

AlN 溶液成長における熱力学計算を用いた成長速度の向上

Improvement of growth rate for AlN solution growth with thermodynamic calculation

名大院工, °渡邊 将太, 永治 仁, 陳 鳴宇, 竹内 幸久, 青柳 健大,

原田 俊太, 田川 美穂, 宇治原 徹

Nagoya Univ., °Shota Watanabe, M. Nagaya, M. Chen, Y. Takeuchi, K. Aoyagi,

S. Harada, M. Tagawa, T. Ujihara

E-mail: watanabe@sic.numse.nagoya-u.ac.jp

【はじめに】AlN 単結晶はパワーデバイスや深紫外発光デバイスとしての応用が期待されている。高品質な AlN バルク単結晶の成長法として、我々は平衡に近い状態で成長が可能な溶液成長法に着目している。これまでに、熱力学計算に基づいて Fe-Cr-Al 合金を溶媒とし、AlN 単結晶成長と基板上以外の多結晶析出の抑制に成功した [1]。しかし、基板上の成長速度は 60 nm/h であり、AlN バルク単結晶成長のためには成長速度を向上させる必要がある。このような成長速度となったのは、溶媒の N 溶解度と AlN 溶解度が低いためと考えられる。本研究では、正則溶体モデルに基づいた熱力学計算から、高い N 溶解度および AlN 溶解度をもつ溶媒および成長条件を検討し、成長速度の向上を試みた。

【熱力学計算】溶液中の N の活量が減少すると、N 溶解度および AlN 溶解度が増加し、Al の活量が減少すると AlN 溶解度が増加する。Cr と Co はそれぞれ N と Al の活量を減少させるため、溶媒元素として選択した。Cr-Co-Al 溶媒と 1 atm の N₂ および AlN が熱力学的に平衡する条件を計算した。Fig. 1 に Fe-15at%Cr-3at%Al 溶媒および Cr-25at%Co-10at%Al 溶媒の 1600-1800°C における N 溶解度 N_{solvent} および AlN 溶解度 N_{AlN} を示す。 $N_{\text{solvent}} > N_{\text{AlN}}$ となる温度範囲では、溶液は AlN に対して未飽和である。Fe-Cr-Al 溶媒と比較して、Cr-Co-Al 溶媒は N 溶解度および AlN 溶解度が高いため、成長速度の向上が期待できる。

【実験方法】坩堝底に C 面サファイア基板を置き、Cr: Co: Al=65: 25: 10 となるように秤量した原料を加えた。Ar 雰囲気中で 1700°C まで昇温し、その後 N₂ を流し 1 時間保持した。試料はラマン散乱測定、X 線回折および走査電子顕微鏡(SEM)により評価した。

【結果と考察】溶液表面には AlN 多結晶が多量に析出していた。基板上の成長層はラマン散乱測定により AlN であることがわかった。XRD の結果より、成長層が c 軸に配向していることがわかった。Fig. 2 (a) に表面 SEM 像を示す。六角形状の表面モフォロジーが観察された。Fig. 2 (b) に断面 SEM 像を示す。成長層厚みは 80-200 μm であり、溶液表面で多結晶の析出が観察されたが成長速度が大幅に向上した。AlN 多結晶の析出に伴って溶液中の Al 濃度が減少すると、溶媒の N 溶解度に対して AlN 溶解度が増加する。 $N_{\text{solvent}} > N_{\text{AlN}}$ となる温度範囲が低温側にシフトするので溶液表面が未飽和となる。このような条件であれば溶液表面の AlN 多結晶が再溶解するので、多結晶が析出したにもかかわらず、基板上に AlN が成長したと考えられる。

[1] 永治仁 ほか, 第 44 回結晶成長国内会議, 07PS08 (2014).

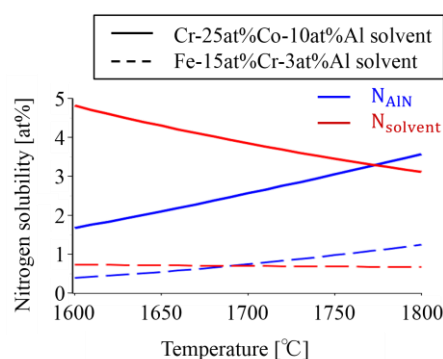


Fig. 1 Calculation result of AlN solubility in Cr-25at%Co-10at%Al and Fe-15at%Cr-3at%Al solvent.

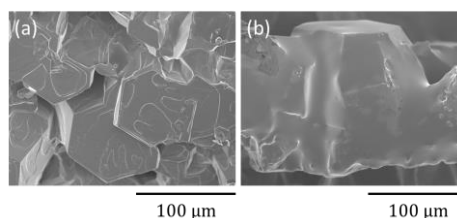


Fig. 2 (a) In-plane and (b) cross-sectional SEM image of AlN.