

R1515

## Mg/Hf 同時ドーピング AlN の置換サイト解析

## Crystallographic site analysis of Mg in Mg/Hf co-doped AlN thin film

小形 曜一郎, 横山 剛, 岩崎 誉志紀, 西原 時弘  
Yoichiro Ogata, Tsuyoshi Yokoyama, Yoshiki Iwazaki, Tokihiro Nishihara

太陽誘電(株)  
TAIYO YUDEN CO., LTD.

Mg/Hf 同時ドーピング窒化アルミニウム(AlN)圧電薄膜中の Mg の結晶サイトを調べるため Mg K 吸収端 XANES を測定した。第一原理計算による吸収スペクトルシミュレーションと比較した結果, Mg は Al サイトに置換されていることが明らかとなった。

Soft X-ray absorption spectroscopy has been applied to the determination of the crystallographic site analysis of Mg in Mg/Hf co-doped aluminum nitride (AlN) thin film. From the comparison between observed Mg K-edge X-ray absorption near edge structure (XANES) and calculated one by first principles calculation, it has been clarified that the doped Mg is partially substituted for Al.

**Keywords:** Piezoelectricity, AlN thin film, XANES, First principles calculation

**背景と研究目的:** ウルツ鉱型結晶構造を持つ窒化アルミニウム(AlN)は圧電性物質であり, 薄膜形状のものは薄膜バルク弾性波共振子として高周波フィルターに応用されている。このフィルター特性を広帯域化させるためには AlN の圧電定数向上が不可欠である。

これまで, スカンジウム Sc をドーピングした AlN の圧電定数が通常の AlN に比べて大幅に向上することが知られていたが[1], 最近 Sc よりも安価な 2 価と 4 価の陽イオン元素を同時ドーピングすると Sc ドーピングと同様に圧電定数が向上することが見出された[2,3]。これらのドーピングはイオン半径やエネルギー計算より Al を部分置換すると予想されているが, 実験的には確認されていない。したがって, 本研究では軟 X 線吸収分光法により 2 価/4 価元素として Mg と Hf を同時ドーピングした AlN 薄膜中の Mg サイト解析を行った。

**実験:** Si 基板上に Mg/Hf 同時ドーピング AlN を PVD 成膜した。ドーピング量を変化させた以下 4 点の試料を作製した。

- 6 at.% (Mg 3 at.% + Hf 3 at.%)
- 10 at.% (Mg 5 at.% + Hf 5 at.%)
- 13 at.% (Mg 6.5 at.% + Hf 6.5 at.%)
- 15 at.% (Mg 7.5 at.% + Hf 7.5 at.%)

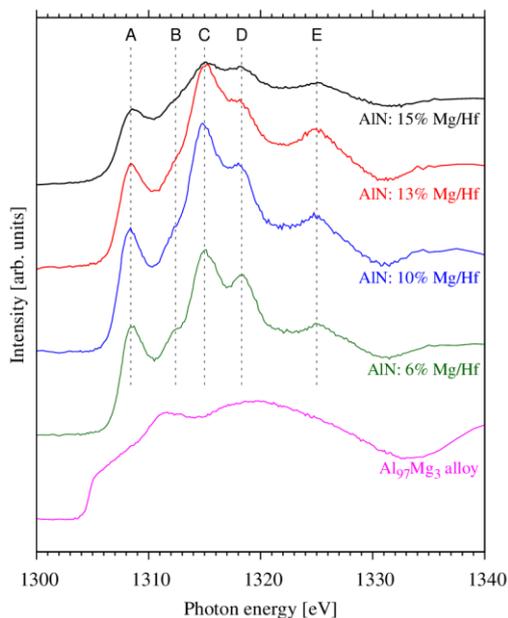
軟 X 線吸収分光測定は立命館大学 SR センター BL-13 にて実施した。分光結晶として KTP(011) を用い, 上記試料の Mg K 吸収端 XANES を蛍光収量法で, Al K 端 XANES を全電子収量法で測定し

た。また参照試料として Al<sub>97</sub>Mg<sub>3</sub> 合金箔および AlN 粉末を測定した。

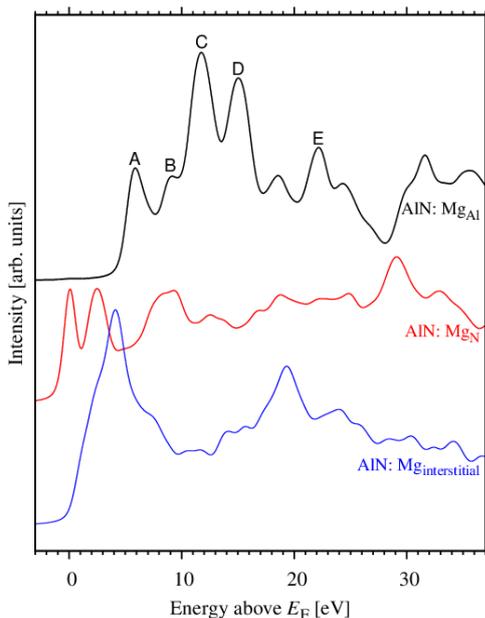
**結果、および、考察:** Mg K 端 XANES の測定結果を Fig. 1 に示す。AlN 薄膜中の Mg はドーピング量にかかわらず A, B, C, D, E で示される特徴的なピークが見られ, Al<sub>97</sub>Mg<sub>3</sub> 合金とは明らかに異なっていた。Mg のサイト解析のため, 第一原理計算コード WIEN2k を用いてスペクトル計算を行い, 実験スペクトルと比較した。Fig. 2 に 3×3×2 スーパーセル中にて Mg の Al サイト置換, N サイト置換, 格子間挿入を仮定したときの計算スペクトルを示す。実験スペクトルのピークは Al サイト置換の計算結果と良い一致を示しており, AlN 中の Mg は Al サイト置換であることが確認された。

Fig. 3 に Al K 端 XANES の測定結果を示す。6%, 10%, 13% ドーピング試料ではピーク G がほとんど見られずピーク I の強度も小さいが, 15% 試料はピーク G, I がはっきり見られ AlN 粉末のスペクトル形状に近づいている。事前の薄膜 X 線回折測定により 15% 試料の結晶配向性が他の試料に比べて低いことがわかっており, これらのスペクトルの差異についても配向性の違いによるものと予想された。確認のため結晶配向を考慮したスペクトル計算を行い, 比較した。Fig. 4 に計算スペクトルを示す。6%, 10%, 13% ドーピング試料の実験スペクトルは偏光 X 線の電場 E と AlN の c 軸が垂直な場合 (c ⊥ E) の計算スペクトルと良い一致が見られる。一方 15% ドーピング試料は c ⊥ E スペクトルに c ∥ E 成分が加わって

無配向に近づいており、スペクトルの差異は配向性低下によるものと解釈できる。



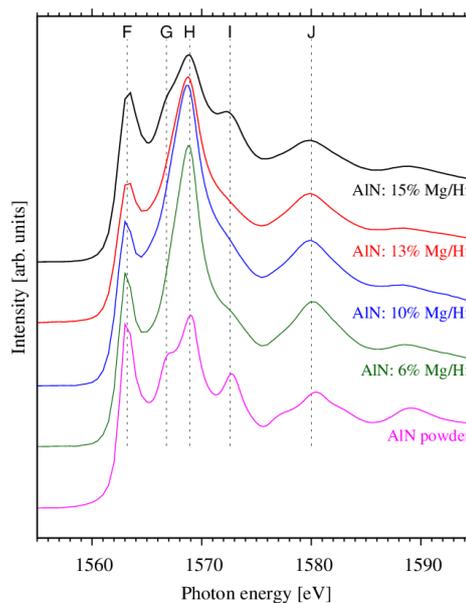
**Fig. 1.** Observed Mg *K*-edge XANES of Mg/Hf co-doped AlN thin films and Al-Mg alloy



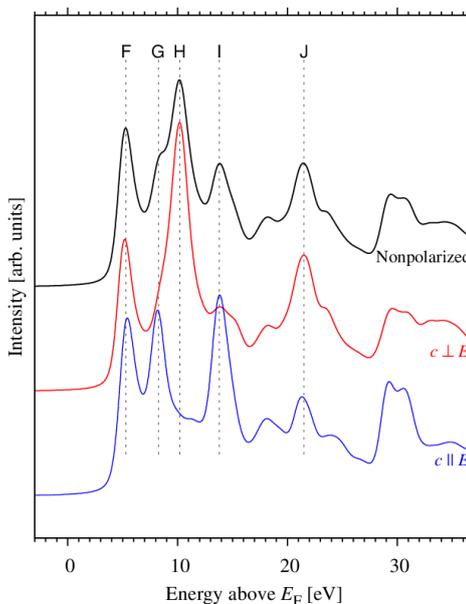
**Fig. 2.** Calculated Mg *K*-edge XANES of Mg-doped AlN.

## 文献

- [1] M. Akiyama, T. Kamohara, K. Kano, A. Teshigahara, Y. Takeuchi, and N. Kawahara, *Adv. Mater.* **21** (2009) 593.
- [2] T. Yokoyama, Y. Iwazaki, Y. Onda, T. Nishihara, Y. Sasajima, and M. Ueda, *IEEE Trans. Ultrason. Ferroelectr. Freq. Control* **61** (2014) 1322.
- [3] Y. Iwazaki, T. Yokoyama, T. Nishihara, and M. Ueda, *Appl. Phys. Express* **8** (2015) 061501.



**Fig. 3.** Observed Al *K*-edge XANES of Mg/Hf co-doped AlN thin films and AlN powder



**Fig. 4.** Calculated Al *K*-edge XANES of AlN.

## 論文・学会等発表(予定)

検討中

## 謝辞

立命館大学 SR センターの光原圭様, 太田俊明先生のご支援に感謝いたします。