

平成23年度戦略的基盤技術高度化支援事業

「EBL法による低コスト高品質4インチGaN基板量産技術開発」

研究開発成果等報告書

平成26年 3月

委託者 関東経済産業局

委託先 特定非営利活動法人 創業支援推進機構

目次(例)

第1章 研究開発の概要	3
1-1 研究開発の背景・研究目的及び目標	3
1) 研究開発の背景と中小ものづくり高度化指針	3
2) 研究目的および目標	3
1-2 研究体制	4
1) 研究組織・管理体制	4
2) 管理員、研究員及び協力者	5
1-3 成果概要	6
1-4 当該研究開発の連絡窓口	7
第2章 本論	8
2-1 EBL法による大型HVPE装置開発と結晶成長条件確立	8
1) 大型HVPE装置設計試作	8
2) 大型HVPE装置でのEBL法の検討	11
3) EBL法で作成したGaNの品質	13
2-2 4インチ基板の研磨洗浄技術及び研磨洗浄装置の開発	15
1) 研削工程の開発	15
2) 化学研磨(CMP)工程の開発	15
3) KOHによる最終エッチングの検討	16
4) 研磨洗浄プロセスの生産ラインの設計	18
2-3 サファイア再利用プロセスの開発	19
1) サファイア再研磨洗浄技術の開発	19
2) サファイア再研磨技術のコスト試算	19
最終章 全体総括	20
3-1 実施研究開発事業の総括	20
3-2 今後の事業化について	20
1) ビジネスモデル	20
2) 今後の開発計画	20

第1章 研究開発の概要

1-1 研究開発の背景・研究目的および目標

1) 研究開発の背景と中小ものづくり高度化指針

LED照明市場がさらに拡大するためには、現在のLEDチップと同じコストで2倍程度の効率を実現することが望まれており、そのためにGaN基板上にGaN-LEDを作製することが有望である。しかしながら品質およびコストを満足するGaN基板製造法は確立していない。最も品質的に有望なHVPE法によるGaN基板製造技術では、サファイア種基板からGaN基板層を剥離するときに、割れが多発するということが、また割れを防止するには剥離層を複雑なプロセスを経て挿入する必要があることから、製造コストが高く実用化には遠い。

この課題を解決するためには、特定ものづくり基盤技術高度化指針のうち、以下の項目に対応した研究開発を行う。

(十五) 高機能化学合成に係る技術

高機能化学合成に係る技術において達成すべき高度化目標

(1) 情報家電に関する事項

- ・川下製造業者等の抱える課題およびニーズ

イ. ディスプレイの高効率化、高精細化、高機能化

- ・上記を踏まえた高度化目標

イ. 導電性・選択発光性の向上

従来技術では困難であった、低コスト高品質4インチ導電性GaN基板を量産する技術を確認することで、GaN-LEDの発光効率を、現状と同じコストで、2倍以上に飛躍的に向上させる。

(十二) 位置決めに係る技術

位置決めに係る技術で達成すべき高度化目標

(2) 半導体製造装置等に関する事項

- ・川下業者等の抱える課題およびニーズ

イ. 高精度化

- ・上記を踏まえた高度化目標

ア. 高精度化

従来技術では困難であった、4インチ大口径GaN基板の研磨洗浄技術およびそれを実現する高精度な研磨洗浄一貫装置を開発することで、安定的にGaN基板を供給できることを可能にする。またサファイア基板を高精度に研磨洗浄する技術開発を行い、それを実現する高精度な研磨洗浄一貫装置を開発することで、GaN基板製造コストを下げる。

2) 研究目的および目標

研究課題を解決する具体的な手法としては、東北大学で開発したEBL法が有望である。本手法を生産技術として確立し、以下に述べる研究目標値を達成することが本研究開発の目的である。

【1】 EBL法による大型HVPE装置開発と結晶成長条件確立

【1-1】 EBL法に対応する大型HVPE装置開発

1) 基板口径 : 4インチ

- 2) 成長枚数 : 3枚
- 3) 原料歩留 : Gaで >25%
- 4) 製造コスト : <40百万円

【1-2】大型HVPE装置での結晶成長条件最適化

- 1) 東北大品質の4インチでの実現
- 2) 導電性制御技術 : $1\sim 3 \times 10^{17}/\text{cm}^3$ (n型)
- 3) 均一性 : ウェーハ間 : <±5%, ウェーハ内 : <±5%
- 4) 異常成長抑制 : 剥離歩留 : >80%

【2】4インチ基板の研磨洗浄技術及び研磨洗浄装置の開発

【2-1】4インチGaN基板研磨洗浄技術開発

- 1) 平坦性 : 両面研磨後 原子層レベル
- 2) 表面粗さ : <5nm
- 3) 表面清浄度 : LED用サファイアと同程度

【2-2】研磨洗浄一貫装置の試作

- 1) 品質 : 【2-1】と同じレベル
- 2) 処理能力 : 30枚/日

【3】サファイア再利用プロセスの開発

【3-1】サファイアの再研磨洗浄技術の開発

- 1) 平坦性 : 両面研磨後 原子層レベル
- 2) 表面粗さ : <5nm
- 3) 表面清浄度 : LED用サファイアと同程度
- 4) 再利用可能回数 : >3回

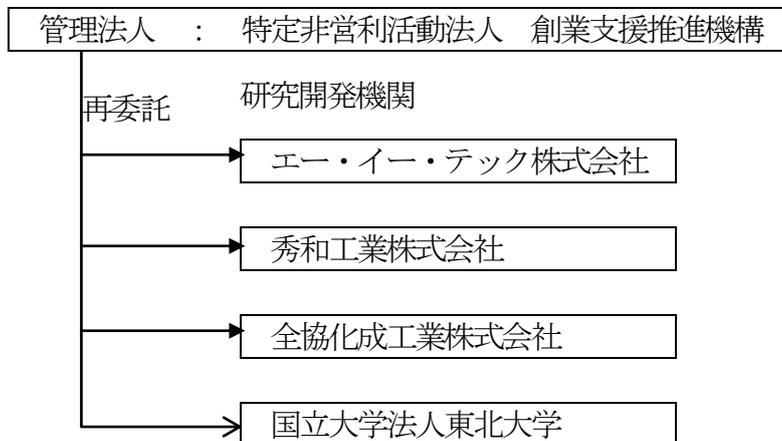
【3-2】サファイア再研磨洗浄一貫装置の試作

- 1) 品質 : 【3-1】と同じレベル
- 2) 処理能力 : 30枚/日

本技術目標に対して、すべての課題・目標値を達成することができたが、サファイア再成長プロセスについては、サファイア基板価格の下落が激しく、実生産に採用することは断念した。

1-2 研究体制

1) 研究組織・管理体制



総括研究責任者（PL）
 エー・イー・テック株式会社
 つくば研究開発センター
 取締役CTO 後藤 秀樹

副総括研究責任者（SL）
 国立大学法人東北大学
 学際科学国際高等研究センター
 客員准教授 佐藤 忠重

という体制で研究開発を開始したが、平成25年度については東北大学の八百教授の退官に伴い、東北大学は再委託先から外れ八百名誉教授にはアドバイザーをお願いした。また平成25年度の副総括研究責任者（SL）は、下記のように変更した。

秀和工業株式会社 営業技術グループ 浅石敏彦

2) 管理員、研究員及び協力者

【事業管理機関】 特定非営利活動法人創業支援推進機構
 (管理員)

氏名	所属・役職	実施内容 (番号)
雫 二公雄	事務局長付(部長)	
井上 明	理事兼事務局・事務局長	

【再委託先】
 (研究員)

エー・イー・テック株式会社

氏名	所属・役職	実施内容 (番号)
後藤 秀樹	つくば研究開発センター 取締役CTO	【1】【2】【3】
佐藤 明	つくば研究開発センター センター長	【1】【2】【3】
瀬戸 利律	つくば研究開発センター 主任研究員	【1】【2】【3】

秀和工業株式会社

氏名	所属・役職	実施内容 (番号)
小口 純利	代表取締役	【2】【3】
関口 哲也	製造部プロセス技術担当	【2】【3】
浅石 敏彦	営業技術グループ	【2】【3】
木村 伸也	営業技術グループ	【2】【3】

全協化成工業株式会社

氏名	所属・役職	実施内容 (番号)
興水 好孝	S・E部 課長代理	【2】【3】
日永 信夫	取締役製造部長	【2】【3】
渡引 秀一	製造部製造課 課長	【2】【3】
小俣 幸男	技術部機械設計課 課長	【2】【3】
加藤 雅憲	技術部電気設計課 課長	【2】【3】

国立大学法人東北大学

氏名	所属・役職	実施内容 (番号)
佐藤 忠重	学際科学国際高等研究センター 客員准教授	【1】【2】
八百 隆文	学際科学国際高等研究センター 客員教授	【1】【2】
岡野 信也	学際科学国際高等研究センター 教員	【1】【2】

(協力者)：研究開発推進委員会委員

氏名	所属・役職	備考
後藤 秀樹	エー・イー・テック株式会社 取締役CTO	PL
八百 隆文	国立大学法人東北大学 名誉教授	アドバイザー
渡辺 誠一	エー・イー・テック株式会社 代表取締役	
小口 純利	秀和工業株式会社 代表取締役	
浅石 敏彦	秀和工業株式会社 営業技術グループ	SL
輿水 好孝	全協化成工業株式会社 S・E部 課長代理	
岡田 譲二	船井電機株式会社 取締役開発技術本部本部長	アドバイザー
北尻 義晴	株式会社ウイング 代表取締役	アドバイザー
辰馬 正崇	ザインエレクトロニクス株式会社 戦略技術部	アドバイザー

1-3 成果概要

技術目標については表1に示すようにすべて達成した。ただし、【3】サファイア再利用プロセスの開発に関しては技術的目標は達成したが、開発開始当初4インチサファイア基板が、15,000円/枚以上していたのに対し、現在は7,000円/枚以下に下落した。本研究で開発した手法では、サファイア再生プロセスコストは10,000円/枚程度となり、実生産においては採用することができない。また実生産においては、本研究で明確になった諸元をもととした、研磨洗浄装置を製作する必要がある。

以上、品質的に満足したLED製造に必要なコストを満足する技術開発に成功した。

表1 開発目標と開発結果

開発テーマ	開発項目	開発目標	開発結果	備考	
EBL法による大型HVPE装置開発	基板口径	4インチ	4インチ		
	EBL法に対応する大型HVPE装置開発	同時成長枚数	3枚	3枚	
		原料歩留	>25% (Ga)	~25% (Ga)	Gaの原料費に占める割合高
		製造コスト	<40百万円	<38百万円	
		大型HVPE装置での結晶成長条件最適化	X線回折半値幅	<150arcsec	~110arcsec
	欠陥密度		<5x10 ⁶ cm ⁻²	<1x10 ⁶ cm ⁻²	
	導電性制御技術		1~3x10 ¹⁷ cm ⁻³	1~3x10 ¹⁷ cm ⁻³	Siドーピング 10 ¹⁸ cm ⁻³ 台のドーピング可能
	均一性		<±5%	<±5%	ウェーハ間 ウェーハ内
	剥離歩留		>80%	~80%	異常成長抑制 均一性向上

4 インチ基板の研磨洗浄技術及び研磨洗浄装置の開発	4 インチ GaN 基板研磨洗浄技術開発	平坦性	原子層レベル	原子層レベル	両面研磨
		表面粗さ	<5nm	<5nm	KOH エッチングで EpiReady 達成
		表面清浄度	LED サファイア並	LED サファイア並	KOH エッチングで EpiReady 達成
	研磨洗浄一貫装置の試作 (諸元明確にし、設計)	品質	上記レベル	上記レベル	
		処理能力	>30 枚/日	>30 枚/日	プロセスコスト <10 千円の諸元明確化 改良スラリーの採用 製造ライン設計諸元明確化
サファイア再利用プロセスの開発	サファイアの再研磨洗浄技術の開発	平坦性	原子層レベル	原子層レベル	サファイア価格下落により、当初目的のコストは達成も採用不可 サファイア価格 当初 >15,000 円 現状 < 7,000 円 プロセスコスト 10,000 円
		表面粗さ	<5nm	<5nm	
		表面清浄度	LED サファイア並	LED サファイア並	
		再利用回数	>3 回	>3 回	
	サファイア再研磨洗浄装置試作 (諸元明確にし、設計)	品質	上記レベル	上記レベル	
		処理能力	>30 枚/日	>30 枚/日	

1-4 当該研究開発の連絡窓口

研究代表 後藤秀樹

エー・イー・テック株式会社 つくば研究開発センター

TEL : 029-875-7618 FAX : 029-875-7619

E-mail : hgoto@aetech.jp

管理機関 雫二公雄

特定非営利活動法人創業支援推進機構 事務局長付(部長)

TEL : 03-6435-9171 FAX : 03-6435-9172

E-mail : shizuku@ett21.or.jp

第2章 本論

2-1 EBL 法による大型 HVPE 装置開発と結晶成長条件確立

1) 大型 HVPE 装置設計試作

当初パンケーキ型自公転サセプタ（結晶成長中に基板を保持する装置）を有する4インチ3枚同時成長できる大型のHVPE装置を試作、初期検討においては均一性の良い結晶成長が可能であることが確認された。しかしこのときは約100 μm 程度の薄膜の結晶成長での結果であり、その後500 μm 以上の厚膜での特性の確認など、実用レベルでの検討を行った結果、パンケーキ型自公転サセプタでは、どうしても品質に優れたGaN厚膜の成長が困難であることが判明した。そこでバレル型自公転サセプタを設計し、それを試作し結晶成長実験を行った。

パンケーキ型自公転サセプタを使用したときの問題は、図2-1に示す原料ガスの対流である。原料ガスが対流すると気相中における塩化ガリウムとアンモニアの直接反応により微細なGaNが生成され、それが成長しているGaN上に析出し、平坦で品質の良いGaN膜を得ることが困難になる。図2-2に、パンケーキ型サセプタを用いて、厚膜GaNを成長させたときの表面写真を示す。もちろんガスの流量などを変化させることでガスの流れは変化する。そこでいろいろな条件でスモークテストを行って対流を抑えることができるかの検討をおこなったが、パンケーキ型自公転サセプタを用いる限り、現実的なガス流量の範囲においてはガスの対流を抑えることはできなかった。

次に、自転機構は持っていない簡単なバレル型サセプタを用いて同じようにスモークテストを行った。図2-3に自転機構は持っていない簡単なバレル型サセプタを示す。この場合、キャリアガスである水素の流量を最低化することで、完全に対流を抑えることができることが判明した。そこで、バレル型自公転サセプタの設計試作に着手した。図2-1にパンケーキ型の場合に合わせ、バレル型で得られたガス対流の結果を示す。また同じく厚膜GaNを成長させたとき、図2-4に示すように、バレル型サセプタを用いると、良好な表面が得られることが判った。ただし自転機構を持たないバレル型サセプタを用いて結晶成長させた場合、4インチ基板において成長したGaN膜厚は上部が下部の2倍以上となり、均一性の高いGaNを成長させるためには、自転機構が必須となる。

自公転サセプタを制作する際に考慮しなければならないのは、結晶成長温度が最高1,100 $^{\circ}\text{C}$ と高温で行われるために、回転機構が高温で損傷を受けない構造とすること、原料ガスが回転機構内部に入り込み、GaN等が析出し回転機構に損傷を与えない構造とすることである。そのために素材および素材へのコーティング、回転機構部への析出を防ぐためのパージガスの導入などを工夫した。なお本構造等に関しては特許出願を行っている。

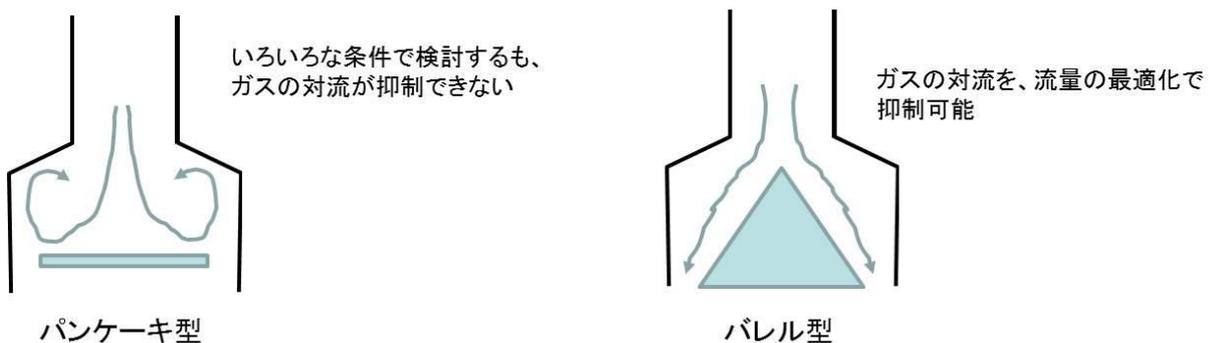


図2-1 パンケーキ型サセプタ及びバレル型サセプタにおけるガスの流れ



図 2-2 パンケーキ型サセプタを用いて成長した厚膜 GaN



図 2-3 自転機構を持たない 4 インチ 3 枚用バレル型サセプタ

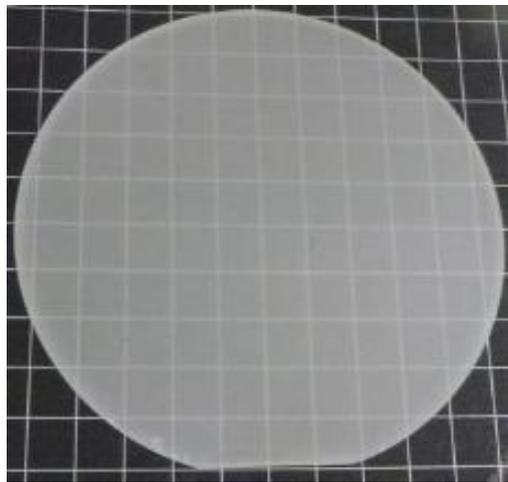


図 2-4 自転機構を持たないバレル型サセプタを用いて成長した厚膜 GaN

部材を組み上げた様子を、図 2-5 に示す。この写真では内部構造が少しでも判るように、プロセスガス遮断用の円筒は外されている。ガスの排気は 4 方向に排気ポートを設置して、偏ることの無いように 4 方向から排気している。



(a) 自公転機構すべて
(プロセスガス遮断用円筒除く)



(b) 自公転サセプタ部
(4 インチアダプタ付)

図 2-5 自公転サセプタ組み上げ写真

表 2-1 4 インチウェーハ内成長膜厚分布
(各測定点位置は左図を参照)

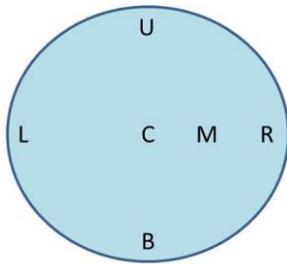


図 2-6 測定点

測定位置	膜厚 (μm)	分布
L	546	-1.3%
C	583	5.4%
M	577	4.3%
R	531	-4.0%
U	550	-0.5%
B	533	-3.6%

4 インチウェーハで測定点を図 2-6 に、また表 2-1 に成長した GaN 層の膜厚分布を示す。この表からわかるように、中央部が最も厚く +5% を超える値となっているが、測定誤差の範囲であり、目標である 4 インチ面内での膜厚均一性 $\pm 5\%$ 以内を達成している。次に Ga の原料使用効率を確認した。現状は原料の使用効率はおよそ 15% だった。これは目標値である 25% 以上に対してかなり低い値となっており、改善の必要があった。

原料使用効率を向上させるためには、基板部分により有効に原料ガス特に GaC1 が到達することが必要である。そこでリアクター内のガスが流れる部分の有効容積を小さくする改良を行った。図 2-7 にリアクター組図の一部を示す。合わせて GaC1 の吹き出し口の構造も工夫した。スモークテストやガス流シミュレーションの結果、ガス流量の最適化も合わせると、対流がほとんど生じないガス流が得られ、かつ原料ガスが有効に基板表面に到達することが判った。このときの Ga の使用効率は、およそ 25% となり本改良前の 15% から大幅に改善することができた。

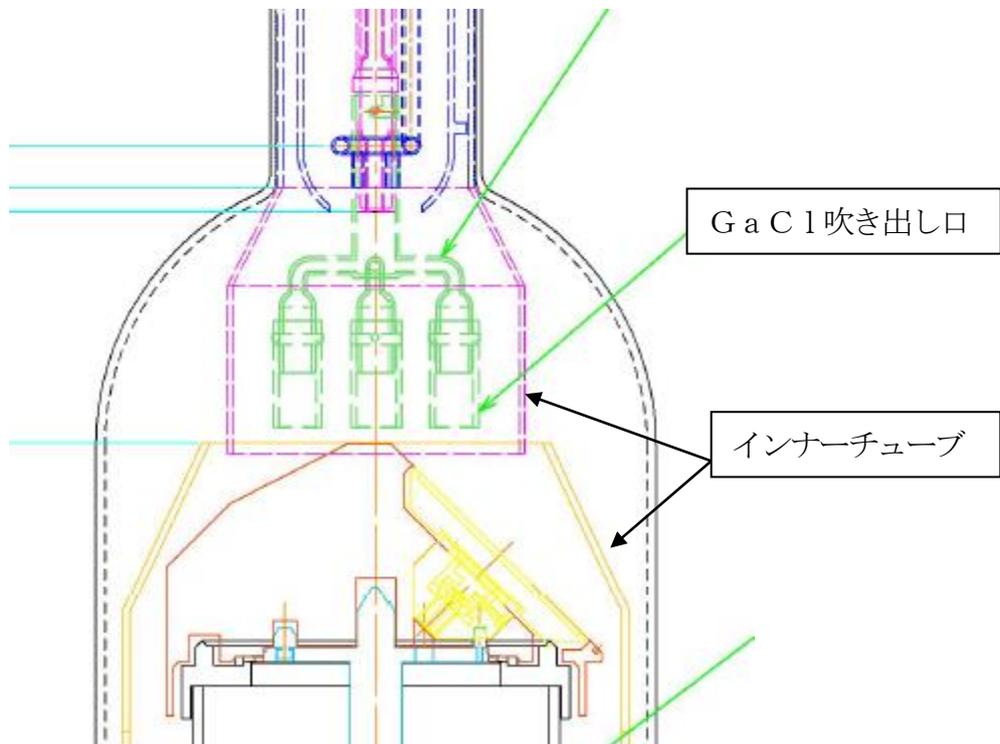


図 2-7 インナーチューブを持つリアクター組図

表 2-2 自公転サセプタに変更した場合の大型 HVPE 装置製造コスト

パーツ名	発注金額 (千円)	備考
電気炉及びガス配管等	17,600	組み上げも担当 平成23年度予算
制御盤	6,600	平成23年度予算
排気部	1,800	平成23年度予算
リアクター (反応管)	6,200 2,000	平成23年度予算 平成25年度予算で改良
自公転サセプタ	5,452	平成24年度予算 うち本事業予算使用額 200万円
合計	39,652	

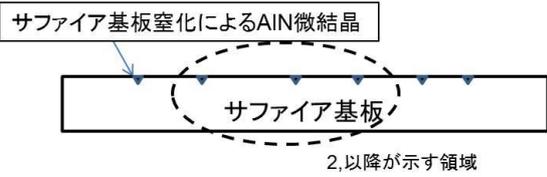
以上示したように、様々な工夫を行って4インチ3枚が同時成長可能なHVPE装置を試作し、次節で述べるようにすべての結晶品質を満足しながら、均一性および原料使用効率目標を達成した。HVPE装置の製作コストも、GaN基板製造コストに大きな影響を与えるが、このときの製造コストは表2-2に示すように約40百万円であり、これも目標値をクリアした。

2) 大型HVPE装置でのEBL法の検討

東北大学で検討されたEBL法では、まだ大口径での剥離の検討は行われておらず、大口径化に伴って生じるであろう問題点を検討し改良する必要があった。改良したプロセスの概念を、図2-8に示す。500°C近傍の低温でまずバッファ層を成長させるが、ここでは塩化アンモニウムが生成する効果が考えられ、微小なGaNが点在している構造となっている。この層を厚くするために、時間を延ばすあるいは原料供給量を増やすなどを試みたが、30nm程度以上に厚くすることは困難であった。そこで、約700°C程度に温度を上げて、さらに成長を行った。そうすると、容易に数100nmのGaN層を成長することができた。この700°Cで成長した層を中間層と呼ぶことにする。図2-9に中間層を成長した後の表面SEM写真を示す。この写真からわかるように中間層を成長した後の表面は平坦でなく、粒状の細かいGaNの集合体になっているように見える。

次に中間層を200~300nm程度成長させた後、1,050°Cまで昇温して、およそ30 μ m/hの成長速度に相当するGaClを供給しながらコアレッセンスを試みた。コアレッセンス成長初期の表面SEM写真を図2-10に示す。このとき注目すべきことは、c軸に配向したナノサイズの結晶が優先的に成長していることである。c軸に成長していることは、成長している結晶粒の上部が六角形であることからわかる。成長が進んでいく様子を図2-11に示すが、c軸配向したGaN結晶同士が会合し、さらに大きな結晶として成長していく。やがて、すべての結晶粒が結合して、平坦なGaNとなる。このように結晶粒が会合していく過程をコアレッセンスという。コアレッセンスが終了したら、GaNの成長速度を上げて厚膜のバルクのGaNを成長させる。コアレッセンスを行っているときの、c軸配向した結晶粒の下部の様子を図2-12に示す。この写真からわかるように、c軸配向したGaN結晶が横に成長していくときに、その間にあるc軸配向していない結晶粒間の隙間はそのままに、乗り越えていくことがわかる。その様子を断面で観察した結果を図2-13に示す。この写真から、コアレッセンスの際に、サファイア基板の上にボイド領域が形成されていることが判る。さらに所定の厚膜までGaNを成長する。

1. サファイア基板の窒化

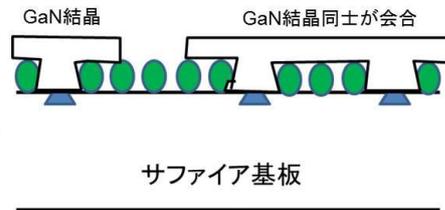


2. 低温及び中間温度でのGaNナノ結晶形成



AIN微結晶上にC軸配向したGaN微結晶
ナノ結晶間には、結晶性の悪いGa₂NとNH₄Cl起因の隙間

3. 高温(厚膜成長と同じ温度)での
コアレッセンス



4. 厚膜Ga₂N成長

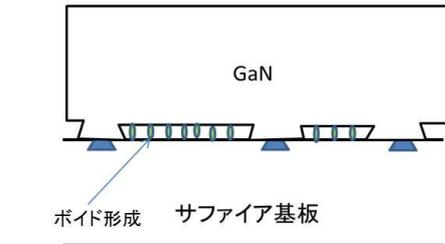


図2-8 改良したEBL法の概念

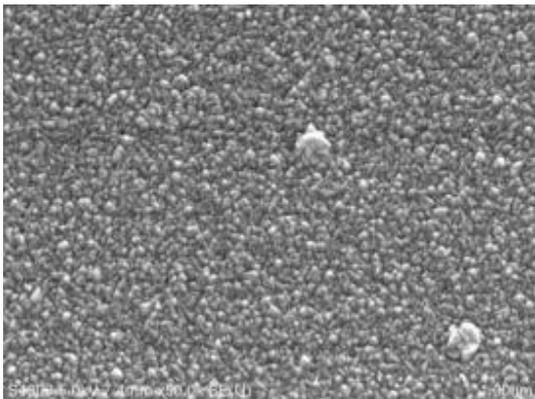


図2-9 中間層表面SEM写真

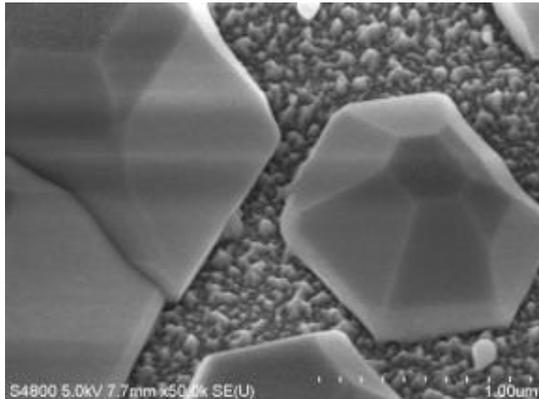
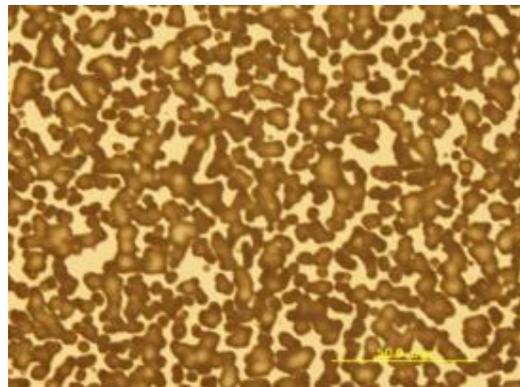


図2-10 コアレッセンス初期
(c軸配向した結晶が選択的に成長)



成長開始後 5分



成長開始後 15分

図2-11 コアレッセンスの進行を示すGa₂N表面顕微鏡写真
(光っている部分が選択的に成長しているc軸配向したGa₂N結晶)

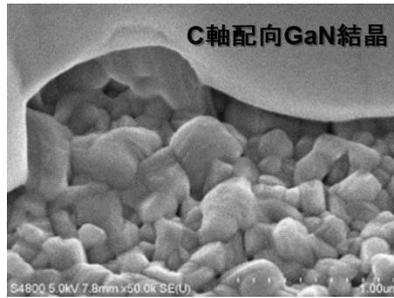


図 2-12 コアレス成長している c 軸配向 GaN 結晶の下部

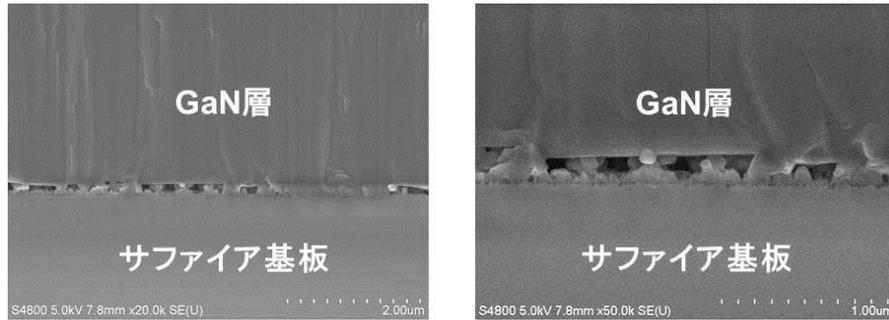
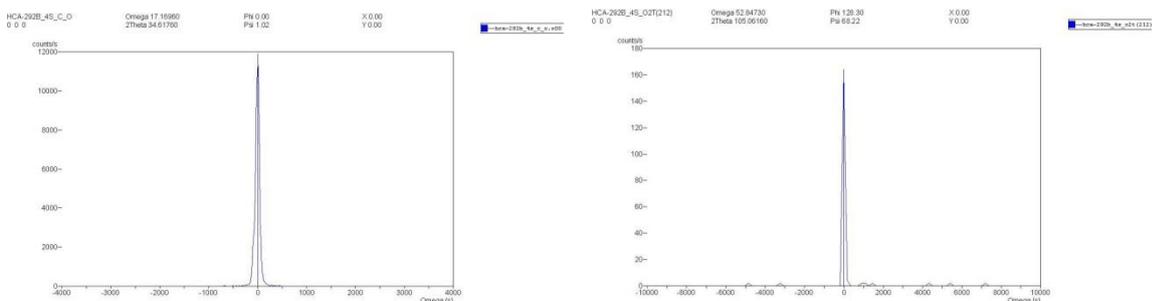


図 2-13 サファイア基板と GaN 成長層界面でのボイド形成

成長温度から室温まで温度を下げる時、このボイドを含む層にサファイア基板と GaN 成長層の間の熱膨張係数差に伴うストレスが集中し、GaN 厚膜層が自然剥離する。しかしながら、均一性が悪かったり、基板外周部で裏側に回り込みが生じると割れが発生し、剥離歩留りが低下する。そこで前節で述べたような均一性を向上させる工夫や、外周部を特殊な材質のリングで覆い、外周部での結晶成長を抑制することで剥離歩留りは向上し、約 80% の剥離歩留りを得ることができた。

3) EBL 法で作成した GaN の品質

EBL 法で作成した GaN の品質を、X 線回折法 (XRD 法)、TEM による転位の観察、電気特性などで評価し、まずは LED 用としての使用に耐えうるかを確認した。図 2-14(a) に、(0002) 回折角に対する X 線回折ピークと、図 2-14(b) に (10-12) 回折角に対する X 線回折ピークを示す。それぞれ回折ピークの半値幅は 80arcsec と、52arcsec である。(0002) での半値幅の値は、目標を軽くクリアしている。再現性も確認しているが、常に (0002) 回折角で 120 arcsec 以下と目標値をクリアしている。



(a) (0002) 回折ピーク

半値幅 80arcsec

(b) (10-12) 回折ピーク

半値幅 52arcsec

図 2-14 EBL 法で作成した GaN (as Epi.) の X 線回折ピーク

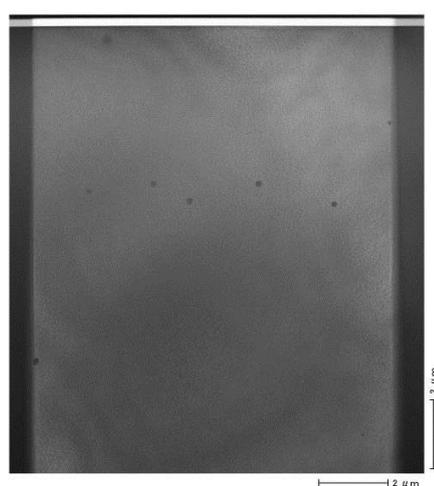
表2-3 アンドープ及びSi ドープ GaN の電気特性

	Dopant	キャリア濃度 (cm^{-3})	Mobility (cm^2/Vs)
Undoped	Non	1.00×10^{17}	1,030
Doped	Si	2.10×10^{18}	360

次に、Si をドーパントとしたn型ドーピングを試みた、ここでの目標は $1\text{-}3 \times 10^{18} / \text{cm}^3$ のドーピングを制御性良く可能にすることである。たとえば $2 \times 10^{18} / \text{cm}^3$ を狙ってドーピングを行ったとき、結果として $(2 \pm 0.5) \times 10^{18} / \text{cm}^3$ の範囲の結果が得られることが望まれる。表2-3にアンドープGaNと、 $2 \times 10^{18} / \text{cm}^3$ を狙ってドーピングを行った場合のHall測定による電気特性を示す。この結果からわかるように、LED基板として利用するために必要な電気伝導性が、キャリア濃度 $10^{18} / \text{cm}^3$ 台が得られて、かつ良好なMobilityが得られ、かつドーピング濃度制御性が十分確保された。

もう一つの重要な品質は、転位密度である。転位密度についてはエッチング法と、TEMによる観察によって評価した。エッチング法により、改良したEBL法で成長したGaNの転位密度は $6\text{-}8 \times 10^5 / \text{cm}^2$ 程度であった。また図2-15(a)に、TEMにより調べた厚膜GaN表面近傍の欠陥の様子を示す。もし転位等の欠陥があるときは図2-15(b)に示すように、転位を観察することができるが、改良したEBL法で作成したGaNでは、 $10 \times 10 \mu\text{m}$ の領域で、転位を探すことは困難であった。このことから、改良したEBL法で成長したGaNの転位密度が、 $1 \times 10^6 / \text{cm}^2$ 以下であることが判った。

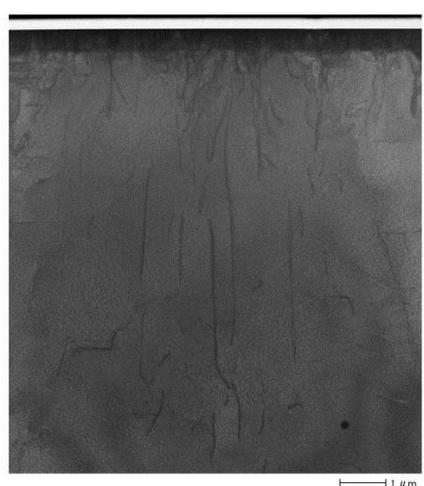
このように、結晶性や電気特性などの観点から、改良したEBL法で成長した自立GaN基板は、LED用のGaN基板として十分な品質を持っていることが明らかとなった。今回の目的は達成したが、より競争力をつけるために、さらに製造能力の高いHVPE装置開発を継続していく必要がある。



試料名: HCA-292B 表面
装置: H-9000NAR 倍率: 15,000 倍
MST-12-112935 IDNo.4828c 加速電圧: 300 kV

Photo. 3-1 MST

(a) 自立 GaN 基板表面近傍



試料名: HCA-256B 表面
装置: H-9000NAR 倍率: 20,000 倍
MST-12-112935 IDNo.4806c 加速電圧: 300 kV

Photo. 2-1 MST

(b) 転位が多い場合の TEM 写真 (参考)

図2-15 GaN 自立基板表面近傍の断面 TEM 写真



図 2-18 試作した研磨装置

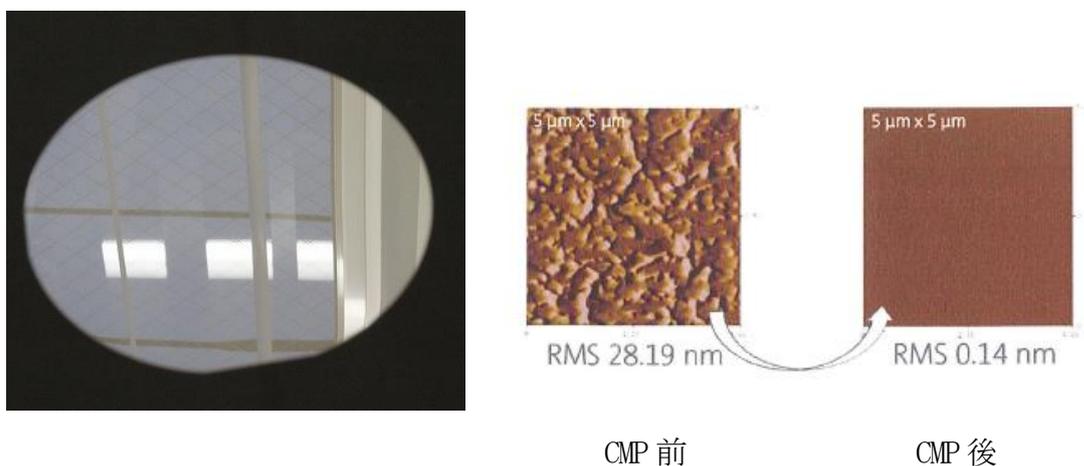


図 2-19 研磨終了後のGaN基板およびその表面SEM写真

図 2-18 に示す研磨装置を組み合わせながら検討を行った。

まず一般的にGaN基板を研磨するシリカ系スラリーを用いて研磨を行った。このとき研磨速度は $0.04 \mu\text{m/h}$ であった。研磨すべき量は $1 \sim 2 \mu\text{m}$ であるため、このスラリーでは研磨に膨大な時間がかかってしまい、研磨コストが膨大である。そこでスラリーの見直しを行った。ベースは同じシリカ系であるが、アルカリ系の添加液を加えpH調整を行うことで、研磨速度を大幅に向上させることができた。得られた研磨速度は、 $0.5 \sim 2.0 \mu\text{m/h}$ であり、研磨プロセス時間を製造に必要な条件まで短くできた。なお本検討に用いた試作した研磨機器を図 2-18 に、また図 2-19 にこのようにして得られたウェーハー写真および表面のSEM写真を示す。CMP後のRMSは 0.14 nm で、極めて良好な表面仕上がりとなっている。

3) KOHによる最終エッチングの検討

鏡面研磨したGaN表面には、主に研削および機械研磨時の機械的ダメージが残っており、LEDを製造する場合の次工程であるMOCVDによる薄膜成長に大きな影響を与えてしまう。そのため表面に残るダメージ層を除去する必要がある。この処理では、エッチング



(a) 全体概観

(b) エッチング槽付近

図 2-20 試作した KOH エッチング装置

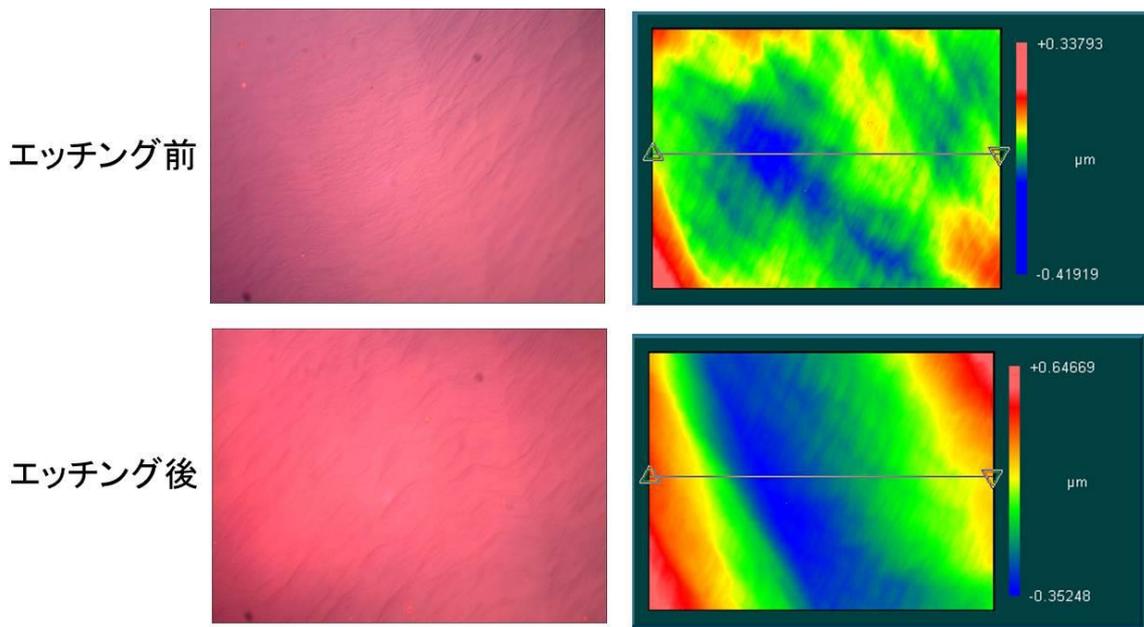
液での化学処理を行う方法と、熱的な処理でダメージ層の結晶性を回復する方法があるが、化学的にエッチング処理で除去する方法を採用した。エッチング液として、いくつか初期に検討したが、KOH溶液を採用した。ただしKOH溶液は危険であるので、自動でエッチング処理を行うことができる装置を開発した。図 2-20 に試作開発したエッチング装置を示す。エッチング温度を自由に選べるように、特に高温でのエッチングにおいては石英もKOHに溶けてしまうので、特殊な材質の金属でエッチング槽を製作した。

まずKOHの濃度であるが、80℃の導電率で1,500mS/cmとなるように管理した。高温で管理しようとしても、測定値がばらつき管理が困難である。この条件でエッチング温度の最適化と、そのときのエッチング速度を確認した。その結果を表 2-4 に示す。エッチング液の温度はフィードバック管理しているが、130℃ではエッチング液の温度が極めて不安定になってしまった。また130℃より高温では表面にピットが発生してしまい、使うことが出来ない。そこでエッチング温度は120℃以下が望ましい。120℃でさらにエッチング速度や、表面状態を検討した結果

- ・Ga 面エッチング速度 : 0.028 μm/h
- ・N 面エッチング速度 : 1.023 μm/h

表 2-4 エッチング温度検討結果

項目	110℃	120℃	130℃	170℃
温度安定性	○	○	×	×
エッチング可否	○	○	○	○
エッチングレート_テンプレート (μm/min)	0.012	0.028	0.031	0.043
Ra_テンプレート (エッチング前) (nm)	0.243 (0.165)	- (-)	0.030 (0.075)	0.015 (-)
ピット	○	○△	△	×



表面顕微鏡写真（400倍） ZYGO評価（200倍）
 図2-21 KOHエッチング表面のSEMおよびZYGOによる評価

であった。また明らかに表面にダメージがある、機械研磨で表面を仕上げた面のエッチング速度は1.5～2倍ほど早くなった。またCMP終了後のエッチング速度は、わずかに早い0.030 μm/h程度で、このことからCMP終了後のダメージは機械研磨の場合と比べ小さいものの、わずかに残っていることが判る。

図2-21にエッチング後の表面のSEM写真と、ZYGOによる平坦性の評価結果を示す。エッチング後の表面は平坦で特にピットも発生せず、平坦性もエッチング前より向上していることが判る。さらに外部に委託してMOCVDによる評価を行ったが、KOHエッチングを行ったGaN基板は、そのままMOCVD工程に投入できることが判った。さらに120℃という当初想定した温度よりも低い温度でエッチングできることが判ったため、石英製のエッチング槽が使用可能となり、大型のエッチング装置の作成も容易になることが判った。

4) 研磨洗浄プロセスの生産ラインの設計

以上述べたように、研磨洗浄工程で必要な技術開発はすべて達成した。今回開発した技術および試作設備をもとに今後さらに生産性が高く、製造コストを下げるラインの設計が必要となる。今回の結果から試算すると、以下の3点を継続検討していく必要がある。

- 同じ枚数のバッチ処理を考えた場合、研削工程や化学研磨（CMP）工程のタクトタイムに対して、機械研磨工程が3倍程度のタクトタイムとなる。従って他の工程に対して、機械研磨工程は3倍の機器を持つように設計する。
- 研磨洗浄コストを下げていくことも重要であるが、そのためには現在の3枚バッチシステムではなく、5枚以上をバッチ処理できる研削・研磨する装置を開発する。
- 化学研磨（CMP）工程で使用するスラリーの価格が高いため、スラリーの使用効率を上げる工夫や、再生プロセスを開発する。

このような開発を継続することで、4インチGaN基板の研削・研磨・洗浄プロセスのコストを8～10千円/枚程度に低減し、さらにコスト競争力を高めることが可能となる。

2-3 サファイア再利用プロセスの開発

1) サファイア再研磨洗浄技術の開発

結晶成長が終了しGaN厚膜層が自然剥離した後、サファイア基板は多くの場合割れずに残る。製造コストを下げるためには、そのサファイアを再利用することが望ましい。そこでサファイアを再研磨洗浄するプロセスの検討を行った。

その際最も大きな問題は、サファイア基板表面にGaN残渣が残っていることである。GaNは硬いためにそれを通常のサファイア表面の機械研磨法で研磨しようとする、長時間かかってしまう。そこで前節で述べたKOHによるGaNのエッチングを行うこととした。この方法によりGaN残渣は簡単に除去できた。そのあとのサファイア表面研磨は、一般的なサファイア機械研磨技術を適用することができた。精密研磨量は数 μm である。

サファイアを精密機械研磨した後の表面にはダメージが残っている。それを除去する方法として熱濃リン酸によるエッチングを試みた。まずエッチング温度に対して、エッチング速度を確認した。その結果240°C以下ではほとんどサファイアはエッチングされず、エッチングには240°C以上が必要であることが判った。240°Cでのエッチング速度は、1.1~1.2 $\mu\text{m}/\text{h}$ であった。図2-22にエッチング後の表面に対する評価結果を示す。エッチング後も特に顕著な面荒れなどは発生しておらず、この方法でサファイア再研磨面の仕上げを行うことができた。

2) サファイア再研磨技術のコスト試算

以上によりサファイア再利用プロセスの開発は達成することができたので、製造コストの見積もりを行った。原料費と人件費を合計すると、サファイア1枚当たりのコストは約1万円になる。それに若干の装置償却費を加えると、確実に一枚当たり1万円を超える製造コストとなることが判った。開発を開始した時の4インチサファイア基板の価格は15~17千円であったので、サファイア価格が従来のものであれば、サファイア再利用プロセスは採用できたが、現在は7千円以下と大幅に下落しており、サファイア再利用プロセスを製造の中に採用してもメリットを生まないことが判明した。このため技術的にも、また当初のコスト目標も達成はできたが、現状ではサファイア再利用プロセスを生産に採用することは見送らざるを得ないとの結論に至った。

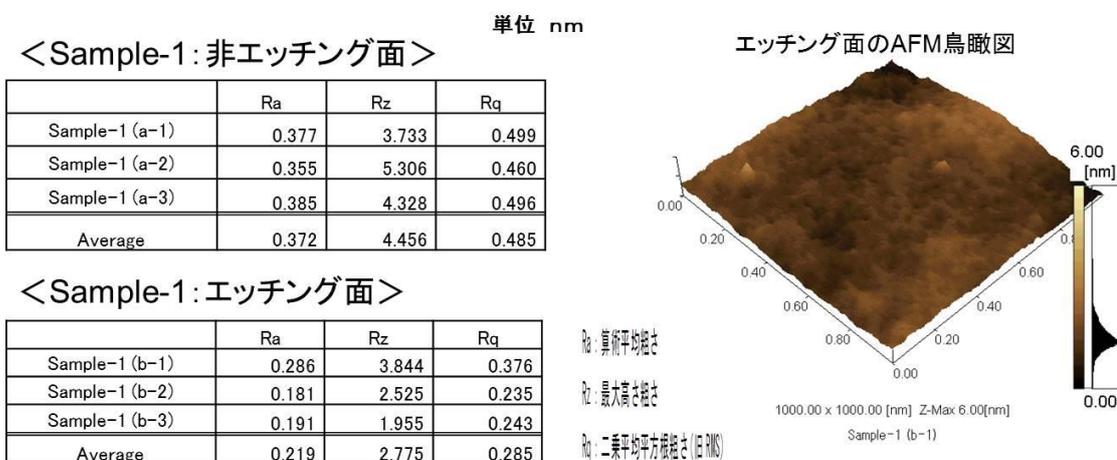


図2-22 熱濃リン酸によりエッチングしたサファイア表面

最終章 全体総括

3-1 実施研究開発事業の総括

本研究開発は、「高機能化学合成に係る技術」の高度化により、GaN白色LEDの高機能化、高付加価値化に必要とされながらも、まだ市場が要求するコストで製造することが困難なGaN基板の結晶成長技術を確立することと、「位置決めに関する技術」の高度化で、GaN基板表面を研磨し、次工程で問題なく使用できる研磨技術をコストも含め確立することであった。前章までに述べたように、本研究開発では当初設定した技術目標、コスト目標を達成することが出来た。これが実現できた背景には

- ・化学合成を考慮しながら、大型の結晶成長装置試作に成功した
- ・化学合成を考慮しながら、最適の結晶成長条件の確立に成功した
- ・位置決め技術を考慮しながら、研磨装置の試作に成功した
- ・位置決め技術、化学合成技術を考慮しながら、従来より、精密でかつ高速な化学研磨技術（CMP）を確立した

ことが上げられる。

3-2 今後の事業化について

1) ビジネスモデル

当初下記の二つのビジネスモデルを考えていた。

- ・ライセンスモデル：開発した装置および製造方法を事業会社にライセンスし、最初のライセンス費用とランニングロイヤリティで事業収益を確保する。
- ・開発した技術をもとに資金調達を行い、資金を提供するパートナーとの合弁の形で製造会社を設立、本格的なGaN基板製造を実施する。

研究開発着手時は、前者が有力なビジネスモデルであったが、いったんライセンスした時、その後の技術漏洩の防止や、製造数量の把握など収益を維持するに困難な問題が付きまとう。また日本以外の会社にライセンスしたとき、日本国内での雇用の確保につながらない場合も考えられる。従って、最終的には製造会社設立モデルでの交渉を開始している。現時点では、まだ交渉は終了していないが、交渉継続し早期の製造会社設立を図っていく予定である。尚、その際海外資本の会社との合弁であっても、国内に製造拠点は設立予定である。

2) 今後の開発計画

製造会社を設立し、基板生産製造を実施する時、当然競合各社とのコスト競争は熾烈になってくる、そのためコストの削減に向けた生産技術開発（製造装置、製造補材、治工具開発）は、永遠の課題である。具体的なコスト削減に向けた開発については、下記項目について継続的に実施していく必要があると考えている。

- ・さらに大型で効率の良い結晶成長装置の開発。
- ・同時により多数の基板を研削研磨できる装置開発。う
- ・CMP工程で用いるスラリーの使用効率向上。

平成26年度内での実現化に向け、上記方向での開発計画を現在策定推進中である。