

平成25年度 戦略的基盤技術高度化支援事業

「大形・高品質・低価格 VB 法サファイア結晶基板の開発・実用化」

研究開発成果等報告書

平成26年3月

委託者 東北経済産業局
委託先 株式会社信州TLO

目次

第1章 研究開発の概要	1
1-1 研究開発の背景・研究目的及び目標	1
(1) 研究開発の背景	1
(2) 研究目的	2
(3) 研究目標	2
1-2 研究体制	5
(1) 研究組織（全体）	5
(2) 管理体制	5
(3) 研究員及び管理員	6
(4) 協力者（アドバイザー）	7
1-3 成果概要	7
(1) 研究の概要	7
(2) 実施日程及び内容	8
1-4 当該研究開発の連絡窓口	8
第2章 本論	9
1. 大形・高性能高融点金属るつぼの開発への対応	9
1-① 鍛造材、焼結材、塗布成形材等の比較検討	9
1-② 高密度化技術の検討	9
1-③ 切削加工技術の検討	9
1-④ 溶接加工技術の検討	9
2. 高密度アルミナ粉凝縮焼結体形成技術の開発への対応	10
2-① アルミナ原料の純度とマイクロポイド密度の検討	10
2-② アルミナ原料の焼結条件・焼結密度とマイクロポイド密度の検討	10
2-③ 大形結晶用焼結アルミナ原料の高充填率技術検討	10
3. 高収率・高歩留まり育成種子結晶の提案と技術確立への対応	11
3-① 各種形状・寸法の種子結晶と単結晶育成プロセス検討	11
3-② 最適種子結晶の提案と実証	12
4. 直径 6-inch サファイア結晶製造と基板加工プロセスの高度化・ 実用化への対応	12
4-① 大形・高性能高融点金属るつぼによる大形結晶育成の実証	12
4-② 高密度焼結アルミナ原料による大形結晶育成の実証	12
4-③ 最適種子による種子付け・単結晶製造プロセスの実証	13
4-④ 自動育成プロセスの検討・実用化	13
4-⑤ 育成結晶の切断・研磨技術を高度化	13
最終章 全体総括	14

第 1 章 研究開発の概要

1-1 研究開発の背景・研究目的及び目標

(1) 研究の背景

次世代照明の省エネルギー化に向けて、LED 産業が爆発的な進展・広がりを見せている。それに伴い、LED 製造の基幹材料であるサファイア結晶基板の高品質化、大口径化、低価格化が至近・必須課題となり、国内外の多くの企業・研究機関が、各種の結晶製造技術（図 1）の開発に注力を傾けている。しかし、LED 製造企業側からの「LED 製造に要求される結晶品質（「高品質」と定義）を維持した、大口径（直径 4-、6-inch）基板」の早期実現への強いニーズにも拘わらず、2011 年現時点での市場供給の主流は未だ直径 2-inch 基板であり（図 2）、上記課題の解決の困難さが示唆されている。

本事業の提案機関である NEL クリスタル、信州大学、信州 TL0 は、不二越機械工業を加えて、「地域イノベーション創出研究開発事業」（関東経済産業局：H21～22 年度）の支援を得て、「高機能・大口径サファイア単結晶製造技術の研究開発」を実施し、応力フリー冷却垂直ブリッジマン（SFC-VB）技術を提案・確立し、VB 法大型結晶製造装置を開発・実用化し、LED 基板に必要な c 軸方位成長直径 4-inch サファイア結晶基板の試作に成功した。同時にこの支援事業で研究開発した技術を基盤にして、今後の LED 製造

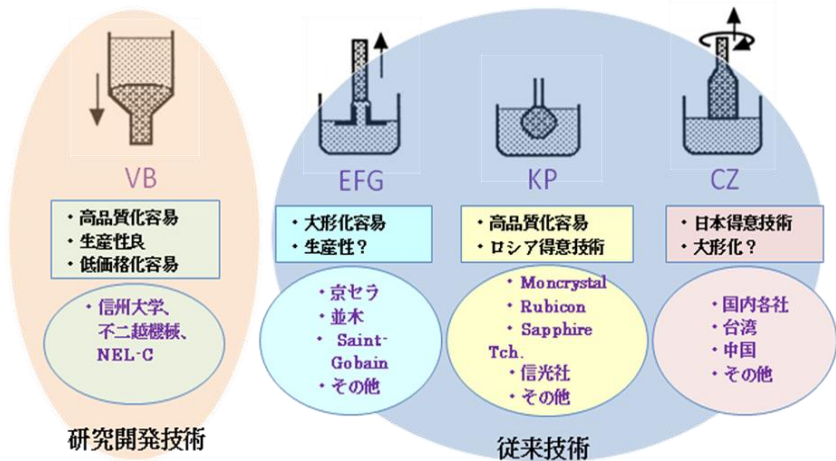


図 1：研究開発したVB技術と従来技術の比較

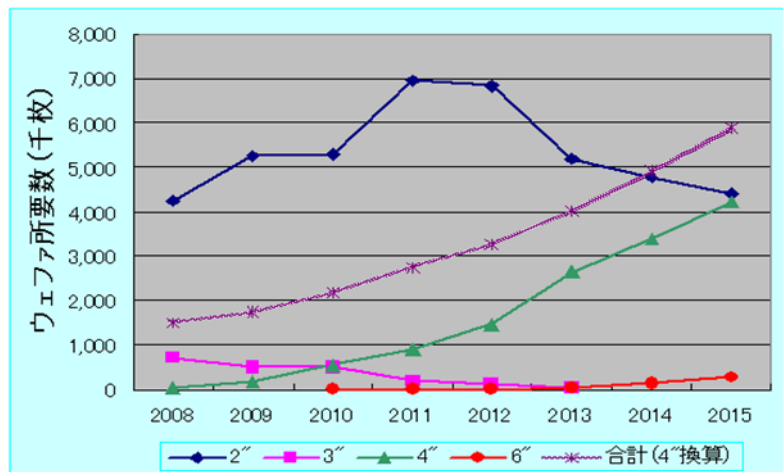
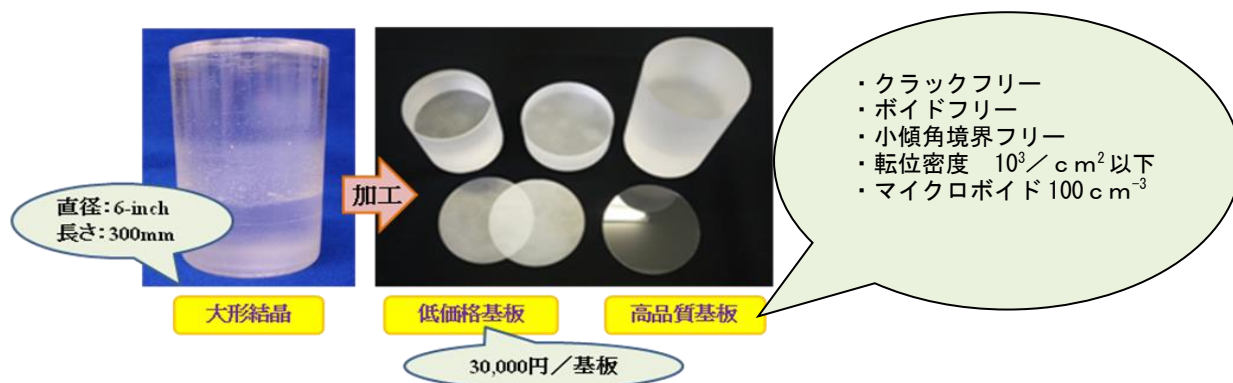


図 2：サファイア基板の必要枚数の年推移（予測）

のニーズに応えるためには、SFC-VB 技術の必須要素技術となる << 1 >> 大形・高性能高融点高硬度金属るつぼの開発、高品質結晶を高収率で育成するための << 2 >> 高密度アルミナ粉凝縮焼結体形成技術の開発、上記 << 1 >>、<< 2 >> に適合する種子結晶からの << 3 >> 高収率・高歩留まり育成種子結晶の提案と技術確立、上記 << 1 >>、<< 2 >>、<< 3 >> の成果を適用した << 4 >> 直径 6-inch サファイア結晶製造と基板加工プロセスの高度化・実用化、などが新たな課題であることを明らかにした。

(2) 研究目的

本研究課題の目的は、LED 用 GaN エピ基板に適用する大口径・低価格・高品質サファイア結晶基板を実現するため、大形高性能高融点金属るつぼの開発、高密度アルミナ粉凝縮焼結体形成技術の開発、高収率・高歩留まり育成種子結晶の提案と技術確立を行い、これら要素技術を総合化して、直径 6-inch サファイア結晶製造と基板加工技術を高度化・実用化することである。これにより、次世代 LED 照明産業の振興と省エネルギー社会の実現に大きく寄与することができる。



(3) 研究目標

本研究課題では、H26 年に本格的な生産が予想される LED 直径 6-inch GaN エピタキシャル基板に適用する高品質・大口径・低価格サファイア結晶基板の実現を目標に、【1】大形・高性能高融点金属るつぼの開発、【2】高密度アルミナ粉凝縮焼結体形成技術の開発、【3】高収率・高歩留まり育成種子結晶の提案と技術確立を行い、これら要素技術を総合化して、【4】直径 6-inch サファイア結晶製造と基板加工プロセスを高度化・実用化することであり、具体的には下記の技術目標を達成する。

【1. 大形・高性能高融点金属るつぼの開発への対応】

H21-22 年度に実施した地域イノベーション創出研究開発事業（関東経済産業局）「高機能・大口径サファイア単結晶製造技術の研究開発」（以下「従来研究開発」とする）において提案・開発した SFC-VB 技術に適用する Mo、W あるいは両者の合金材料などからなる金属るつぼに関する技術課題は、〔1〕育成結晶に見合ったるつぼの形状・寸法であること（図 3）に加えて、

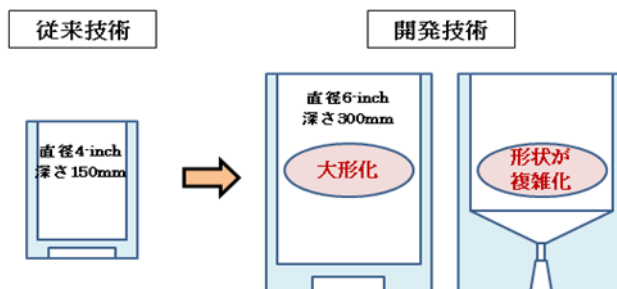


図 3：大形・高性能高融点金属るつぼの開発

〔2〕成長結晶中に発生する小傾角境界、クラック、割れ等の結晶欠陥発生に密接に関係するるつぼ材料の密度および〔3〕アルミナ融液と接触界面を形成するるつぼ内壁の加工表面状態が巨大気泡の発生や小傾角境界発生に強く関係することが判明している。

本検討課題では、①-1 鍛造材、焼結材、塗布成形材等の比較検討、①-2 高密度化技術

の検討、①-3 切削加工技術の検討、①-4 溶接加工技術の検討を行い、直径 6-inch、長さ 300mm 以上のサファイア結晶育成に適用できる高融点金属るつぼを開発する。提案・開発するるつぼの材料の密度は W 材料で 19.0g/cm^3 以上の高密度化を目標とする。

【2. 高密度アルミナ粉凝縮焼結体形成技術の開発への対応】

サファイア結晶育成に適用するアルミナ原料の純度や焼結状態は成長結晶の品質・特性に密接に関係する。またるつぼ内融液がほぼ同形状で、体積収縮を伴い結晶化する VB 法においては、るつぼに充填する原料の形状やかさ比重は育成結晶の収率に直接関係する生産性要因である。また、原料純度および焼結密度が成長結晶中のマイクロボイド発生に密接に関係することが従来研究開発の検討結果から明らかになっている。

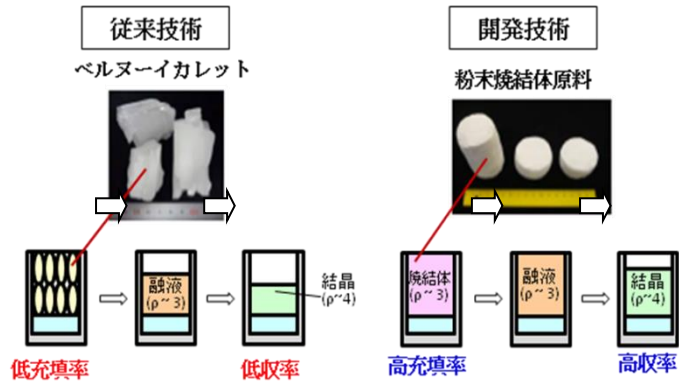


図4：高密度焼結アルミナ原料の開発

本検討課題では、②-1 アルミナ原料の純度とマイクロボイド

密度の検討、②-2 アルミナ原料の焼結条件・焼結密度とマイクロボイド密度の検討、②-3 大形結晶用焼結アルミナ原料の高充填率技術検討（図4）を行い、アルミナ原料純度の最適化、マイクロボイド要因を抑制した焼結密度 3.0g/cm^3 以上の原料作製条件の確立、るつぼ容積に対する原料充填率 90%以上の焼結原料作製手法の確立を目標とする。

【3. 高収率・高歩留まり育成種子結晶の提案と技術確立への対応】

結晶育成に適用するるつぼサイズ（容積）に対する利用可能な結晶サイズ（体積）の割合（収率）および結晶育成回数に対する利用可能な特性・品質の単結晶取得の割合（歩留まり）の向上は、結晶製造生産性向上、結晶基板の低価格化に直接関係する。従来研究開発では、育成結晶の直径と同じサイズの種子結晶（「定径種子」とする）を適用したため、収率は低く、新規種子結晶の検討が今後の課題として残されていた。また、生産技術としての結晶育成の歩留まりに関する検討は、新規開発の SFC-VB 技術としては未検討であった。

本検討課題では、③-1 各種形状・寸法の種子結晶と単結晶育成プロセス検討（図5）、③-2 最適種子結晶の提案と実証を行い、80%以上の育成結晶の収率および 90%以上の単結晶育成歩留まりの実現を目標とする。なお、本検討課題は、信州大学において直径 2-inch 用小形 VB 装置を適用してまず基本技術を確立し、次に NEL クリスタルにおける大形 VB 装置への適用を図る。

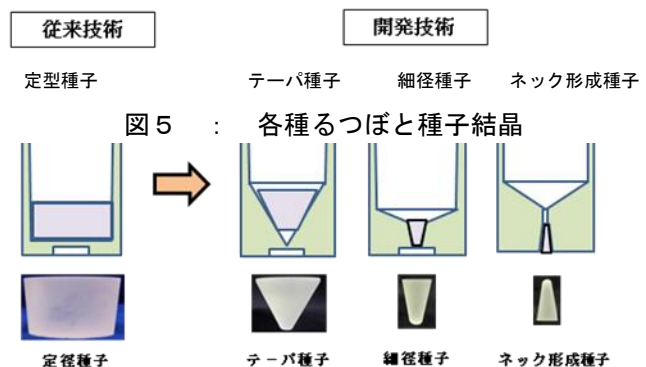


図5：各種るつぼと種子結晶

信州大学保有の高周波加熱垂直ブリッジマン炉（HF-VB 炉）による直径 2-inch の結晶育成実験を通して、直径 4-、6-inch の大形結晶育成に適した種子形状とそれによる結晶育成条件を提案することを目標に、各種材質、形状・寸法のるつぼおよび種子結晶を適用した結晶育成条件を検討する。

【4. 直径 6-inch サファイア結晶製造と基板加工プロセスの高度化・実用化への対応】

検討課題【1】～【3】で得られた知見・技術を適用し、④-1 大形・高性能高融点金属るつぼによる大形結晶育成の実証、④-2 高密度焼結アルミナ原料による大形結晶育成の実証、④-3 最適種子による種子付け・単結晶製造プロセスの実証・実用化を進める。またこれらの技術を総合化し、④-4 自動育成プロセスの検討・実用化を図る。さらに、直径 6-inch GaN エピタキシャル用サファイア基板を実現するため、④-5 育成結晶の切断・研磨技術を高度化する。

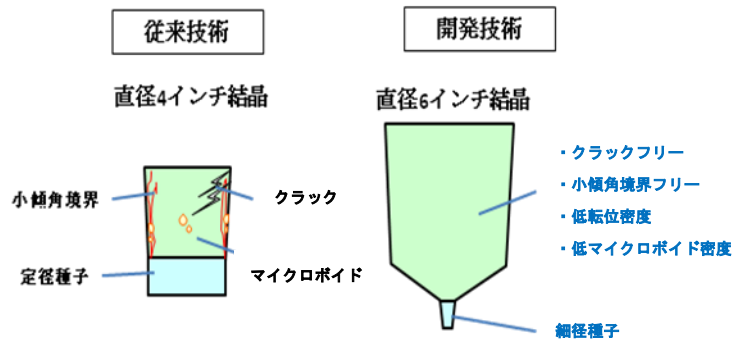


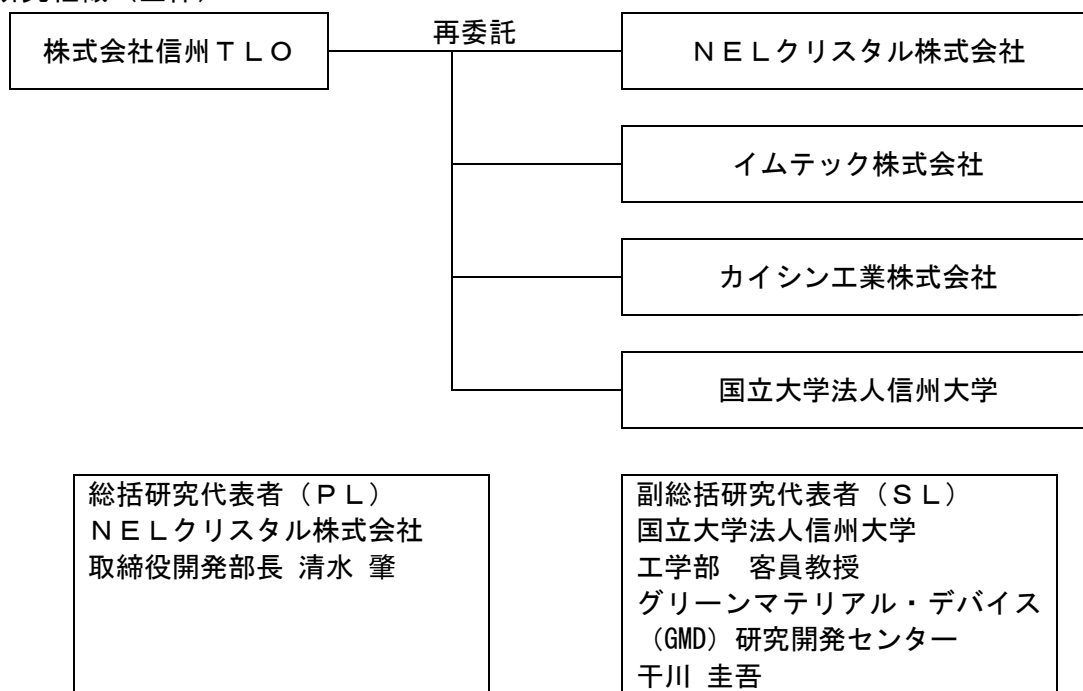
図6：大形・高品質サファイア結晶の開発

実現する直径 6-inch サファイア基板は、クラック・小傾角フリー、マイクロポイド密度 100cm^{-3} 以下、転位密度 10^3 個/ cm^2 以下の高品質化を、製造価格は 30,000 円/枚以下を目標とする（図6）。

1-2 研究体制

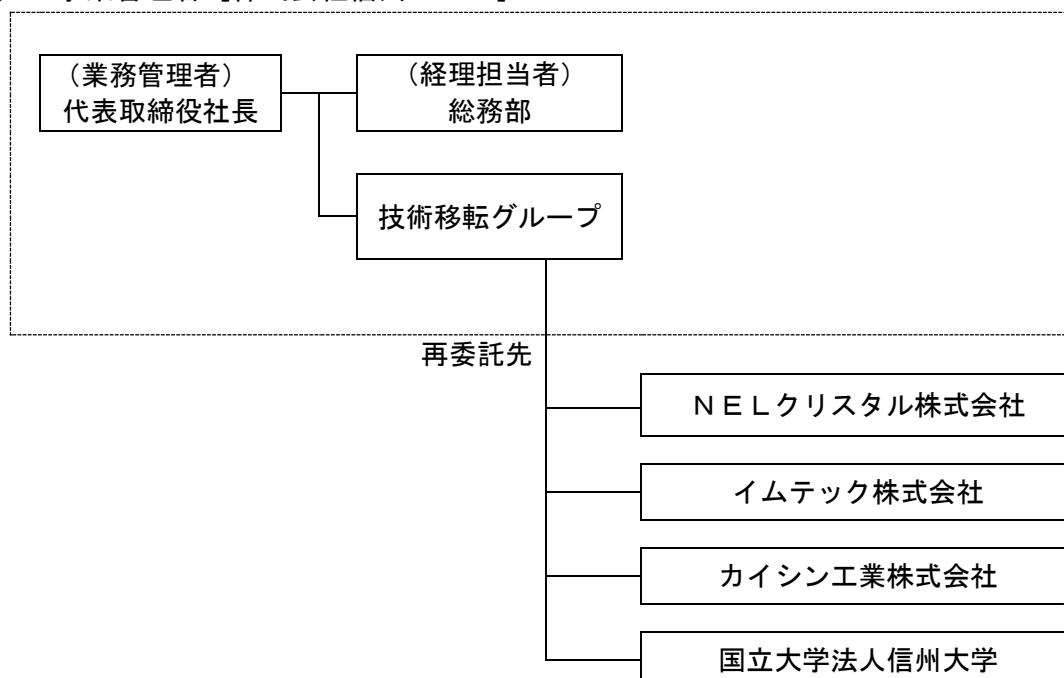
(研究組織・管理体制、研究者氏名、協力者)

(1) 研究組織 (全体)

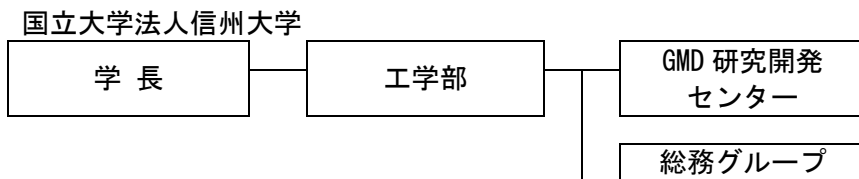
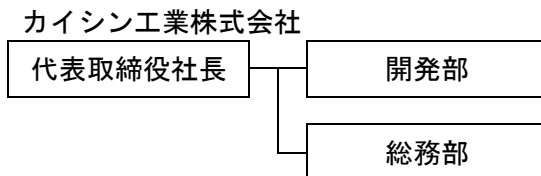
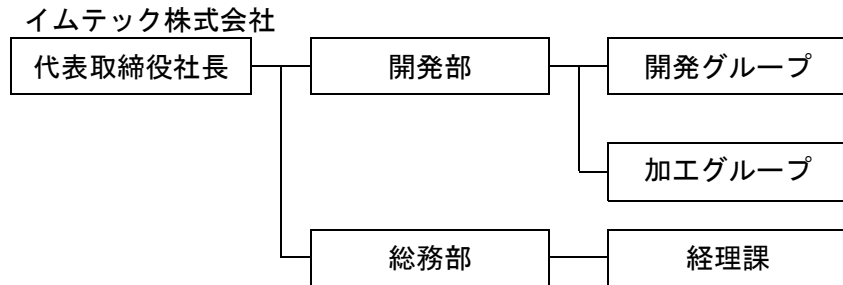


(2) 管理体制

1) 事業管理者 [株式会社信州TLO]



2) 再委託先



(3) 研究員及び管理員

1) 事業管理者 (管理員)

株式会社信州 TLO

氏名	所属・役職	実施内容 (番号)
大澤 住夫	取締役 技術移転グループ部長	⑤
横山 友美	総務部	⑤

2) 再委託先 (研究員)

NE Lクリスタル株式会社

氏名	所属・役職	実施内容 (番号)
清水 肇	取締役 開発部長	③-2, ④ PL
菅野 和也	サファイアグループ リーダー	③-2, ④
木村 英一	サファイアグループ	③-2, ④

イムテック株式会社

氏名	役職・所属	実施内容(番号)
江口 功	代表取締役社長	①-2, ①-3, ①-4, ③-1, ④-1
大川 武	加工グループ	①-2, ①-3, ①-4, ③-1, ④-1

カイシン工業株式会社

氏名	役職・所属	実施内容(番号)
羽田 守	開発部長	②-2, ②-3, ③-1, ④-2
宮下 充貴	開発部 技師	②-2, ②-3, ③-1, ④-2
斉藤 義一	開発部	②-2, ②-3, ③-1, ④-2

国立大学法人信州大学

氏名	役職・所属	実施内容(番号)
干川 圭吾	工学部 GMD 研究開発センター 客員教授	①-2, ①-3, ①-4, ②-2, ②-3, ③, ④-1, ④-2, ④-3, ④-4
太子 敏則	工学部 GMD 研究開発センター 准教授	S L ①-2, ①-3, ①-4, ②-2, ②-3, ③, ④-1, ④-2, ④-3, ④-4

(4) 協力者 (アドバイザー)

氏名	役職・所属	実施内容
白川 達男	長野県中小企業振興センター	研究推進の支援・指導

1-3 成果概要

(1) 研究の概要

大型・高性能高融点金属るつぼの開発では、6-inch 用で高密度 (19.0 g/cm^3) の製作が可能となった。また、 $2,000^\circ\text{C}$ 以上で使用し変形したるつぼでも再加工出来る技術を開発し、るつぼの長寿命化に道を開いた。

高純度アルミナ粉凝集焼結体形成技術の開発では、6-inch 用の高密度 (3.5 g/cm^3) の原料を作製し、結晶育成でも問題のないことを確認した。

育成した結晶は、小傾角境界等の育成の問題点を回避し、研磨加工したウエハが LED 使用に可能な品質であることを確認した。

(2) 実施日程及び内容

実施内容	H23年度	H24年度	H25年度
①大形・高性能高融点金属るつぼの開発への対応 ①-1 鍛造材、焼結材、塗布成形材等の比較検討		←→	
①-2 高密度化技術の検討	←→	←→	←→
①-3 切削加工技術の検討		←→	←→
①-4 溶接加工技術の検討		←→	←→
②高密度アルミナ粉凝縮焼結体形成技術の開発への対応 ②-1 アルミナ原料の純度とマイクロポイド密度の検討	←→	←→	
②-2 アルミナ原料の焼結条件・焼結密度とマイクロポイド密度の検討		←→	←→
②-3 大形結晶用焼結アルミナ原料の高充填率技術検討	←→	←→	←→
③高収率・高歩留まり育成種子結晶の提案と技術確立への対応 ③-1 各種形状・寸法の種子結晶と単結晶育成プロセス検討	←→	←→	←→
③-2 最適種子結晶の提案と実証		←→	←→
④直径 6-inch サファイア結晶製造と基板加工プロセスの高度化・実用化への対応 ④-1 大形・高性能高融点金属るつぼによる大形結晶育成の実証	←→	←→	←→
④-2 高密度焼結アルミナ原料による大形結晶育成の実証		←→	←→
④-3 最適種子による種子付け・単結晶製造プロセスの実証・実用化	←→	←→	←→
④-4 自動育成プロセスの検討・実用化			←→
④-5 育成結晶の切断・研磨技術の高度化		←→	←→

1-4 当該研究開発の連絡窓口

問合せ担当者 株式会社信州TLO 大澤 住夫
 住所 : 〒386-8567
 上田市常田3-15-1
 信州大学繊維学部内 SVBL 棟4階
 電話 : 0268-25-5181
 FAX : 0268-25-5188
 E-mail : info@shinshu-tlo.co.jp

第2章 本論

【1. 大形・高性能高融点金属るつぼの開発への対応】

直径 6-inch、長さ 300mm 以上のサファイア結晶育成に適用できる大形高融点金属るつぼを開発する。提案・開発るつぼの材料の密度は W 材料では $19.0\text{g}/\text{cm}^3$ 以上の高密度化を目標とする。

るつぼの形状に合わせた CIP 処理により部材の使用量を少なくし、HIP 処理を併用することにより高密度 ($19.0\text{g}/\text{cm}^3$) で大型のるつぼの作製が可能となった。また、高温処理後 ($2,000^\circ\text{C}$ 以上) の切削加工も可能となり、溶接工法を用いた 2-inch 径のるつぼの加工が可能となった。

①-1 鍛造材、焼結材、塗布成形材等の比較検討

素材粉末からインゴット材製造プロセスが十分確立されていない材料について、鍛造材、焼結材、塗布成形材について、大形化、加工性、材料密度等の視点から比較検討し、有効なるるつぼ材を探索する。

本研究開発において、①-2 高密度技術、①-3 切削加工技術、①-4 溶接加工技術の有効性が確認でき、るつぼ大型化については焼結材を高密度に処理することが重要であることがわかった。

①-2 高密度化技術の検討

①-1 で検討する W 材について、高圧下高温加熱処理 (HIP) 処理を行い、処理前の密度 ($17.0\sim 18.5\text{g}/\text{cm}^3$ 程度と予想) と処理後の密度を調査し、 $19.0\text{g}/\text{cm}^3$ (理論密度: $19.3\text{g}/\text{cm}^3$) 以上の高密度化技術を探索する。

るつぼの形状に合わせた CIP 処理により部材の使用量を少なくし、HIP 処理を併用することにより高密度 ($19.0\text{g}/\text{cm}^3$) で大型のるつぼの作製が可能となった。

本手法を用い、6-inch のるつぼを作製し再現性を確認した。

①-3 切削加工技術の検討

①-1 で検討する W 材および製造プロセスと密度の問題が無い国内産 Mo 材について、るつぼ製作に必要な切削加工の精度、加工表面特性を検討する。また、るつぼの再利用・長寿命化を視野に、 $2,000^\circ\text{C}$ 以上の高温使用後の結晶化が進んだ Mo、W 材料の再加工技術も検討する。

高温処理後 ($2,000^\circ\text{C}$ 以上: サファイア育成に利用したるつぼ) の切削加工が可能であることがわかった。また、るつぼが使用回数とともに変形することがわかり、るつぼの変形メカニズムを検討し、変形モデルを提案し、るつぼの変形モデルの検証と、メンテナンス技術の確立を行なった。

①-4 溶接加工技術の検討

切削加工に加えて溶接加工が可能になると、複雑構造のるつぼの実現や、材料の節減に伴う価格の大幅低減が見込まれるが、高融点金属である Mo、W の溶接加工の実績は

少ない。溶接箇所の機密性、機械的強度の視点からアーク溶接、電子ビーム溶接等の溶接技術と溶接箇所の特性を検討する。

鍛造 W 材と焼結 W 材についての溶接加工を実施し、該溶接加工した 2-inch 径るつぼによるサファイア融解・凝固実験（②-2 参照）により溶接部でのクラック発生やサファイア融液漏れなどの有無、溶接の確実性、安定性などを観察・評価し、溶接工法が可能であることがわかった。

大形るつぼに適用する焼結材、薄板材による溶接加工の再現性確認と、サファイア育成での実用性の検討を行なうため、溶接るつぼを作製し、結晶育成を想定した一連の加熱処理工程を進めた。

今回試作したるつぼでは、融液が漏れ出す可能性があり、サファイア育成に適用できないことがわかった。一方、今後さらに溶接技術の向上が図れば、溶接るつぼの実用化の可能性は残されていると考える。

【2. 高密度アルミナ粉凝縮焼結体形成技術の開発への対応】

アルミナ原料純度の最適化、マイクロボイド要因を抑制した焼結密度 $3.0\text{g}/\text{cm}^3$ 以上の原料作製条件の確立、るつぼ容積に対する原料充填率 90%以上の焼結原料作製手法の確立を目標として、以下の項目を検討する。

アルミナ粉体の成型に 1 方向性プレスによる脱気を伴う凝縮と静水圧の組み合わせを用い、 $1,450^\circ\text{C}$ 以上の高温で処理すると比重 $3.5\text{g}/\text{cm}^3$ まで高密度化することが出来た。また、6-inch の結晶育成に利用し、問題ないことを確認した。

②-1 アルミナ原料の純度とマイクロボイド密度の検討

アルミナ原料の純度（3N、4N、5N）とマイクロボイドの発生相関を調べ、 10^2 個/ cm^3 以下のマイクロボイド密度の結晶育成に要求されるアルミナ原料の純度を明らかにする。また成長速度とマイクロボイドの関係も明らかにする。

育成速度 $3\text{mm}/\text{hr}$ 以下において、高純度アルミナ 99.99%（4N）以上アルミナ原料で、ボイドの発生が無いことを確認した。

②-2 アルミナ原料の焼結条件・焼結密度とマイクロボイド密度の検討

マイクロボイド発生要因はアルミナ焼結原料に内在すると考えられることから、その成形・焼結条件およびその結果として示される焼結密度とマイクロボイド密度の関係などを検討し、低減条件を探索・検証する。

脱気機構を持つ一方向性プレスと静水圧下プレス方式による成形材料を用いて、 $1,500^\circ\text{C}-3\text{Hr}$ の焼結で 6-inch 用の高密度材料を得ることができた。

②-3 大形結晶用焼結アルミナ原料の高充填率技術検討

大形るつぼへの原料の充填率の向上を実現し、結晶育成の高収率化を図るため、るつぼの形状に整合した焼結原料形状制御や原料焼結密度の増加を検討する。

本検討で得られた知見成果は、④-2 高密度焼結アルミナ原料による大形結晶育成の実証検討へ適時反映し、直径 6-inch サファイア結晶製造プロセスの高度化・実用化を支える。

直径 4-、6-inch 結晶育成用高充填率原料作製技術の検討し、従来一般に行われている静水圧下プレス方式に加えて金型を用いる一方向プレス方式（脱気機構）を組み合わせることで、高密度化を達成した。

【3. 高収率・高歩留まり育成種子結晶の提案と技術確立への対応】

80%以上の育成結晶の収率および 90%以上の単結晶育成歩留まりの実現を目標として、以下の項目を検討する。なお、本検討課題は、信州大学において直径 2-inch 用小形 VB 装置を適用して基本技術の検討・確立し、次に NEL クリスタルにおける大形 VB 装置への適用を図る。

信州大学保有の高周波加熱垂直ブリッジマン炉（HF-VB 炉）による直径 2-inch の結晶育成実験を通して、直径 4-、6-inch の大形結晶育成に適した種子形状とそれによる結晶育成条件を提案することを目標に、各種材質、形状・寸法のるつぼおよび種子結晶を適用した結晶育成条件を検討する。

本検討で明らかにした知見成果は、【1. 大形・高性能高融点金属るつぼの開発】、【3. 高密度アルミナ粉凝縮焼結体形成技術の開発】、【4. 6-inch サファイア結晶製造プロセスの高度化・実用化の検討】へ効果的に反映させる。

各種の 2-inch 径結晶育成技術を実施し、ネック形成方式が品質と安定性で有利であることを確認した。6-inch 径結晶育成にネック形成方式を採用することとし、6-inch るつぼの試作し、結晶育成を実施した。ネック形成方式の課題を細径種子で解決できるか引き続き育成・評価を行った。

③-1 各種形状・寸法の種子結晶と単結晶育成プロセス検討

従来研究開発で確立した(1)定径種子に加えて新規に(2)テーパ種子(3)細径種子を提案検討し、単結晶種子付け、その後の結晶形状制御単結晶育成技術の確立を行う。

信州大学保有の HF-VB 炉を適用して実施した、(1)定径種子に加えて、新規に(2)テーパ種子、(3)細径種子(4)ネック形成手法の 4 種の種子結晶からの直径 2-inch 結晶育成基礎実験結果を基に、各種形状・寸法の種子結晶と最適単結晶育成プロセスの検討を行った。また、それらの中から小傾角境界の除去や安定育成に関しネック形成手法が優れていることが判明し、6-inch 用るつぼ設計を着手した。

ネック形成手法による 6-inch 育成試験に加え、ネック形成手法の生産に向けた育成プロセスの確認を行なった。結晶育成の適正な温度勾配を確認するため、「サファイア融解・凝固装置」を改造（加熱電源・制御装置及び下部チャンバー・加熱機構を追加）し、2 ヒータによる適正温度分布の確認と制御方法について検討した。

③-2 最適種子結晶の提案と実証

③-1の検討により最適種子形状を提案し、それに基づく高収率・高歩留まり結晶育成プロセスの確立・検証する。

本検討で得られた知見成果は、【1. 大形・高性能高融点金属るつぼの開発】および④-3 最適種子による種子付け・単結晶製造プロセスの実証検討へ反映させる。

ネック形成手法による結晶育成法を新たに提案し、当該方法による種子付け及び単結晶育成の条件検討を行い、結晶の品質やコスト面で有利であることがわかった。また、2-inchのるつぼを用い種子のテーパ角度と小傾角境界の発生について解明した。

【4. 直径 6-inch サファイア結晶製造と基板加工プロセスの高度化・実用化への対応】

検討課題①～③で得られた知見・技術を適用し、サファイア結晶製造と基板加工プロセスの高度化・実用化を図る。実現する直径 6-inch サファイア結晶は、クラック・小傾角フリー、転位密度 10^3 個/cm² 以下、マイクロボイド密度 10^2 個/cm³ 以下の高品質化を目標とし、加工基板の製造価格は 30,000 円/枚以下の低価格化を目標とし、以下の項目を検討する。

4-inch 径のるつぼでの変形に対する追加工の有効性を確認し、高密度アルミナ粉末で LED に使用出来る品質の結晶ができることを確認した。また、6-inch の切断方法を検討し、問題無く切断できることを確認した。

6-inch の事業化に向けた、課題の抽出と課題解決を行なった。

④-1 大形・高性能高融点金属るつぼによる大形結晶育成の実証

検討課題①の成果を反映させて、直径 6-inch、長さ 300mm サファイア結晶製造プロセスを実証する。

4-inch 用高密度るつぼを用い、育成した結晶をウェハに加工し、LED メーカーの評価を受け、LED 用途に使用できる品質であることを確認した。しかし、このままのスケールアップでは、種子結晶の入手先や入手価格およびるつぼの購入費用等で将来的に問題になることがわかったので、種子結晶及びるつぼ費用の削減に効果的なネック形成手法により、6-inch の結晶育成を行なった。

④-2 高密度焼結アルミナ原料による大形結晶育成の実証

検討課題②の成果を反映させて、原料充填率 90%以上の結晶育成プロセスとマイクロボイド密度 10^2 個/cm³ 以下のサファイア結晶製造を実証する。

焼結密度が 3.5g/cm^3 の高密度アルミナ原料が得られ、4-inch 結晶育成に適用した。

本年度は、平成 24 年度の成果を 6-inch 結晶育成に適用し結晶の評価を行なった。また、②-2 アルミナ原料の焼結条件・焼結密度とマイクロボイド密度の検討および②-1 アルミナ原料の純度とマイクロボイド密度の検討にて確認したノンドープ結晶やドープ結晶の 2-inch の評価を引き続き行い、4-inch 及び 6-inch の結晶育成に情報提

供した。

④-3 最適種子による種子付け・単結晶製造プロセスの実証

検討課題③の成果を反映させて、クラック・小傾角フリー、転位密度 10^3 個/cm² 以下の直径 6-inch、長さ 300mm 結晶を 80%以上の収率でかつ 90%以上の単結晶歩留まりでの製造プロセスを実証する。

1 段テーパるつぼや 2 段テーパるつぼと種結晶の形状寸法について 4-inch をベースに適正值のデータを集め寸法等の検証を行い、一段テーパによる小傾角境界の範囲を小さくすることに成功した。しかしながら小傾角フリーとするためにはネック形成手法しかないことが判明した。また、平成 24 年度に購入した「粉末原料評価装置」を用いて欠陥発生の原因となりうる介在物がバブルとるつぼ材からなるインクルージョンであることを解明した。

④-4 自動育成プロセスの検討・実用化

④-1、④-2、④-3の結果を反映させて、温度制御プログラム、るつぼ移動速度・るつぼ回転速度に加えて、一定時間の安定保持後のるつぼ移動など、次のプロセスへの移行制御も含めた完全自動化を検討し、実用化する。

平成 24 年度まで、1 ヒータによる育成実験を行い、育成プロセスの構築を行ったが、更なる安定生産と長尺化のために 2 ヒータによる育成制御技術が必須であることが判明した。

改造した「サファイア融解・凝固装置」を用い、ネック形成手法の育成プロセスの確認をした。また、これらの結果を 6-inch 結晶育成に情報提供した。

④-5 育成結晶の切断・研磨技術を高度化

育成した直径 6-inch、長さ 300mm 結晶の切断・研磨プロセスの高度化を図る。なお、結晶の切断・研磨に当たって、結晶の割れや基板のそり抑制対策として、必要に応じてインゴットアニール、ウエハアニール技術の検討・確立を図る。

4-inch のインゴットを用い、切断研磨の 6-inch 化の問題点の把握を行った。数種類の切断方法を検討し、6-inch の切断においては、ダイヤモンドブレードソが最適であると判断した。

育成した 6-inch 結晶をウエハ加工し、切断研磨技術の妥当性を確認した。

最終章 全体総括

【1. 大形・高性能高融点金属るつぼの開発への対応】

平成 24 年度までに開発した高密度大形るつぼの技術に対し、今年度は使用の経過に伴い発生する表面の荒れや結晶粒の固着に伴う歩留低下に対し、ウエットブラスト処理を採用し、6-inch のるつぼでも対応出来ることが判明した。また、溶接技術に取り組んだが VB 法に適する品質を得ることはできなかった。

【2. 高密度アルミナ粉凝縮焼結体成型技術の開発への対応】

平成 24 年度までに得た高密度アルミナ凝縮結晶体作成については、さらに詳しく詰めて、型プレス+CIP 成型品を 1,500°C で 3Hr 焼成すれば十分であることも判明した。また、6-inch 用高密度アルミナ粉凝縮結晶他も作製出来た。さらに、HFVB 炉や RHVB 炉を用いてポイドの発生について検討した結果、巨大気泡、光散乱体の低減にはるつぼの表面状態が大きく影響することが分かり、マイクロポイドに関しては細種子るつぼ形状が有効であると分かった。また、減圧育成も巨大気泡に関し効果があることも分かった。

【3. 高収率・高歩留まり育成種子結晶の提案と技術確立への対応】

平成 24 年度でネック形成るつぼが 6-inch 結晶育成に適しているとの提案に沿い炉体を整備し、育成試験を始めた。育成試験を続けていくとネック部での気泡の発生がるつぼの表面状態の変化により発生することが分かりウエットブラストの提案となった。また、そのリスクを低減する為に 2-inch の試験結果から細種子るつぼの提案をし、種結晶の大きさを $\phi 30\text{mm}$ 以上とすることで良好な結果が得られることが、判明し 6-inch るつぼへの応用を検討した。

平成 25 年度は 6-inch をネック形成るつぼで行ったがるつぼの使用に伴いネック部の空間が広がる 2-inch と同様な結果となった。細種子るつぼに切り替えた育成試験で今年度は終了した。この際、るつぼの形状変化が、種付けに必要な温度分布を変化させることが明確になった。また、結晶育成の高度化と自動化の検討のために 2-inch のサファイア融解・凝固装置炉体を改造し適正温度勾配の設定が出来た。また、自動運転も可能となった。

【4. 直径 6 インチサファイア結晶製造と基板加工プロセスの高度化・実用化への対応】

平成 24 年度の 2-inch の成果で得られたネック形成 6-inch るつぼで育成試験を進めた。この際に 2-inch るつぼで発生したネック部の空間の広がりによる種結晶の切り離れが起こり、ウエットブラスト等の処理が必要であることが検証出来た。また、増径部分の角度を 2-inch の実績と経済効率を考え 140 度としたが育成速度が予想以上に早く、

制御を容易にするためには 120 度に近づける方が良いと判明した。また、6-inch 結晶で良好な品質を得られる降下速度は 0.5mm/h r であることが判明した。最後に細種子るつぼの投入をしたが、るつぼ形状の違いによる温度分布の違いに影響され育成位置が参考にならないことが判明した。この対策には 2 ヒータ方式が有効であることは、前項でも述べている。

6-inch の加工仕様について調査した。定径るつぼによって育成した 6-inch 結晶のウェハ加工を行い入手した加工仕様と結晶品質に問題がないことを確認できた。