

(12) 按照专利合作条约所公布的国际申请

(19) 世界知识产权组织
国际局

(43) 国际公布日
2022年3月17日 (17.03.2022)



(10) 国际公布号
WO 2022/053038 A1

- (51) 国际专利分类号:
H01L 21/02 (2006.01)
- (21) 国际申请号: PCT/CN2021/117917
- (22) 国际申请日: 2021年9月13日 (13.09.2021)
- (25) 申请语言: 中文
- (26) 公布语言: 中文
- (30) 优先权:
202010954072.5 2020年9月11日 (11.09.2020) CN
- (71) 申请人: 广东广纳芯科技有限公司(GUANGDONG CANCHIP TECHNOLOGY CO., LTD) [CN/CN]; 中国广东省广州市黄埔区粤港澳大湾区纳米创新聚集3期, Guangdong 510555 (CN)。
- (72) 发明人: 李红浪(LI, Honglang); 中国广东省广州市黄埔区粤港澳大湾区纳米创新聚集3期, Guangdong 510555 (CN)。 柯亚兵(KE, Yabing); 中国广东省广州市黄埔区粤港澳大湾区纳米创新聚集3期, Guangdong 510555 (CN)。
- (74) 代理人: 上海专利商标事务所有限公司(SHANGHAI PATENT & TRADEMARK LAW OFFICE, LLC); 中国上海市桂平路435号, Shanghai 200233 (CN)。
- (81) 指定国(除另有指明, 要求每一种可提供的国家保护): AE, AG, AL, AM, AO, AT, AU, AZ, BA, BB, BG, BH, BN, BR, BW, BY, BZ, CA, CH, CL, CN, CO, CR, CU, CZ, DE, DJ, DK, DM, DO, DZ, EC, EE, EG, ES, FI, GB, GD, GE, GH, GM, GT, HN, HR, HU, ID, IL, IN, IR, IS, IT, JO, JP, KE, KG, KH, KN, KP, KR, KW, KZ, LA, LC, LK,

(54) Title: METHOD FOR GROWING ALN SINGLE CRYSTAL FILM AND SURFACE ACOUSTIC WAVE RESONATOR HAVING FILM

(54) 发明名称: AlN单晶薄膜生长方法及具有该薄膜的声表面波谐振器

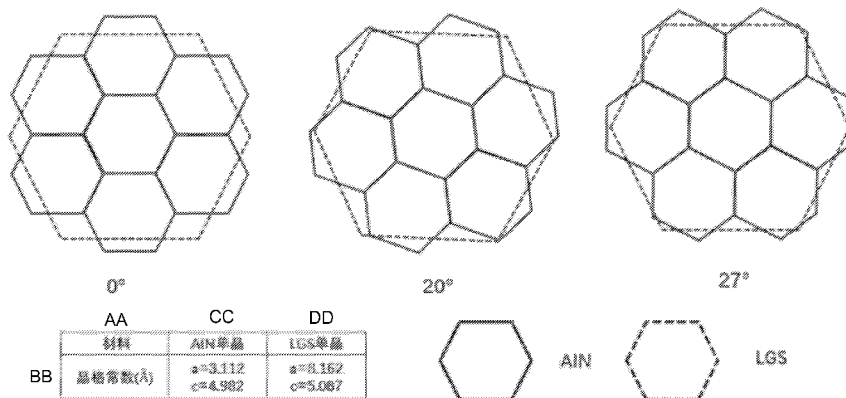


图 6

AA Material
 BB Lattice constant
 CC AlN single crystal
 DD LGS single crystal

(57) Abstract: A method for growing an AlN single crystal film. The AlN single crystal film is grown on a lanthanum gallium silicate single crystal, and the orientation of the lanthanum gallium silicate single crystal is deviated from the [002] crystal orientation of the AlN single crystal film within an angle range of 0 ° to 27 °, thereby improving the quality of the deposited AlN single crystal film, increasing the full width at half maximum of a single crystal diffraction peak and the uniformity of the film, and facilitating the improvement on the performance of a device.



WO 2022/053038 A1

LR, LS, LU, LY, MA, MD, ME, MG, MK, MN, MW, MX,
MY, MZ, NA, NG, NI, NO, NZ, OM, PA, PE, PG, PH, PL,
PT, QA, RO, RS, RU, RW, SA, SC, SD, SE, SG, SK, SL,
ST, SV, SY, TH, TJ, TM, TN, TR, TT, TZ, UA, UG, US,
UZ, VC, VN, WS, ZA, ZM, ZW。

(84) 指定国(除另有指明, 要求每一种可提供的地区保护): ARIPO (BW, GH, GM, KE, LR, LS, MW, MZ, NA, RW, SD, SL, ST, SZ, TZ, UG, ZM, ZW), 欧亚 (AM, AZ, BY, KG, KZ, RU, TJ, TM), 欧洲 (AL, AT, BE, BG, CH, CY, CZ, DE, DK, EE, ES, FI, FR, GB, GR, HR, HU, IE, IS, IT, LT, LU, LV, MC, MK, MT, NL, NO, PL, PT, RO, RS, SE, SI, SK, SM, TR), OAPI (BF, BJ, CF, CG, CI, CM, GA, GN, GQ, GW, KM, ML, MR, NE, SN, TD, TG)。

根据细则4.17的声明:

- 关于申请人有权要求在先申请的优先权(细则4.17(iii))

本国际公布:

- 包括国际检索报告(条约第21条(3))。

(57) 摘要: 一种AlN单晶薄膜的生长方法, 在硅酸镓镧类单晶上生长AlN单晶薄膜, 所述硅酸镓镧类单晶的取向相对于AlN单晶薄膜的[002]晶向的偏差角度在0°至27°范围内, 由此提高沉积的AlN单晶薄膜的质量, 提高单晶衍射峰的半高宽和薄膜的均匀一致性, 有利于提高器件的性能。

AlN单晶薄膜生长方法及具有该薄膜的声表面波谐振器

5 技术领域

本发明涉及一种AlN单晶薄膜的生长方法以及具有用该方法制备出的AlN单晶薄膜的声表面波谐振器，更具体地，涉及一种在择优取向的硅酸镓镧（LGS）类单晶上沉积出高质量AlN单晶薄膜的AlN单晶薄膜生长方法以及具有该AlN单晶薄膜的声表面波谐振器。

10

背景技术

随着移动通信的飞速发展以及对高速传输的要求，移动通信向sub-6G及毫米波等更高频率发展，传统的单层晶体结构的声表面波（SAW）滤波器已经不能在高频段使用，提出了一种具有更高声速的多层薄膜结构的高频滤波器，其中高声速低损耗层状纳米薄膜基底材料的研究是其核心关键技术。其中氮化铝（AlN）材料具有高声波波速、高热导率、低介质损耗、优异的温度稳定性、可与CMOS工艺兼容等优点，成为制备高频、高功率及高集成化滤波器件的理想材料。例如在非专利文献1中介绍了氮化铝薄膜的制备方法，以及将氮化铝单晶薄膜作为压电薄膜应用在声表面波谐振器上的情况。氮化铝薄膜材料作为高频射频器件的重要组成，其质量和性能决定着器件的性能优劣，氮化铝单晶薄膜的质量控制对于高频射频器件的应用仍然充满挑战。

参照图1可知，AlN是由Al和N原子形成的纤锌矿结构，并且是六方对称的晶体结构，其晶格常数 $a=0.311\text{nm}$ ， $c=0.498\text{nm}$ 。AlN是以Al原子为中心和周围四个N原子形成一个非理想的正四面体，其中六个N原子和六个Al原子分别构成六边形。因为在各个取向上会具有不同的极性和化学性质，因此如何选择晶体的生长取向来提高制备出的AlN单晶薄膜的质量是一个重要的研究课题。AlN单晶薄膜的理想制备方法是通过均质外延来生长，但由于尚未有足够的晶格匹配氮化物衬底用于均质外延，因此不可避免地在异

质衬底上异质外延生长AlN，例如非专利文献2中提出了在蓝宝石、碳化硅（SiC）衬底上异质外延生长氮化铝，并且由于其低成本，良好的导热性和导电性以及AlN的潜在集成而更多地在Si上生长。然而，氮化铝与下方衬底之间的大晶格失配和热膨胀系数不兼容会导致高密度的螺旋位错甚至破裂，这时氮化铝器件的寿命、可靠性和合格率受到严重威胁。为了解决上述问题，使用缓冲层或中间层，例如氮化镓（GaN）、氮化硅（Si_xN_y）、低温温度氮化铝、AlN/GaN超晶格结构和渐变Al_xGa_{1-x}N等，在氮化铝外延层的晶体质量方面已显示出显著改善。尽管在涉及使用缓冲层的技术上取得了突破，但生长的氮化铝外延层的缺陷和裂纹却相当大，因此，高质量和无裂纹的氮化铝外延层的生长仍然是一个艰巨的挑战。

现有技术文献

非专利文献1：C. Fei, X. Liu, B. Zhu, D. Li, X. Yang, Y. Yang, Q. Zhou于2018年9月发表在《Nano Energy》第51卷上的《AlN piezoelectric thin films for energy harvesting and acoustic devices》（用于能量收集和声学器件的AlN压电薄膜）

非专利文献2：Rosenberger、Leland W于2007年在韦恩州立大学发表的博士论文《Modification and characterization of aluminum nitride surfaces for an acoustic wave biosensor》（声波生物传感器用氮化铝表面的改性与表征）

发明内容

发明所要解决的技术问题

本发明是鉴于目前异质外延生长AlN单晶薄膜的质量难控问题而完成的，本发明的目的在于提出一种AlN单晶薄膜生长的方法以及具有该AlN单晶薄膜的声表面波谐振器，通过使择优取向的LGS类单晶与AlN单晶薄膜具有合适的晶格匹配性和热膨胀系数匹配性，从而能显著提高沉积的AlN单晶薄膜的质量。

解决技术问题的技术方案

为了实现本发明的目的，本发明提供一种单晶薄膜生长的方法，包括：在硅酸镓镧类单晶上生长AlN单晶薄膜，所述硅酸镓镧类单晶的取向相对于AlN单晶薄膜的[002]晶向的偏差角度在0°至27°范围内。

5 进一步地，所述硅酸镓镧类单晶的取向与AlN单晶薄膜的[002]晶向的偏差角度为20°。

进一步地，所述硅酸镓镧类单晶选自LGS ($\text{La}_3\text{Ga}_5\text{SiO}_{14}$)、CASS ($\text{Ca}_3\text{SbAl}_3\text{SiO}_{14}$)、CNAS ($\text{Ca}_3\text{NbAl}_3\text{SiO}_{14}$)、CTAS ($\text{Ca}_3\text{TaAl}_3\text{Si}_2\text{O}_{14}$)、CNAGS ($\text{Ca}_3\text{Nb}(\text{Ga}_{1-x}\text{Al}_x)_3\text{Si}_2\text{O}_{14}$)中的任一种。

10 进一步地，所述硅酸镓镧类单晶中掺杂有Al、Ta、Nb中的任一种离子。

进一步地，所述AlN单晶薄膜采用MOCVD或MBE方法制备得到。

进一步地，所述AlN单晶薄膜中掺杂有Sc或Ti。

进一步地，使用所述AlN单晶薄膜的生长方法来制备AlN多晶薄膜。

15 进一步地，使用所述AlN单晶薄膜的生长方法来制备Sc或Ti掺杂AlN多晶薄膜。

本发明还提供一种声表面波谐振器，该声表面波谐振器使用以上述方法生长得到的AlN单晶薄膜来作为压电层。

发明效果

20 本发明通过在硅酸镓镧类单晶上生长AlN单晶薄膜，并且使所述硅酸镓镧类单晶的取向相对于AlN单晶薄膜的[002]晶向的偏差角度在0°至27°范围内，从而能使择优取向的LGS类单晶与AlN单晶薄膜具有合适的晶格匹配性和热膨胀系数匹配性，显著提高沉积的AlN单晶薄膜的质量，提高单晶衍射峰的半高宽和薄膜的均匀一致性，有利于提高器件的性能。

25 通过使用上述任一种方法生长得到的AlN单晶薄膜作为声表面波谐振器压电层，从而能显著提高该声表面波谐振器的AlN单晶薄膜的质量，提高单晶衍射峰的半高宽和薄膜的均匀一致性，有利于提高器件例如高频滤波器等的性能。

附图说明

图1是AlN晶体的晶格结构图。

图2是具有AlN晶体薄膜的声表面波谐振器的结构示意图。

图3是采用MOCVD方法来制备AlN单晶薄膜的流程图。

- 5 图4择优取向的LGS上制备的AlN单晶薄膜[002]衍射峰的摇摆曲线，其中，半峰全宽（FWHM）为69 arcsec。

图5是采用射频（RF）等离子体辅助分子束外延技术来制备掺 $\text{Sc}_{0.1}\text{AlN}$ 单晶薄膜的流程图。

- 10 图6是择优取向的硅酸镓镧（LGS）类单晶与AlN单晶的晶格匹配示意图和AlN单晶的晶格结构示意图，其中， 0° 表示LGS的[002]方向与AlN的[002]方向晶格匹配； 20° 表示LGS的[002]方向偏 20° 与AlN的[002]方向晶格匹配； 27° 表示LGS的[002]方向偏 27° 与AlN的[002]方向晶格匹配。

具体实施方式

- 15 以下参照附图对本发明提高AlN单晶薄膜生长质量的方法进行详细说明，下面通过实施例，并结合附图，对本发明的技术方案作进一步具体的说明。在说明书中，相同或相似的附图标号指示相同或相似的部件。下述参照附图对本发明实施方式的说明旨在对本发明的总体发明构思进行解释，而不应当理解为对本发明的一种限制。

- 20 下面对本发明的实施方式进行说明。在下述附图的记载中，对于相同或类似的部分标注相同或类似的标号。其中，应当注意的是附图仅仅是示意图，厚度与平面尺寸间的关系、各层的厚度的比率等与实际的情况是不同的。因此，对于具体的厚度或尺寸，应该参考下述说明来进行判断。在本发明的描述中，需要理解的是，术语“上”、“下”、“前”、“后”、“左”、“右”等指示的方位或位置关系为基于附图所示的方位或位置关系，仅是为了
25 便于描述本发明和简化描述，而不是指示或暗示所指的装置必须具有特定的方位、以特定的方位构造和操作，因此不能理解为对本发明的限制。

在本发明的描述中，一个实施例可能配有多张附图，同一实施例中的同一部件的附图标记不一定在每一张附图中均标出；但是本领域技术人员

应当理解，在对实施例中的某一张或多张附图进行描述的时候，可以结合该实施例中的其他附图加以理解：本领域技术人员应当理解，在未指明文字具体对应的是哪一张附图时，可以结合该实施例中的所有附图加以理解。

5 [声表面波谐振器的基本结构]

参照图2所示，本发明的声表面波谐振器是具有AlN单晶薄膜的声表面波谐振器。该声表面波谐振器采用压电薄膜型结构，包括：衬底3；在该衬底3上生长出的作为压电层的AlN单晶薄膜1；以及设置在该AlN单晶薄膜1上方的叉指电极2。

10 其中，所述衬底3为硬质衬底，通常采用与AlN单晶晶格匹配度较高的蓝宝石、碳化硅等晶体中的任意一种制造，用来传播信号。

作为压电层的AlN单晶薄膜1采用本发明的如下方法制备得到。

[AlN单晶薄膜的制备]

[衬底的选择]

15 经发明人研究发现，硅酸镓镧（LGS）类单晶与AlN单晶在热膨胀系数和晶格常数上呈现出优异的匹配性。具体如下表所示。

附表1：

各类晶体		热膨胀系数 CTE / 10 ⁻⁶ K ⁻¹	CTE失配性 (%)
LGS 类 α ₁₁	LGS	5.15	0.97%
	LGT	5.5	-5.45%
	LGN	6.10	-14.75%
	STGS	5.6	-7.14%
	CNGS	5.36	-2.99%
	CTGS	7.10	-26.76%
蓝宝石 Al ₂ O ₃ α _s		7.5	-30.67%
硅 Si α _s		3.77	37.93%
AlN薄膜 α _s 热膨胀系数 CTE = 5.20 × 10 ⁻⁶ K ⁻¹			

表1示出了硅酸镓镧（LGS）类单晶与AlN单晶的热膨胀系数失配性。根据该表1可知，与现有技术中常用的蓝宝石、硅相比，硅酸镓镧类单晶与AlN单晶的热膨胀失配性大幅减小，尤其是其中的LGS（ $\text{La}_3\text{Ga}_5\text{SiO}_{14}$ ）、CNGS（ $\text{Ca}_3\text{NbGa}_3\text{Si}_2\text{O}_{14}$ ）、LGT（ $\text{La}_3\text{Ta}_{0.5}\text{Ga}_{5.5}\text{O}_{14}$ ）等，在热膨胀系数上呈现出与AlN薄膜的极佳匹配。

附表2:

LGS类晶体	晶格常数 a (Å)	与AlN单晶 (002) 面晶格失配性 (%)
LGS	8.162	6.60%
LGT	8.234	7.42%
LGN	8.231	7.39%
CASS	8.0142	4.88%
CGSGA	8.1001	5.89%
CNAS	8.0071	4.80%
CNGS	8.0931	5.81%
CTAS	8.0261	5.02%
CTGS	8.1082	5.99%
CNAGS	8.04	5.19%
CTAGS	8.101	5.90%
AlN单晶晶格常数 a=3.112Å		

表2示出了硅酸镓镧（LGS）类单晶薄膜与AlN单晶薄膜[002]方向的晶格常数失配性。

蓝宝石的晶格常数为 $a=4.758\text{Å}$ ，与AlN单晶（002）面晶格失配性=58.29%。

Si的晶格常数为 $a=5.4305\text{Å}$ ，与AlN单晶（002）面晶格失配性=74.50%。

根据该表2可知，硅酸镓镧类晶体与AlN单晶薄膜的晶格失配性要比蓝宝石和Si小，其中CNAS的晶格常数失配性最小，即CNAS晶体与AlN单晶薄膜的晶格常数最匹配。

因此，本发明人选取硅酸镓镧类晶体，例如LGS（ $\text{La}_3\text{Ga}_5\text{SiO}_{14}$ ）、CASS（ $\text{Ca}_3\text{SbAl}_3\text{SiO}_{14}$ ）、CNAS（ $\text{Ca}_3\text{NbAl}_3\text{SiO}_{14}$ ）、CTAS（ $\text{Ca}_3\text{TaAl}_3\text{Si}_2\text{O}_{14}$ ）、CNAGS

($\text{Ca}_3\text{Nb}(\text{Ga}_{1-x}\text{Al}_x)_3\text{Si}_2\text{O}_{14}$) 作为衬底来制备出质量较好的AlN单晶薄膜。

[制备方法一]

参照图3所示的采用MOCVD方法来制备AlN单晶薄膜的流程图。

- 5 在步骤S11中，如上所述地选择LGS单晶衬底，参照表1、表2可知，该LGS单晶的热膨胀系数失配性是0.97%，与AlN单晶（002）面晶格失配性是6.60%。接着，对LGS单晶衬底进行清洗并吹干。这里的清洗和吹干都可以使用本领域常用的清洗和吹干方法，例如依次通过去离子水、丙酮溶液、刻蚀液等有机容易进行超声清洗，以去除附着于衬底表面的杂质，然后在
- 10 N_2 （氮气）气氛中将LGS单晶衬底吹干。其中，氮气也可以替换成氩气等其他种类的惰性气体。

- 在步骤S12中，对清洗并吹干后的衬底进行高温退火的预处理。将该LGS单晶衬底放入反应腔室内例如高真空生长室内，升温至1150°C。使用TMA（三甲基铝）和高纯 NH_3 作为反应源，在 NH_3 流量为0.5 SLM（0°C，1 atm）升
- 15 每分钟）， H_2 流量为5 SLM，TMA为350 sccm（标准毫升每分钟）的条件下，将 NH_3 、 H_2 、以及TMA通入反应腔室内，对LGS单晶衬底进行高温退火预处理，经过一定的退火时间后，用氮气吹扫去除反应残余物和气态副产物。

- 退火预处理结束后，在步骤S13中，使反应腔室内的温度降温至950°C，在 NH_3 流量为0.5 SLM， H_2 流量为5 SLM，TMA为350 sccm条件下，将 NH_3 、 H_2 、
- 20 以及TMA通入反应腔室内，生长低温层AlN作为缓冲层。

形成缓冲层之后，在步骤S14中，在使反应腔室内的温度升温至1200°C，使 NH_3 流量为0.5 SLM，使 H_2 流量为5 SLM，使TMA（三甲基铝）为300 sccm的条件下：将 NH_3 、 H_2 、以及TMA通入反应腔室内，在LGS上制备出厚度为1nm~40nm的AlN单晶薄膜。

- 25 在步骤S13中，也可以改变 NH_3 的流量、 H_2 的流量、TMA的流量，来生长低温层AlN作为缓冲层，例如，

- 1) NH_3 流量为0.5 SLM， H_2 流量为10 SLM，TMA为80 sccm；
- 2) NH_3 流量为0.7 SLM， H_2 流量为10 SLM，TMA为80 sccm；
- 3) NH_3 流量为1.7 SLM， H_2 流量为10 SLM，TMA为80 sccm。

经发明人对上述条件下制备出的AlN单晶薄膜进行分析比较，发现在NH₃流量为0.5 SLM，H₂流量为5 SLM，TMA为350 sccm的条件下制备出的AlN单晶薄膜的结晶质量、沉积速率、绝缘性能、c轴择优取向会达到最佳。

在冷却至室温后，取出样品，可以看到在硅酸镓镧单晶衬底上生长出了透明薄膜，其表面光滑，经XRD（X射线衍射）测试，确认其为AlN单晶薄膜，如图4所示，在对应于AlN单晶[002]的晶向上呈现出尖锐的衍射峰，其半峰全宽（FWHM）为69 arcsec。

因此，通过选择合适的硅酸镓镧类单晶薄膜作为衬底来制备出的AlN薄膜具有较高质量。通过优化沉积工艺，能改变AlN薄膜的性能和提高后续声表面波谐振器的性能。在制备过程中的退火处理会影响材料的晶体质量和压电响应，通过该退火处理能提高AlN单晶薄膜的结晶质量，使该AlN单晶薄膜具有良好的取向。通过控制退火温度也能提高AlN单晶薄膜的压电响应。

由于在LGS单晶薄膜与AlN单晶薄膜之间能实现晶格匹配和热膨胀系数兼容，不会导致高密度的螺旋位错甚至破裂的情况发生。此外，通过利用AlN籽晶层来生长AlN单晶薄膜，能进一步增强AlN单晶薄膜的半宽高值，能提高AlN单晶薄膜的质量。通常采用薄的AlN籽晶层来提高薄膜的结晶度。此外，选择合适的衬底材料种类对沉积AlN单晶薄膜的结晶度有显著影响，使衬底的表面粗糙度变低有利于减少缺陷，织构良好的LGS类衬底金属膜能诱导AlN沿[002]方向晶化。

[制备方法二]

以上举例说明了利用MOCVD在LGS单晶衬底上生长AlN单晶薄膜的情况，但本发明也可以利用分子束外延（MBE）来制备AlN单晶薄膜。分子束外延（MBE）是一种超高真空制备薄膜的技术，与一般的真空蒸发相比，MBE的环境真空压强更低，并且能精确控制衬底材料的加热温度，因此用MBE方法生长AlN单晶薄膜，可以期待AlN单晶薄膜纯度变高，降低薄膜与衬底之间因热膨胀引起的晶格失配效应，并能在原子尺度上控制AlN单晶薄膜的掺杂。

参照图5所示的采用射频（RF）等离子体辅助分子束外延技术来制备掺Sc_{0.1}AlN单晶薄膜的流程图。

首先，在步骤S21中，根据表1所示的热膨胀系数失配性和表2所示的晶格失配性选择出厚度为500 μm的4英寸[002]方向CNAGS单晶衬底，并与图3 5 的步骤S11同样地对该衬底进行清洗和吹干，以除去衬底表面的污染物。

然后，在步骤S22中，对CNAGS单晶衬底进行掺杂，可以掺杂Al、Ta、Nb中的任一种离子，通过掺杂Al、Ta、Nb等各种离子能对CNAGS单晶衬底进行晶格常数和热膨胀系数等物性调控。

接着在步骤S23中，准备Sc-Al靶材，在RF（射频）功率为400W，N₂气流为 10 2.0sccm，CNAGS衬底温度为650° C条件下，将N₂通入反应腔室内，生长低温初始AlN成核层，并在低温初始AlN成核层结束生长后，用氮气吹扫去除反应残余物和气态副产物。

在RF（射频）功率为400W时，生长出的AlN单晶薄膜的结晶质量最佳、表面粗糙度最小和c轴择优取向性最佳。

15 CNAGS单晶衬底的温度在650° C时，生长出的AlN单晶薄膜能获得最佳c轴择优取向，AlN单晶薄膜的表面质量最佳，并且粗糙度达到最小。

在步骤S24中，在使RF功率为450W，使N₂气流为2.0sccm，使Al/N比为1:1，使衬底温度为820° C的条件下，将N₂通入反应腔室内并生长AlN单晶薄膜。

20 由此，同样在CNAGS单晶衬底上获得透明薄膜，即为单晶AlN薄膜。可以看到该AlN单晶薄膜表面光滑。而且，通过Sc掺杂，使AlN单晶薄膜的耦合系数从6.16%（非掺杂AlN）提高到12%，提高了约100%。压电系数从5.5pc/N提高到27.6pc/N，提高了约400-500%。经发明人研究发现，Sc掺杂的AlN单晶薄膜具有良好的化学稳定性和热稳定性、较小的介电常数和较高的纵波速度，可用于高频应用。

25 除了上述方法以外，还可以采用例如脉冲直流溅射、脉冲激光沉积（PLD）、和氢化物气相沉积（HVPE）等方法在硅酸镓镧类单晶薄膜上生长AlN单晶薄膜。这些方法都促进了AlN晶体薄膜的择优方向生长。不同沉积工艺制备的AlN单晶薄膜的生长机理不同，从而导致AlN单晶薄膜的结构也不同。作为优选，在其中选择了MOCVD方法制备AlN单晶薄膜、以及采用离

子体辅助分子束外延技术制备AlN单晶薄膜。当沉积AlN单晶薄膜时，沿[002]方向的晶体生长是最优选的。

[LGS类单晶与AlN单晶的晶体取向]

5 经过以上示例可知，无论是用MOCVD还是MBE，都能够在LGS类单晶上生长出高质量的AlN单晶薄膜。在此基础上，本发明人深入研究了LGS类单晶与AlN单晶两者的晶体取向对于AlN单晶薄膜质量的影响。

10 根据图6所示，用实线表示的AlN单晶的晶胞以及用虚线表示的LGS单晶的晶胞都是六边形结构，左侧的图表示LGS单晶薄膜的[002]方向与AlN单晶薄膜的[002]方向晶格匹配，即两者相差 0° 的情况；中间的图表示LGS单晶薄膜的[002]方向偏 20° 与AlN单晶薄膜的[002]方向晶格匹配，即两者相差 20° 的情况；右侧的图表示LGS单晶薄膜的[002]方向偏 27° 与AlN单晶薄膜的[002]方向晶格匹配，即两者相差 27° 的情况。发明人发现LGS单晶薄膜的[002]方向相对于AlN单晶薄膜的[002]方向的偏差角度在 0° 至 27° 范围内时，晶格匹配性比较好，从而能保证高质量AlN单晶薄膜，释放了在外延生长过程中积累的应力，并且降低了缺陷密度。

15 并且，LGS单晶薄膜的[002]方向相对于AlN单晶薄膜的[002]方向的偏差角度在从 0° 变为 20° 的过程中，LGS单晶薄膜的晶格与AlN单晶薄膜的晶格重合程度逐渐变大，因而晶格失配性逐渐变小。在使LGS单晶薄膜的[002]方向偏 20° 与AlN单晶薄膜的[002]方向晶格匹配时，LGS单晶薄膜与AlN单晶薄膜的晶格重合程度达到最大，此时具有最佳的晶格匹配性。通过使硅酸镓镧类单晶的取向相对于AlN单晶薄膜的[002]晶向的偏差角度在 0° 至 27° 范围内，使得在LGS单晶薄膜上制备出的AlN单晶薄膜的质量较好，在LGS单晶薄膜与AlN单晶薄膜之间能实现晶格匹配，不会导致高密度的螺旋位错甚至破裂的情况发生。

25 此外，经发明人研究发现选择合适的AlN薄膜的晶体取向，即LGS单晶薄膜的[002]方向相对于AlN单晶薄膜的[002]方向的偏差角度在 0° 到 27° 的范围内，还能进一步提高所使用的声表面波谐振器的能量收集性能。

应该指出，上述的具体实施方式只是对本发明进行详细说明，它不应是对本发明的限制。虽然以上描述了本发明的具体实施方式，但是本领域的技术人员应当理解，这仅是举例说明，本发明的保护范围是由所附权利要求书限定的。本领域的技术人员在不背离本发明的原理和实质的前提下，
5 可以对这些实施方式做出多种变更或修改，但这些变更和修改均落入本发明的保护范围。

工业上的实用性

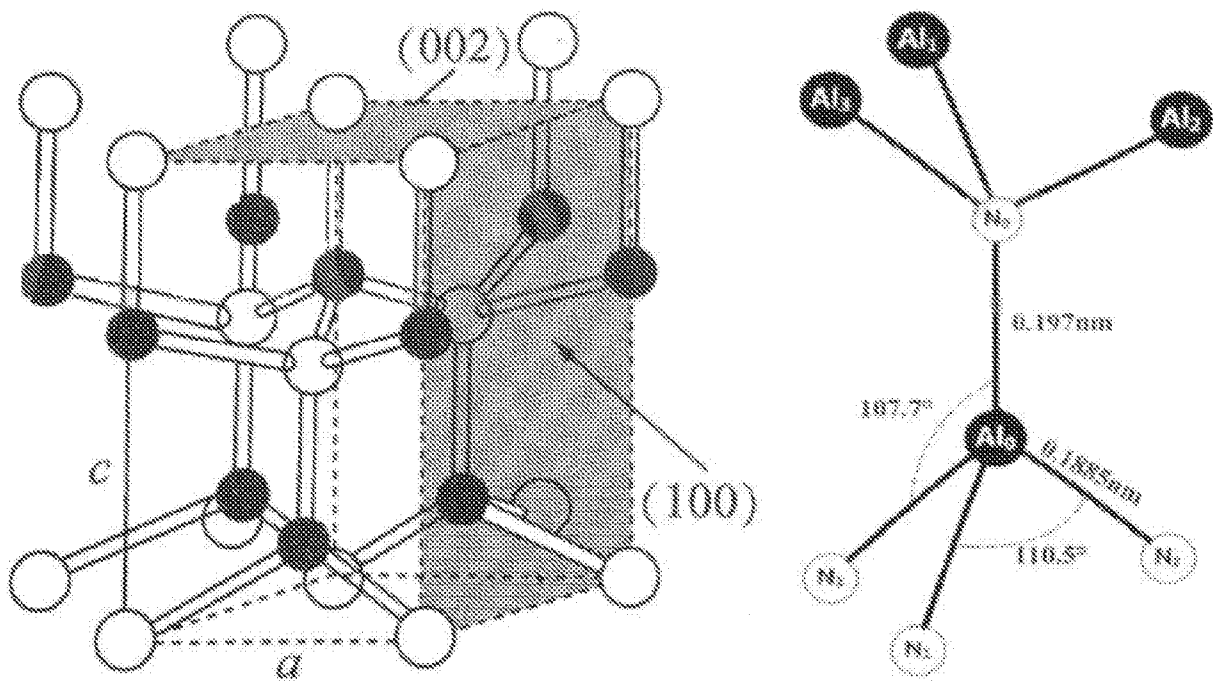
根据本发明的AlN单晶薄膜的生长方法，能生长出一种具有合适的晶格
10 匹配性和热膨胀系数匹配性，并且单晶衍射峰的半高宽和薄膜的均匀一致性较高，质量显著提高的AlN单晶薄膜。通过将这种AlN单晶薄膜应用于各类声表面波谐振器，能有利于提高器件的性能。

标号说明

- 15
- 1 AlN单晶薄膜
 - 2 叉指电极
 - 3 衬底。

权 利 要 求 书

1. 一种AlN单晶薄膜的生长方法，其特征在于，
在硅酸镓镧类单晶上生长AlN单晶薄膜，
- 5 所述硅酸镓镧类单晶的取向相对于所述AlN单晶薄膜的[002]晶向的偏差角度在 0° 至 27° 范围内。
2. 如权利要求1所述的AlN单晶薄膜的生长方法，其特征在于，
所述硅酸镓镧类单晶的取向与所述AlN单晶薄膜的[002]晶向的偏差角度为 20° 。
- 10 3. 如权利要求1所述的AlN单晶薄膜的生长方法，其特征在于，
所述硅酸镓镧类单晶选自LGS ($\text{La}_3\text{Ga}_5\text{SiO}_{14}$)、CASS ($\text{Ca}_3\text{SbAl}_3\text{SiO}_{14}$)、
CNAS ($\text{Ca}_3\text{NbAl}_3\text{SiO}_{14}$)、CTAS ($\text{Ca}_3\text{TaAl}_3\text{Si}_2\text{O}_{14}$)、CNAGS ($\text{Ca}_3\text{Nb}(\text{Ga}_{1-x}\text{Al}_x)_3\text{Si}_2\text{O}_{14}$)
中的任一种。
4. 如权利要求1所述的AlN单晶薄膜的生长方法，其特征在于，
- 15 所述硅酸镓镧类单晶中掺杂有Al、Ta、Nb中的任一种离子。
5. 如权利要求1所述的AlN单晶薄膜的生长方法，其特征在于，
所述AlN单晶薄膜采用MOCVD或MBE方法制备得到。
6. 如权利要求1所述的AlN单晶薄膜的生长方法，其特征在于，
所述AlN单晶薄膜中掺杂有Sc或Ti。
- 20 7. 如权利要求1至6的任一项所述的AlN单晶薄膜的生长方法，其特征在于，
使用所述AlN单晶薄膜的生长方法来制备AlN多晶薄膜。
8. 如权利要求6所述的AlN单晶薄膜的生长方法，其特征在于，
使用所述AlN单晶薄膜的生长方法来制备Sc或Ti掺杂AlN多晶薄膜。
- 25 9. 一种声表面波谐振器，其特征在于，
使用由所述权利要求1至6中任一种方法生长得到的AlN单晶薄膜来作为压电层。



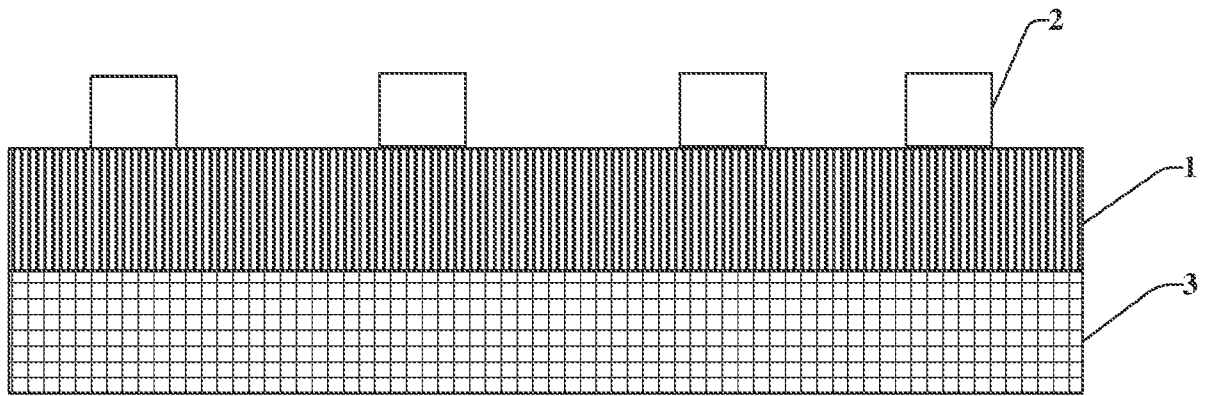


图 2

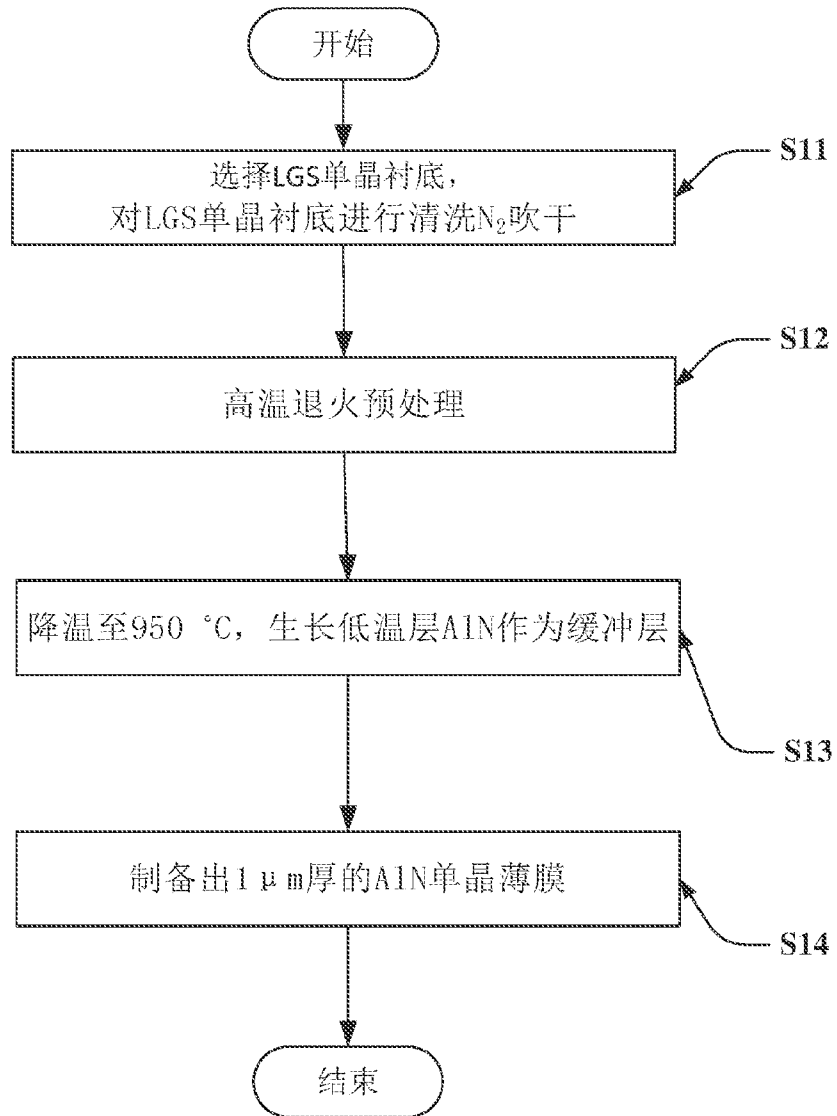


图 3

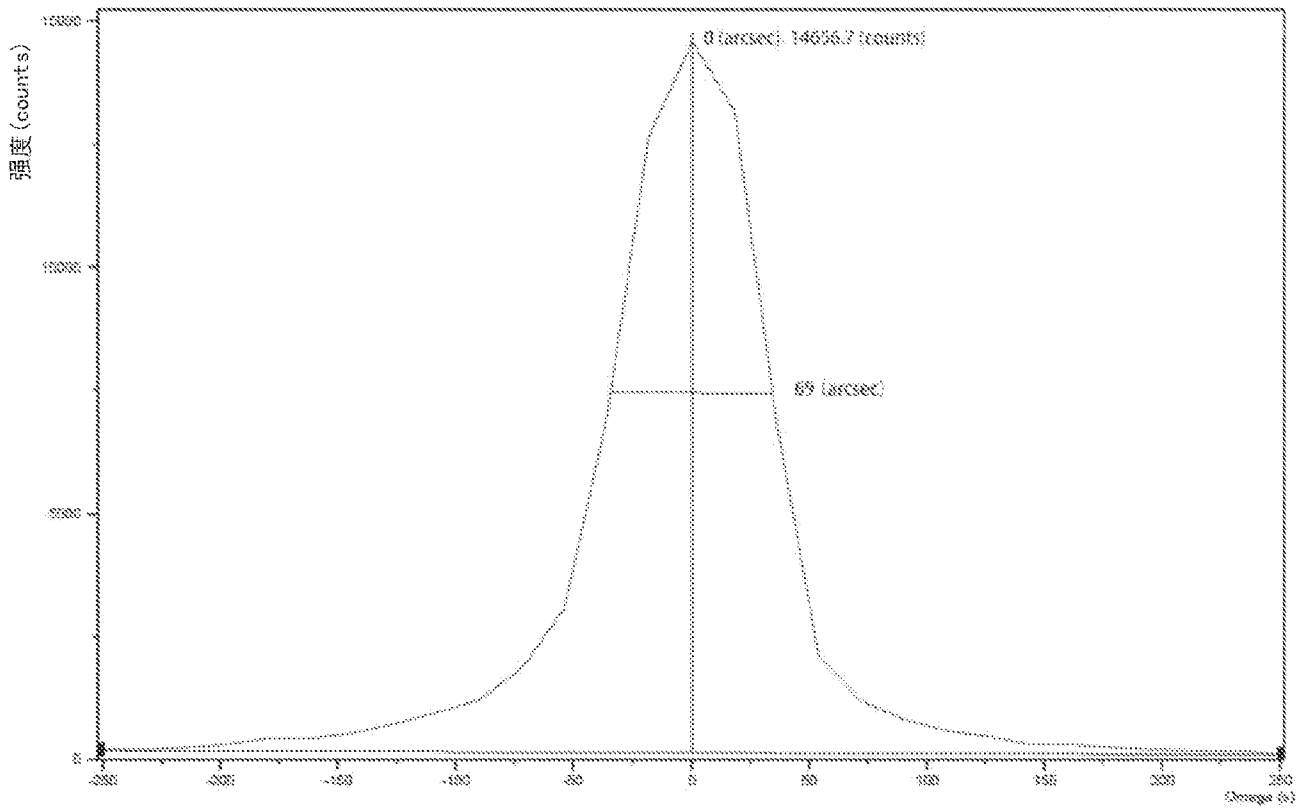


图 4

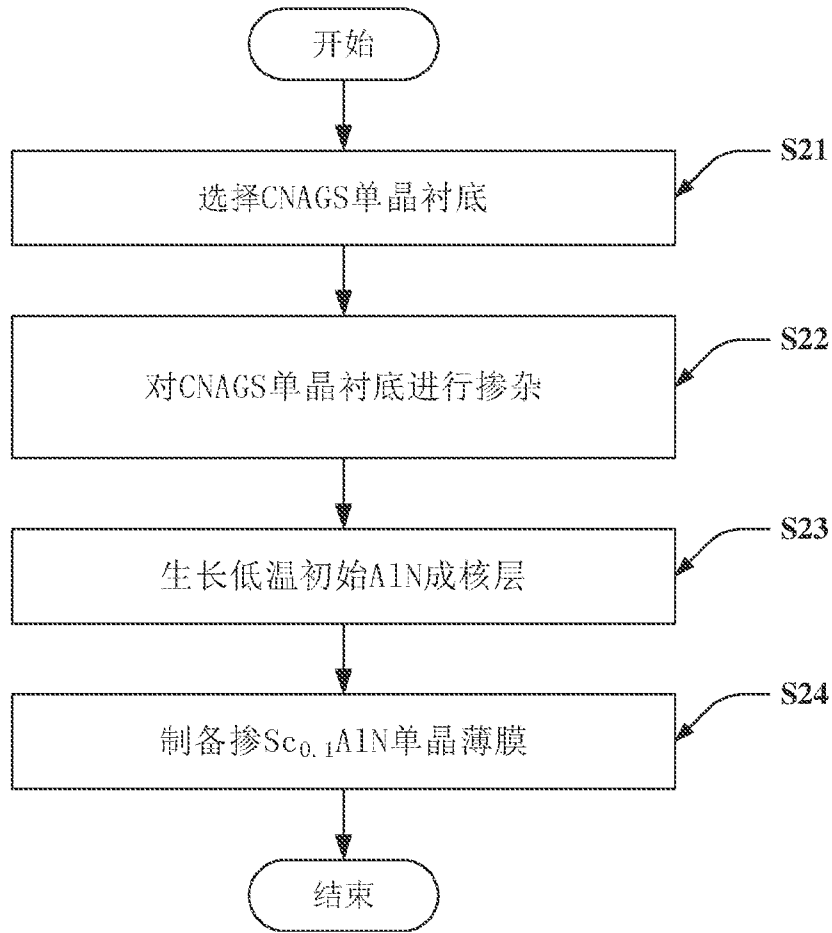
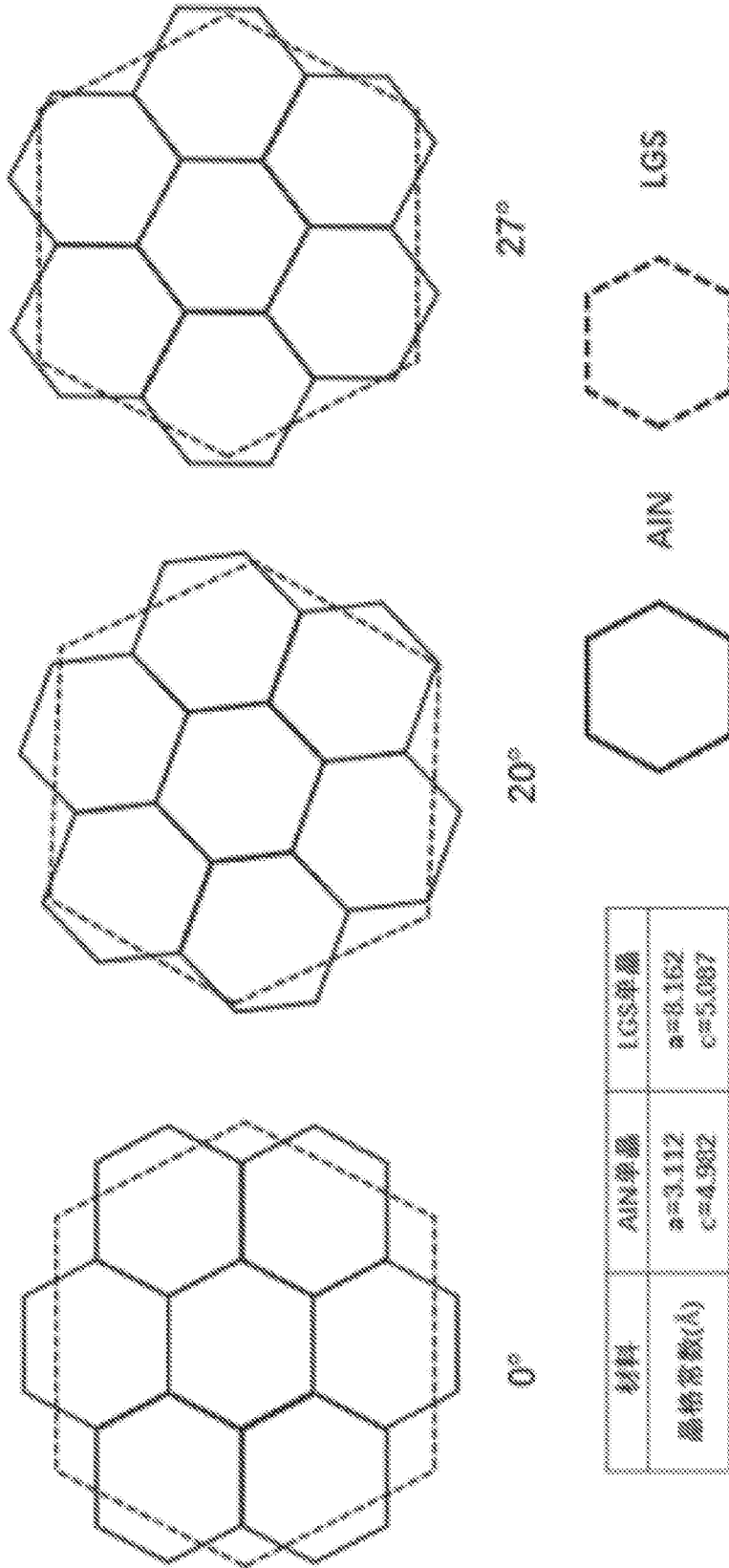


图 5



6/6

6

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/CN2021/117917

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER		
H01L 21/02(2006.01)i		
According to International Patent Classification (IPC) or to both national classification and IPC		
B. FIELDS SEARCHED		
Minimum documentation searched (classification system followed by classification symbols)		
H01L		
Documentation searched other than minimum documentation to the extent that such documents are included in the fields searched		
Electronic data base consulted during the international search (name of data base and, where practicable, search terms used)		
CNPAT; CNKI; EPODOC; WPI: 压电, 单晶, 晶格, 晶向, 方向, 角, 生长, 匹配, 失配, c轴, 偏差角度, 硅酸镓镧, 衬底, 氮化铝, piezoelectric, c-axis, langasite, LGS, CNAS, CASS, CTAS, CNAGS, lanthanum gallium silicate, substrate, AlN, aluminum nitride, grow+, deposit+, form+ hexagon+, angle, orient+, deviation		
C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT		
Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
PX	CN 112038217 A (GUANGDONG GUANGNAXIN TECHNOLOGY CO., LTD.) 04 December 2020 (2020-12-04) claims 1-9, description paragraphs [0006]-[0076], figures 1-6	1-9
Y	WU, Sean et al. . "Sputtering Highly C-axis-oriented AlN films on Langasite Substrate." <i>2007 Sixteenth IEEE International Symposium on Applications of Ferroelectrics.</i> , 31 May 2007 (2007-05-31), pp. 149-150	1-9
Y	PARK, Byung-Guon et al. . "Domain matching epitaxy of GaN films on a novel langasite substrate: an in-plane epitaxial relationship analysis." <i>The Royal Society of Chemistry. 2015</i> , 23 April 2015 (2015-04-23), pages 4455-4460, figure 4	1-9
A	CN 104101451 A (UNIVERSITY OF ELECTRONIC SCIENCE AND TECHNOLOGY OF CHINA) 15 October 2014 (2014-10-15) entire document	1-9
A	CN 102945898 A (GUANGZHOU ZHONGTUO OPTO ELECTRONICS TECHNOLOGY CO., LTD.) 27 February 2013 (2013-02-27) entire document	1-9
<input checked="" type="checkbox"/> Further documents are listed in the continuation of Box C. <input checked="" type="checkbox"/> See patent family annex.		
* Special categories of cited documents: "A" document defining the general state of the art which is not considered to be of particular relevance "E" earlier application or patent but published on or after the international filing date "L" document which may throw doubts on priority claim(s) or which is cited to establish the publication date of another citation or other special reason (as specified) "O" document referring to an oral disclosure, use, exhibition or other means "P" document published prior to the international filing date but later than the priority date claimed "T" later document published after the international filing date or priority date and not in conflict with the application but cited to understand the principle or theory underlying the invention "X" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered novel or cannot be considered to involve an inventive step when the document is taken alone "Y" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered to involve an inventive step when the document is combined with one or more other such documents, such combination being obvious to a person skilled in the art "&" document member of the same patent family		
Date of the actual completion of the international search		Date of mailing of the international search report
26 October 2021		14 December 2021
Name and mailing address of the ISA/CN		Authorized officer
China National Intellectual Property Administration (ISA/CN) No. 6, Xitucheng Road, Jimenqiao, Haidian District, Beijing 100088, China		
Facsimile No. (86-10)62019451		Telephone No.

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/CN2021/117917

C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT		
Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
A	US 6342748 B1 (NGK INSULATORS LTD.) 29 January 2002 (2002-01-29) entire document	1-9
.....		

INTERNATIONAL SEARCH REPORT
Information on patent family members

International application No. PCT/CN2021/117917

Patent document cited in search report			Publication date (day/month/year)	Patent family member(s)			Publication date (day/month/year)
CN	112038217	A	04 December 2020	CN	112038217	B	16 July 2021
CN	104101451	A	15 October 2014	CN	104101451	B	31 August 2016
CN	102945898	A	27 February 2013	CN	102945898	B	30 September 2015
US	6342748	B1	29 January 2002	EP	0999640	A2	10 May 2000
				EP	0999640	A3	27 September 2000
				JP	2000201050	A	18 July 2000

<p>A. 主题的分类</p> <p>H01L 21/02 (2006.01) i</p> <p>按照国际专利分类(IPC)或者同时按照国家分类和IPC两种分类</p>																				
<p>B. 检索领域</p> <p>检索的最低限度文献(标明分类系统和分类号)</p> <p>H01L</p> <p>包含在检索领域中的除最低限度文献以外的检索文献</p> <p>在国际检索时查阅的电子数据库(数据库的名称, 和使用的检索词(如使用))</p> <p>CNPAT;CNKI;EPDOC;WPI: 压电, 单晶, 晶格, 晶向, 方向, 角, 生长, 匹配, 失配, c轴, 偏差角度, 硅酸镓镧, 衬底, 氮化铝, piezoelectric, c-axis, langasite, LGS, CNAS, CASS, CTAS, CNAGS, lanthanum gallium silicate, substrate, AlN, aluminum nitride, grow+, deposit+, form+ hexagon+, angle, orient+, deviation</p>																				
<p>C. 相关文件</p> <table border="1"> <thead> <tr> <th>类型*</th> <th>引用文件, 必要时, 指明相关段落</th> <th>相关的权利要求</th> </tr> </thead> <tbody> <tr> <td>PX</td> <td>CN 112038217 A (广东广纳芯科技有限公司) 2020年12月4日 (2020 - 12 - 04) 权利要求1-9, 说明书第[0006]-[0076]段, 附图1-6</td> <td>1-9</td> </tr> <tr> <td>Y</td> <td>WU, Sean 等. "Sputtering Highly C-axis-oriented AlN films on Langasite Substrate." 2007 Sixteenth IEEE International Symposium on Applications of Ferroelectrics., 2007年5月31日 (2007 - 05 - 31), 第149-150页</td> <td>1-9</td> </tr> <tr> <td>Y</td> <td>PARK, Byung-Guon 等. "Domain matching epitaxy of GaN films on a novel langasite substrate: an in-plane epitaxial relationship analysis." The Royal Society of Chemistry. 2015, 2015年4月23日 (2015 - 04 - 23), 第4455-4460页, 图4</td> <td>1-9</td> </tr> <tr> <td>A</td> <td>CN 104101451 A (电子科技大学) 2014年10月15日 (2014 - 10 - 15) 全文</td> <td>1-9</td> </tr> <tr> <td>A</td> <td>CN 102945898 A (广州市众拓光电科技有限公司) 2013年2月27日 (2013 - 02 - 27) 全文</td> <td>1-9</td> </tr> </tbody> </table>			类型*	引用文件, 必要时, 指明相关段落	相关的权利要求	PX	CN 112038217 A (广东广纳芯科技有限公司) 2020年12月4日 (2020 - 12 - 04) 权利要求1-9, 说明书第[0006]-[0076]段, 附图1-6	1-9	Y	WU, Sean 等. "Sputtering Highly C-axis-oriented AlN films on Langasite Substrate." 2007 Sixteenth IEEE International Symposium on Applications of Ferroelectrics., 2007年5月31日 (2007 - 05 - 31), 第149-150页	1-9	Y	PARK, Byung-Guon 等. "Domain matching epitaxy of GaN films on a novel langasite substrate: an in-plane epitaxial relationship analysis." The Royal Society of Chemistry. 2015, 2015年4月23日 (2015 - 04 - 23), 第4455-4460页, 图4	1-9	A	CN 104101451 A (电子科技大学) 2014年10月15日 (2014 - 10 - 15) 全文	1-9	A	CN 102945898 A (广州市众拓光电科技有限公司) 2013年2月27日 (2013 - 02 - 27) 全文	1-9
类型*	引用文件, 必要时, 指明相关段落	相关的权利要求																		
PX	CN 112038217 A (广东广纳芯科技有限公司) 2020年12月4日 (2020 - 12 - 04) 权利要求1-9, 说明书第[0006]-[0076]段, 附图1-6	1-9																		
Y	WU, Sean 等. "Sputtering Highly C-axis-oriented AlN films on Langasite Substrate." 2007 Sixteenth IEEE International Symposium on Applications of Ferroelectrics., 2007年5月31日 (2007 - 05 - 31), 第149-150页	1-9																		
Y	PARK, Byung-Guon 等. "Domain matching epitaxy of GaN films on a novel langasite substrate: an in-plane epitaxial relationship analysis." The Royal Society of Chemistry. 2015, 2015年4月23日 (2015 - 04 - 23), 第4455-4460页, 图4	1-9																		
A	CN 104101451 A (电子科技大学) 2014年10月15日 (2014 - 10 - 15) 全文	1-9																		
A	CN 102945898 A (广州市众拓光电科技有限公司) 2013年2月27日 (2013 - 02 - 27) 全文	1-9																		
<p><input checked="" type="checkbox"/> 其余文件在C栏的续页中列出。</p> <p><input checked="" type="checkbox"/> 见同族专利附件。</p> <table border="0"> <tr> <td> <p>* 引用文件的具体类型:</p> <p>"A" 认为不特别相关的表示了现有技术一般状态的文件</p> <p>"E" 在国际申请日的当天或之后公布的在先申请或专利</p> <p>"L" 可能对优先权要求构成怀疑的文件, 或为确定另一篇引用文件的公布日而引用的或者因其他特殊理由而引用的文件(如具体说明的)</p> <p>"O" 涉及口头公开、使用、展览或其他方式公开的文件</p> <p>"P" 公布日先于国际申请日但迟于所要求的优先权日的文件</p> </td> <td> <p>"T" 在申请日或优先权日之后公布, 与申请不相抵触, 但为了理解发明之理论或原理的在后文件</p> <p>"X" 特别相关的文件, 单独考虑该文件, 认定要求保护的发明不是新颖的或不具有创造性</p> <p>"Y" 特别相关的文件, 当该文件与另一篇或者多篇该类文件结合并且这种结合对于本领域技术人员为显而易见时, 要求保护的发明不具有创造性</p> <p>"&" 同族专利的文件</p> </td> </tr> </table>			<p>* 引用文件的具体类型:</p> <p>"A" 认为不特别相关的表示了现有技术一般状态的文件</p> <p>"E" 在国际申请日的当天或之后公布的在先申请或专利</p> <p>"L" 可能对优先权要求构成怀疑的文件, 或为确定另一篇引用文件的公布日而引用的或者因其他特殊理由而引用的文件(如具体说明的)</p> <p>"O" 涉及口头公开、使用、展览或其他方式公开的文件</p> <p>"P" 公布日先于国际申请日但迟于所要求的优先权日的文件</p>	<p>"T" 在申请日或优先权日之后公布, 与申请不相抵触, 但为了理解发明之理论或原理的在后文件</p> <p>"X" 特别相关的文件, 单独考虑该文件, 认定要求保护的发明不是新颖的或不具有创造性</p> <p>"Y" 特别相关的文件, 当该文件与另一篇或者多篇该类文件结合并且这种结合对于本领域技术人员为显而易见时, 要求保护的发明不具有创造性</p> <p>"&" 同族专利的文件</p>																
<p>* 引用文件的具体类型:</p> <p>"A" 认为不特别相关的表示了现有技术一般状态的文件</p> <p>"E" 在国际申请日的当天或之后公布的在先申请或专利</p> <p>"L" 可能对优先权要求构成怀疑的文件, 或为确定另一篇引用文件的公布日而引用的或者因其他特殊理由而引用的文件(如具体说明的)</p> <p>"O" 涉及口头公开、使用、展览或其他方式公开的文件</p> <p>"P" 公布日先于国际申请日但迟于所要求的优先权日的文件</p>	<p>"T" 在申请日或优先权日之后公布, 与申请不相抵触, 但为了理解发明之理论或原理的在后文件</p> <p>"X" 特别相关的文件, 单独考虑该文件, 认定要求保护的发明不是新颖的或不具有创造性</p> <p>"Y" 特别相关的文件, 当该文件与另一篇或者多篇该类文件结合并且这种结合对于本领域技术人员为显而易见时, 要求保护的发明不具有创造性</p> <p>"&" 同族专利的文件</p>																			
<p>国际检索实际完成的日期</p> <p>2021年10月26日</p>	<p>国际检索报告邮寄日期</p> <p>2021年12月14日</p>																			
<p>ISA/CN的名称和邮寄地址</p> <p>中国国家知识产权局(ISA/CN) 中国北京市海淀区蓟门桥西土城路6号 100088</p> <p>传真号 (86-10)62019451</p>	<p>授权官员</p> <p>曹毓涵</p> <p>电话号码 86-(10)-53961208</p>																			

C. 相关文件		
类型*	引用文件, 必要时, 指明相关段落	相关的权利要求
A	US 6342748 B1 (NGK INSULATORS LTD.) 2002年1月29日 (2002 - 01 - 29) 全文	1-9

国际检索报告
关于同族专利的信息

国际申请号

PCT/CN2021/117917

检索报告引用的专利文件			公布日 (年/月/日)	同族专利			公布日 (年/月/日)
CN	112038217	A	2020年12月4日	CN	112038217	B	2021年7月16日
CN	104101451	A	2014年10月15日	CN	104101451	B	2016年8月31日
CN	102945898	A	2013年2月27日	CN	102945898	B	2015年9月30日
US	6342748	B1	2002年1月29日	EP	0999640	A2	2000年5月10日
				EP	0999640	A3	2000年9月27日
				JP	2000201050	A	2000年7月18日