を示す。1960 K より低い温度では、$N_{liquid} > N_{AlN}$ となり、過飽和であるため AlN が析出する。一方、1960 K より高い温度では、$N_{liquid} < N_{AlN}$ となり、未飽和であるため AlN の析出を抑制できる。この計算結果より、1960 K より高温で未飽和、低温で過飽和状態つくりだせることが分かる。そこで、1 atm の窒素雰囲気中で 5 時間、溶媒表面を 2000 K、坩堝底にあるサファイア（0001）基板上を 1900 K の温度に保持することで、基板上への AlN の成長を試みた。Fig 2.に示す SEM 観察の結果から、サファイア基板上に薄膜の形成が確認された。EDX より窒素のシグナルが薄膜から検出されたことから、基板上に AlN が成長していることが分かった。また、溶媒断面のラマン分布測定の結果、基板付近に AlN の析出が集中していた。以上の結果は、我々の手法で、AlN 溶液成長の実験条件を決定できることを意味する。

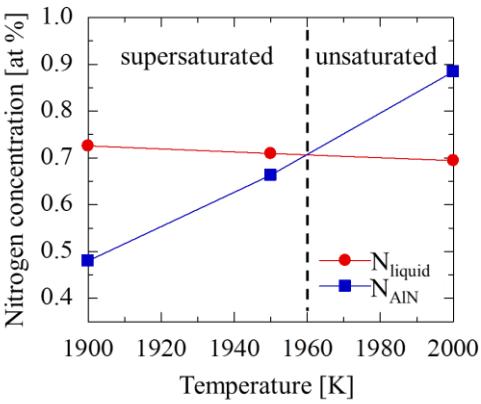

Fig. 1: Temperature dependence of nitorogen concentrations in Fe-15 mol% Cr-3 mol% Al soluvent. N_{liquid} is the concentration in the equilibrium between nitrogen gas and nitrogen in the solution. N_{AlN} is the concentration in the equilibrium between nitrogen in the solution and AlN.

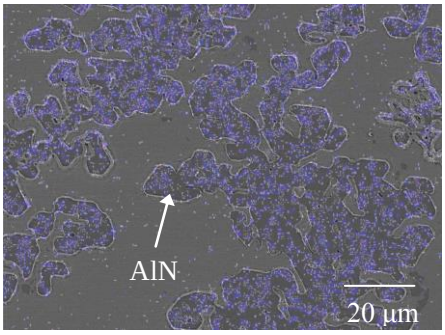

Fig. 2: SEM-EDX mapping image of nitrogen on the surface of the sapphire substrate. Purple points show the signal of nitrogen.

© 2014 年　応用物理学会