

# 次世代量子ビーム技術に向けた 単結晶窒化アルミニウムの3次元マイクロ加工技術の開発

産業技術総合研究所 計量標準総合センター  
主任研究員 澁谷 達則

(2021年度 奨励研究助成 (若手研究者枠) AF-2021234-C2)

キーワード：選択的レーザー化学エッチング，窒化アルミニウム，高レーザー耐性材料

## 1. 研究の目的と背景

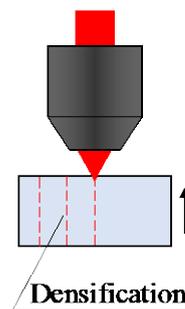
素粒子探索や放射線治療，非破壊 X 線検査などに用いられている加速器技術はその大きさ故に，汎用性が低く，産業的な或いは学術的な利用機会の制限が存在する．加速器の大きさを決めているのは，加速器構造の内部に溜められている電磁波エネルギーの周波数であり，従来技術のギガヘルツ帯の高周波では，数十センチメートルから数十センチメートルほどのサイズを持つことになる．一方で，近年の光技術と微細加工プロセス技術の発展により，マイクロメートルスケールの加速器技術が提案され，原理実証されている<sup>1)</sup>．この技術はレーザー光をベースとしたパワーソースを用いて微細な構造の中で光と電子を相互作用させることで粒子加速を行うものである．しかし，この微細な構造を形成するための微細加工プロセス技術が主に半導体材料への適用を想定したものであり，プロセス全体がシリコンやシリカガラスなどのいくつかの材料と形状に最適化されている．つまり，加速器技術への応用上，他に物性値の優れた材料があったとしても，その材料の加工を行うことは困難であり，その代表的な材料として，単結晶窒化アルミニウムがある．

単結晶窒化アルミニウムは絶縁性(AC 電圧の場合 50 – 68 kV/mm，また DC 電圧の場合 84 – 151 kV/mm)と熱伝導率(285 W/(m K))が高く<sup>2)</sup>，光学的透過性が高いことで様々な分野での応用が期待できる．特に，その光学的透過性は深紫外線領域から遠赤外線領域までと広範囲であり，波長 10  $\mu\text{m}$  帯の光に対しても，光学的侵入深さは 20 mm ほどと応用上魅力的な材料であると言える．しかし，より高性能な特性を持つ単結晶材料はその加工の困難さに由来して，幾何学的な成形構造に制約がある．本質的に脆性材料であるため，強い外力が加わるとマイクロ欠陥や亀裂進展，また，バルク内部には残留応力が形成される．

これらの欠陥，亀裂，残留応力が極めて小さい加工技術を実現するために，本研究では，選択的レーザー化学エッチング法を用いて，単結晶窒化アルミニウムの精密な加工を目指す．これまで，誘電体材料の加工における選択的レーザー化学エッチング法の適用材料としては，石英ガラス，サファイア，フッ化カルシウム，イットリウムアルミニウムガーネット(YAG)があり<sup>3)</sup>，いずれの材料に対してもサブミクロンからミクロンスケールにおける精密な加工を実現してきた．一方で，選択的レーザー化学エッチング加

工には材料の特定の結晶方位，もしくはレーザー照射箇所に対して選択的に加工レートが向上する，という実験的な知見が得られているが，まだまだ実験的及び理論的なアプローチが不足しているため，本研究の対象となる窒化アルミニウムへの選択的レーザー化学エッチング加工の適用可能性は不明であった．参考となったのは，バルク上の窒化アルミニウムのウェットエッチングに関する先行研究であり，水酸化カリウム水溶液を用いることで結晶方位の選択性が向上するという報告がなされている<sup>4,5)</sup>．J. R. Mileham らと D. Zhuang らは，それぞれ独自に窒化アルミニウムに対するウェットエッチングの評価を行われており，これらの先行研究の中で，c 面を表面とする場合のエッチングの際には急速にエッチングレートが高まるが，m 面からの場合にはほぼエッチングされないことが示された．これらの報告例から本研究でも c 面と m 面の試料を用いることで選択的レーザー化学エッチング法の適用性について議論することとした．さらに先行研究から，エッチング溶液として，水酸化カリウムを主成分とする AZ400K developer を用いることとした．図 1 には，選択的レーザー化学エッチング法の概念図を示す．

手順1: レーザー書込



手順2: ウェットエッチング

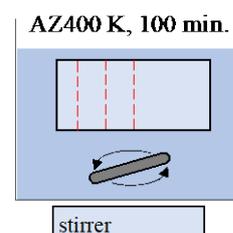


図 1 選択的レーザー化学エッチング法の概念図

## 2. 実験方法

### 2・1 実験概要

本研究は、単結晶窒化アルミニウム(c 面)に対して、レーザー照射とウェットエッチングを複合的に行うことで、幾何学的形状を2段階で変化させ、その形状を光学的手法によって観測し、単結晶窒化アルミニウムの選択的レーザー化学エッチングのプロセスメカニズムを解明するものである。1つ目の工程であるレーザー照射では、Ti: sapphire laser(Coherent 社製 Libra: 最大出力 3 W, 波長 800 nm, パルス幅 70 fs, 繰返し 1 kHz)から出射される光パルスを出力調整するための光学システムを通過させ、最終的には倍率 20 倍の対物レンズ(Mplan Apo NIR 20×)を用いて、サンプル上に集光した。サンプルは、精密 3 軸ステージ上に設置され、レーザー照射箇所一点ごとに照射位置とレーザー出力、走査速度を制御した。この内、レーザー出力の制御範囲は 1 – 20 nJ/pulse, 走査速度の制御範囲は 10 – 300  $\mu\text{m}/\text{sec}$  とした。2つ目の工程であるウェットエッチング前後での形状比較を行うために、レーザー照射直後に顕微鏡観察を行った。次に、2つ目の工程であるウェットエッチ

ングを行い、その手順としてまず AZ400K developer と純水を 1:5 の割合で混合した溶液を作成し、溶液をマグネットスターラー(回転数 90 rpm)で攪拌しながら、ホットプレート(温度 60 °C)上で温度を一定に保ったまま、サンプルを含浸し、100 分間のウェットエッチング工程を施した。その後、エッチング後の顕微鏡観察を行った。これらの一連の形状観測工程では、加工サンプルを最大 150 倍の倍率をもつレーザー走査型顕微鏡(キーエンス社製 VK-X260)を使用した。

### 2・2 実験結果

図 2 には、単結晶窒化アルミニウムの選択的レーザー化学エッチングの(a)レーザー照射後且つエッチング前と(b)レーザー照射後且つエッチング後の比較画像を示した。この画像比較から、ウェットエッチングによる加工レート向上は明らかになった。レーザー照射後且つエッチング前の結果からはレーザー出力や走査速度依存性は見られなかったが、レーザー照射後且つエッチング後の結果からはその依存性が観測される。

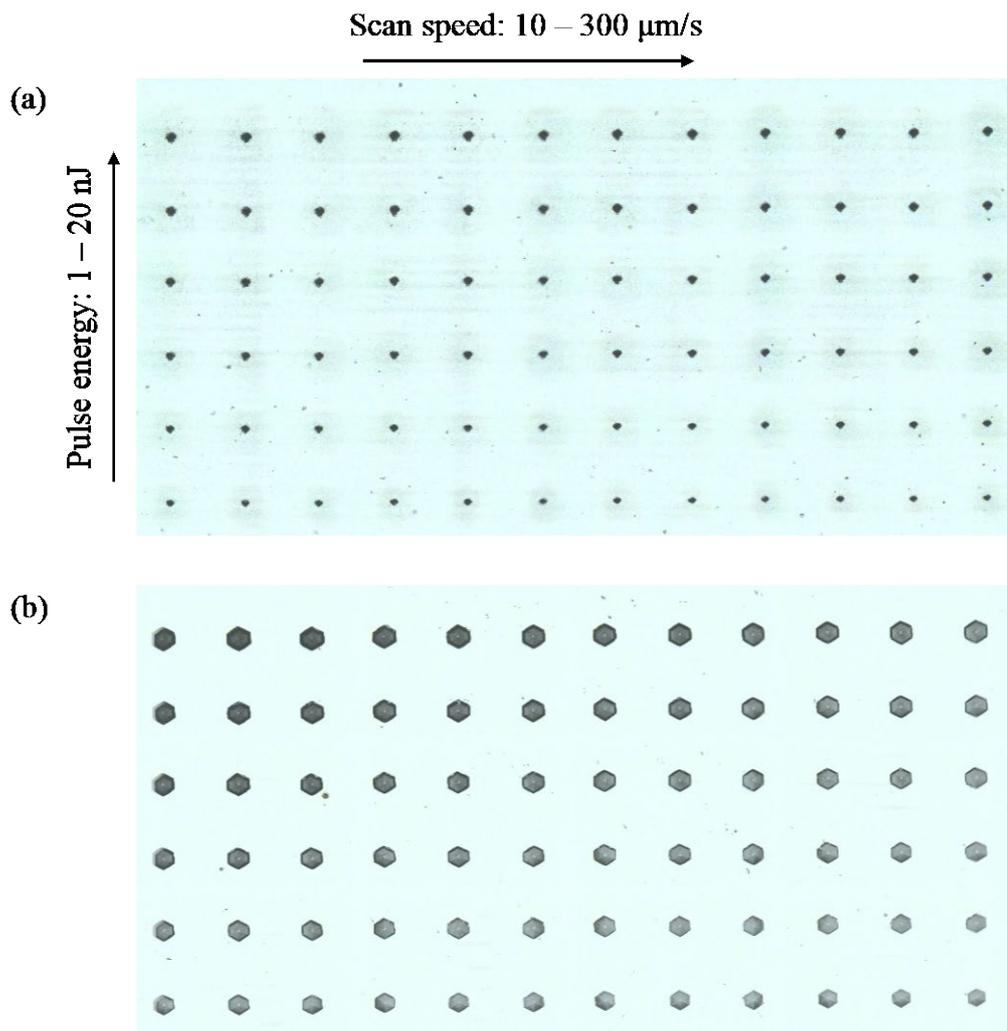


図 2 単結晶窒化アルミニウムの選択的レーザー化学エッチングの(a)レーザー照射後且つエッチング前と(b)レーザー照射後且つエッチング

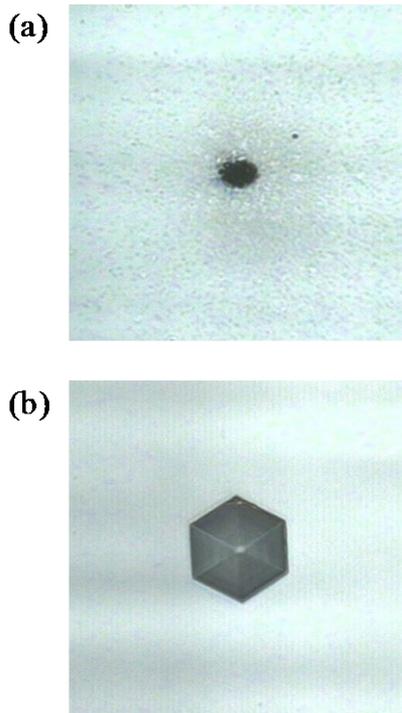


図3 パルスエネルギー3.47 nJ, 走査速度 60  $\mu\text{m/s}$  のレーザー照射条件における単結晶窒化アルミニウムの選択的レーザー化学エッチングの(a)レーザー照射後且つエッチング前と(b) レーザー照射後且つエッチング後

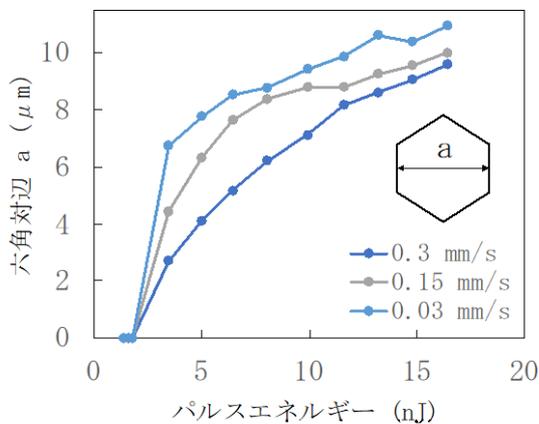


図4 六角寸法（エッチングレート）とレーザー加工パラメータの関係

図3に示したパルスエネルギー3.47 nJ, 走査速度 60  $\mu\text{m/s}$  のレーザー照射条件における単結晶窒化アルミニウムの選択的レーザー化学エッチングの(a)レーザー照射後且つエッチング前と(b) レーザー照射後且つエッチング後の画像結果に着目してみると, 正六角形に近い形状の変化が見られる. つまり, はじめに照射したレーザー照射点が円形に形成されていることを考慮すると, 方位選択性があったと言える. これは, これまで先行研究で報告されてきたシリカガラス, サファイア, フッ化カルシウムでは観

測されなかった現象であり(円形から円形への等方的形状拡大変化), 現在のところ, 窒化アルミニウム特有の現象であると考えられる(円形から正六角形への異方的形状拡大変化).

図4にはエッチングによって成形される六角形状の寸法変化において, その加工パラメータであるレーザー出力と走査速度の依存性を示した. パルスエネルギーが上昇すると, 六角対辺 a の長さが向上していることがわかる. 走査速度が低下すると, 単位時間あたりの堆積エネルギーが上昇するため, 六角対辺 a の長さがより低エネルギーでも上昇しており, 走査速度 0.3 mm/s と 0.15 mm/s, パルスエネルギー10 nJ 以下の実験データを比較すると, 走査速度 0.3 mm/s は 2 倍のパルスエネルギーとなると, 走査速度 0.15 mm/s の結果とほぼ一致している. つまり, 単位時間あたりの堆積エネルギーが一致している照射条件では, エッチング後の幾何学的形状は一致すると言える. 一方で, 15 nJ 以上のより高いパルスエネルギーの領域となると, この因果性はみられず, エッチング速度は低下する方向に進むが, これはレーザー照射による影響領域よりもエッチングされた領域が広範囲になり, レーザー照射効果の影響が小さくなったことに由来すると考えられる. この仮説は, 走査速度 0.03 mm/s の実験結果において六角対辺 a の長さが急激に飽和することからも裏付けられ, 特定の閾値堆積エネルギー以上のレーザー照射条件では, 空間的な影響領域サイズを拡大できなくなると考えられる.

また, レーザー照射後に表面に幾何学的な損傷が観測されなかった照射フルエンス以下の照射点では, エッチングによる六角形の特徴的な形態変化は観測されなかった. これは, エッチング変化の起点が石英ガラスやサファイアなどの結晶状態変化ではなく, レーザーによって形成される物理的な形状変化であることが示唆される. また, 単結晶窒化アルミニウムは c 面と m 面のものを用意し, 双方の結晶軸のサンプルを用いてレーザー照射/ウェットエッチング工程を施したが, m 面に関しては照射方向に対して, c 面とは異なる形状は形成された(エッチングはバルク内部に垂直に形状変化しなかったため, レーザー走査型顕微鏡では観測不能であった). これらの形状変化の傾向はウルツ鉱型結晶(六方晶系)の単位胞に由来すると考えられる.

本研究では, 選択的レーザー化学エッチング法を用いて, 単結晶窒化アルミニウムの精密な加工方法を示した. c 面方向からの加工には, 幾何学的に六角形上の方位選択制限を受けるが, 加工精度はマイクロスケール以下で保証されることがわかった. また, レーザーの出力と走査速度をパラメータとし, その高精度な加工形状の大きさを制御することが可能であった. このレーザーによる形状操作性は単結晶窒化アルミニウムの加工法として, 形状に制限がある一方で, 形成された形状の精度がこれまで報告された単結晶窒化アルミニウムの加工法の中で最高精度を示すものであった. 今後は, 放射線科学への応用だけでなく, レー

ザーダイオードや HEMT などの高出力半導体応用への拡大も期待できる。

### 謝 辞

本研究は公益財団法人天田財団奨励研究助成 AF-2021234-C2 の助成を受けたものです。

### 参考文献

1) R. J. England *et al.*, Rev. Mod. Phys. 86, 1337 (2014).

2) T. Ruemenapp *et al.*, in 11th International Symposium on High-Voltage Engineering (ISH 99) (IEE, 1999).

3) A. Ródenas *et al.*, Nat. Photonics 13(2), 105–119 (2019).

4) J.R. Mileham *et al.*, Appl. Phys. Lett. 67(8), 1119–1121 (1995).

5) D. Zhuang *et al.*, MRS Internet Journal of Nitride Semiconductor Research 7, 4 (2002).