LED 用サファイヤ単結晶基板の超精密 CMP 加工技術とその PSS 加工プロセスへの応用*

Ultra-precision CMP Process of Sapphire Substrate for LEDs and Its Application for PSS Fabrication

會田英雄** 青田奈津子** 木村 豊** 川又友喜** 小山浩司**
山崎 努*** 土肥俊郎***

Hideo AIDA, Natsuko AOTA, Yutaka KIMURA, Yuki KAWAMATA, Koji KOYAMA,
Tsutomu YAMAZAKI and Toshiro DOI

Key words sapphire substrate, LED, CMP, PSS

1. は じ め に

今年 2012 年は最初の赤色発光ダイオード (Light Emitting Diodes: LEDs) が Nick Holonyak, Jr. によって報告されてからちょうど 50 年にあたる。以来半世紀の時間が流れたわけだが、その間に LED は現代の省エネルギー化社会を語る上で必要不可欠なデバイスにまで成長を遂げた。LED を一躍時のデバイスにしたのは 1992 年の青色 LED の発明、そしてその応用ともいえる 1999 年の白色 LED の実用化であり、その発表は今でも記憶に新しい。これらは 20 世紀最後の大発明とも称されている。この発明によって LED の応用範囲は一気に拡大した。単なる表示デバイスとしての役割を脱し、液晶ディスプレイ用バックライト、一般照明、自動車用ヘッドライトなどの応用製品が次々に市場に投入され始めたのである。このような LED ブームは現在でも全く衰えを知らない。

一般的に青色/白色 LED はサファイヤ基板上に窒化物半導体薄膜をエピタキシャル成長させることによって製造されているが、上述のような急騰する LED 需要に伴い、LED そのものの製造技術のみならず、それらを支える製造消耗品の重要性も近年ますます高くなっている。中でも下地基板として重要な役割を果たすサファイヤ基板が関心を集めている。サファイヤ基板口径を例にみれば、それがプロセスライン構築の考え方に直接的に関与していることは言うまでもなく、これはひいては LED 製造コストへ影響を与えるわけである。したがってサファイヤ基板の口径拡大は市場において最も関心の高い話題の 1 つであろう。最近では 6 インチサファイヤ基板を用いた LED の製造プロセスも量産化が開始されており、今後も大口径化がますます加速していくと考えられる。

またサファイヤ基板の表面状態は、その上に成長させる窒化物薄膜の品質に直接的影響を及ぼすため、極めて重要なパラメータである。一般にエピタキシャル成長によって基板表面に薄膜成長する場合、基板表面には原子レベルの平坦性が要求される。サファイヤ基板の場合、コロイダルシリカスラリーを用いた Chemical Mechanical Polishing (CMP) によって原子平坦かつ無じょう乱表面が得られることが良く知られている。しかしながら、サファイヤは化学的に安定かつダイヤモンドに次ぐ硬度をもつ物質が故に、その CMP は容易ではない。そのため CMP レート改善にはいまだに多くの課題が残っている。

さらに最近では基板表面に数ミクロン程度の凹凸を設けたパターンサファイヤ基板 (Patterned Sapphire Substrate: PSS) が通常のサファイヤ基板の代わりに用いられるようになってきている。基板と薄膜界面での光の反射を促進し LED 薄膜から外部に出る光の量を増大させる技術であり、LED の高輝度化に貢献している。エピタキシャル成長に用いられる原子レベル平坦面と光反射のためのマイクロパターンとが基板表面に混在し、さらに基板表面に形成するパターンそのものはエピタキシャル成長に影響を及ぼさないように配慮する必要があるため、PSS 加工では高度な基板処理技術が要求される。パターン加工はフォトリソグラフィとエッチングを用いて行われるのが一般的でありパターン加工そのものはエッチング技術に依存するが、一方で形状品質はエッチング加工前の基板の表面品質にも依存するため、ここでもまた CMP による原子レベルの基板処理が求められる。

以上のように LED 製造を下地基板として支えるサファイヤ基板とその表面加工技術としての CMP の重要性が高まっているといえる。そこで本稿では、コロイダルシリカ CMP によるサファイヤ基板の原子レベル平坦表面の形成、窒化物半導体成長に対する原子平坦表面の必要性、コロイダルシリカ CMP 技術の課題と今後の展望について解説する。また LED の高輝度化に向け重要度の増す PSS に

*原稿受付 平成 24 年 8 月 20 日

**並木精密宝石株式会社 NJC 技術研究所 (東京都足立区新田 3-8-22)

***九州大学産学連携センター連携部門 (福岡県春日市春日公園 6-1)

ついても、一般的な PSS 加工工程を紹介するとともに、PSS 加工における CMP の重要性を述べる。また最近では CMP によって PSS のパターン形状を制御することも可能となっており、PSS パターン形状制御技術としての CMP の新しい応用例を紹介する。

2. サファイヤ基板製造工程における CMP の役割

2.1 サファイヤ基板のコロイダルシリカ CMP

高品質な窒化物薄膜のエピタキシャル成長が可能な基板表面は、一般的に原子レベル平坦を達成していることが必要である。このような表面状態を達成するために基板加工の最終段階において適応される加工が CMP である。CMP は機械的作用と化学的作用とを融合させた研磨方式であり、その代表ともいえるのがコロイダルシリカスラリーを用いた CMP である。粒子径が数十ナノメートルのシリカ粒子とそれを分散させたアルカリ溶剤とが基板表面と相互作用することによって、原子レベルの表面除去が得られる。図 1 は一般的な加工条件においてコロイダルシリカスラリーで CMP を行ったサファイヤ基板表面の AFM 像である。表面粗さ R_a は 0.08 nm が得られている。筆者らはサファイヤ基板の表面が原子レベル平坦面を達成した場合の表面粗さに対して理論的な考察を行っており、その結果、理論的な R_a 値が 0.055 nm となることを報告している¹⁾。これらの理論的考察と図 1 に示す AFM 測定により求めた実際の表面粗さは極めてよく一致しており、コロイダルシリカ CMP による原子レベルの平坦化を実証することができている。

また筆者らは、窒化物薄膜成長に対するサファイヤ基板の原子レベル平坦面の必要性について、図 2 に示すようなサファイヤ基板と窒化物薄膜の界面における結合モデルを提案することで、1つの考察を行っている²⁾。図 2 の界面モデルは、サファイヤと GaN との間の C 軸長のわずかな違い (0.043 nm) がサファイヤ基板と GaN 薄膜のオフ角度に影響を及ぼす、つまり界面結合に影響すること示している。これは見方を変えれば、表面に存在する 0.1 nm 以下の凹凸であっても界面における窒化物薄膜の成長モデルに影響を及ぼすことを示唆するものであり、サファイヤと窒化物薄膜成長の視点から見ても原子レベル平坦に仕上げられたサファイヤ基板の重要性が見いだされているといえる。詳細については参考文献を参照されたい。

2.2 コロイダルシリカ CMP の今後の展望

コロイダルシリカスラリーを用いた CMP によってサファイヤ基板の原子レベル平坦が達成されているわけだが、冒頭で紹介した通り、サファイヤは化学的に安定かつダイヤモンドに次ぐ硬度をもつ物質が故に、その CMP は容易ではない。CMP レート改善にはいまだに多くの課題が残っており、今後はサファイヤ基板の加工レートを向上し短時間での加工を実現していくことが必要である。そもそもコロイダルシリカスラリーを用いた CMP の歴史は古く、ガラスや Si などのさまざまな素材に対する研究報告がな

図 1 コロイダルシリカ CMP によって加工したサファイヤ基板の表面 AFM 像 (a) $5 \times 5 \mu\text{m}^2$ エリア表面 AFM 像および (b) A-A' 断面

図 2 サファイヤ基板と GaN の界面の結合モデル

され、実産業界においても適応実績が数多い。そのためコロイダルシリカスラリーは市販品として容易に入手できる極めて汎用性の高い研磨剤の一つといえる。しかしながら、市販されているコロイダルシリカスラリーを用いた際のサファイヤ基板に対する加工特性はスラリーごとに大きく異なっている。図 3 にその一例を示す。市販されているコロイダルシリカスラリーを同一条件下で使用した際のサファイヤ基板の加工レートの違いを調べたものである。なおスラリーは製造メーカーや型番のみ異なるものの、いずれも粒子径および濃度がそれぞれ 40 nm 、 $20 \text{ wt\%}$ のアルカリ性コロイダルシリカスラリーを比較している。同一条件下で研磨テストを実施しているにもかかわらず、加工レートに大きな差が生じていることがわかる。このことは逆に言えばサファイヤ基板に対して最適なコロイダルシリカ

図3 各種コロイダルシリカスラリーによるサファイヤ基板のCMPレートの違い

スラリーの解がまだ見つかっていないことを示唆しているとも捉えることができる。

筆者の土肥はコロイダルシリカスラリーによる研磨加工のメカニズムとして、局所的なゲル化に伴うダイラタンスー現象効果を提案しており、その結果を裏付けるようにスラリーのゲル化状態を調整する添加剤をスラリー中に加えることで加工レートに変化が生ずることを報告している³⁾。したがって、スラリー中に添加する微量の添加剤を、被加工物であるサファイヤとの相互作用にも着目しながら最適化していくことで、真に最適なサファイヤ基板用のコロイダルシリカスラリーを生み出すことが可能であろう。これらの取り組みを積極的に実施していくことによって、加工レートの改善が期待される。

3. PSS による LED の高輝度化

3.1 PSS の基礎原理とパターン形状

LED では InGaN を主とした発光層から光が発せられるわけであるが、実際のところ発せられた光を 100% 有効に活用できているわけではない。最新の報告によると、現在でも約 30% の光が LED 素子の外部に取り出すことができず、内部で消滅してしまうことが問題として取り上げられている⁴⁾。これは GaN の屈折率が 2.4 と高く、光を取り出すためのエスケープコーン角度が約 25 度と極めて狭いためである。このような問題を解決し LED の高輝度化に向け近年脚光を浴びる技術の 1 つに、PSS を用いた LED の製造技術がある。表面に数ミクロン程度の微細な凹凸加工を施したサファイヤ基板を用いて窒化物薄膜成長を行うことにより、基板と薄膜界面での光の反射を促進する効果が得られ、LED の輝度が向上する。PSS に用いられるパターン形状としては、図 4 に示すような半球型、コーン型、台形型などがある。エピタキシャル成長の観点からいえば、台形型 PSS に比べ半球型やコーン型 PSS の方が薄膜成長を制御しやすいといわれている。台形型の場合、パターン上部とパターン間との両方から薄膜成長が生じ、両方からの成長が合体する部分、特に台形のエッジ部分でボイ

図4 代表的 PSS のパターン形状 (a) 半球型, (b) コーン型, および (c) 台形型

図5 PSS 加工フロー

ドや転位が発生しやすいため、薄膜成長プロセスをうまくチューニングし良好な膜が得られるようにしなければならない。このようにパターン形状は窒化物薄膜成長に対して影響を及ぼしやすいため、パターン形状は薄膜成長プロセスとの相性を考慮して決定されている。

3.2 PSS 加工方法

一般的な PSS はフォトリソグラフィーとエッチング技術によって加工される。図 5 は PSS 加工フローを示したものである。エッチングにはドライ方式とウェット方式のいずれかが用いられ、前者では塩素系のガスが、後者では熱硫酸/熱リン酸が用いられるケースが多く、方式によりマスク素材の選択などが異なってくる。当然エッチングレートにも差があるわけだが、最も大きな差は形状制御性と大口径基板での製造コストであろう。ドライエッチングは任意形状を作製することが可能であるのに対し、ウェットエッチングは結晶構造に基づく異方性エッチングのため、得られるパターン形状が台形型に限定される。そのため薄膜成長においては難易度の高い基板となる。

一方製造コスト面ではウェットエッチング方式に軍配が上がる。ドライエッチングではチャンバーのサイズが限定されていることから 1 バッチで処理できる基板枚数に限界があるのに対し、ウェットエッチングではエッチング溶液

図 6 6 インチ基板のバッチ処理も可能な量産型のウェットエッチングバス (IMTEC 社製)

を入れるためのウェットバスを大型化しやすく、1 バッチあたりの基板枚数を容易に増加することができるためである。参考までに実用化されている熱酸対応大型エッチングバスを図 6 に示す。エッチング方式による処理能力の違いは、大口径化基板では特に顕著となる傾向にある。このように、エッチング方式によって得られるパターン形状や製造コストが大きく異なることに留意する必要がある。

3.3 PSS 加工におけるエッチング加工前の基板表面状態の影響

窒化物薄膜成長に対して PSS を用いる場合、窒化物薄膜成長は基板の平坦部からスタートする。したがって基板平坦部には通常の基板と同じように原子レベル平坦面が要求される。PSS ではエッチング加工を行うが、エッチング前の基板状態がエッチング後の基板品質に影響を与えることが分かっている。エッチング前の基板状態として、① CMP を全く行わずダイヤモンド砥粒による加工で仕上げた基板、② CMP は行ったものの加工が不十分である基板、③ 十分な CMP により原子レベル平坦面が得られている基板、以上の 3 種類の基板に対してフォトリソグラフィとウェットエッチング加工によりパターンを形成した例を図 7 に示す。いずれの基板を用いてもパターンの形成は確認されているが、平坦部すなわち窒化物薄膜が成長する部分の表面粗さに違いが生じていることがわかる。窒化物薄膜成長に必須の原子レベル平坦面が得られたのは、十分な CMP が実施された基板を用いた場合のみである。このようにエッチング加工により表面にパターンを施す PSS であっても、エッチングの前工程において事前に原子レベル平坦面を達成しておくことが肝要であり、PSS が注目される中であっても CMP 加工による事前の表面仕上げの重要性は変わらない。

3.4 PSS パターン形状制御への CMP の応用

PSS 加工においては、前述のようにエッチング方式の違いによるメリットおよびデメリットが存在する。総合的視点に基づくエッチング方式の詳細比較は他へ譲ることとす

図 7 エッチング前の基板状態の PSS 加工への影響① CMP を行っていない基板、② CMP が不十分な基板、および③ CMP を十分に行った基板

図 8 CMP 加工を施したウェットエッチング PSS

るが、ここでは形状制御性の乏しさというウェット方式の欠点を克服し、製造コスト面でのウェット方式の優位性を生かすための 1 つのアイディアとして、パターン形状制御技術としての CMP の応用事例を紹介する。

図 8 はウェットエッチングで作成した台形型 PSS に対して CMP を施した例である。加工には Sinmat 製 CMP スラリー (CMF-11) を用い、パットにはスウェードパットを用いた。加工後の形状は依然として台形型に近いものの、パターン上部の平坦部が曲面を有するように変化していると同時に、エッジが除去されていることが確認できる。そのため、台形型 PSS への薄膜成長を困難にする要因であるパターン上部およびパターン間との双方からの薄膜成長を抑制できる効果が期待できる。

筆者らは山口大学の只友一行教授の協力のもと CMP を施したウェットエッチング PSS への窒化物薄膜の成長テストを行い、その効果の検証も行っている。図 9 は、ウェットエッチングにより作成した台形型 PSS および CMP を行ったウェットエッチング PSS 上へ成長した窒化物薄膜の基板-薄膜界面の断面 SEM 像である。CMP を行わない台形型 PSS では、パターンエッジ部に GaN 膜の異常成長が確認されているのに対し、CMP を行った PSS では異常成長が認められておらず、ウェットエッチングにより作成した PSS への CMP 処理の効果が立証されたといえる。これはウェットエッチング PSS の弱点である形状制御性における課題をクリアし、ドライエッチング PSS に比べ

図9 PSS上に成膜したGaN膜の断面SEM像 (a) ウェットエッチングによる台形型PSSおよび (b) CMPをしたウェットエッチングPSS

た製造コスト面での利点を有効活用するために、CMP技術を応用させた一例であり、実用化に向けて期待の高い技術であると考えられる。

4. 終わりに

LED用下地基板として用いられるサファイヤ基板のCMP技術の現状と将来展望について筆者らの研究を中心に述べた。サファイヤ基板はコロイダルシリカスラリーを用いたCMPによって原子レベルの平坦性が得られているわけだが、本稿で紹介したようにサファイヤ加工に対し最適化されたコロイダルシリカスラリーはまだ開発途上にある。加工メカニズムに着目しスラリーへの添加剤を調整していくことで、加工効率の高い研磨プロセスが達成され、サファイヤ基板の製造コストの削減、ひいてはLED製造の低コスト化につながるであろう。

また加工環境の制御といった全く新しい概念に基づく加工手法を導入していくことも、加工能率を向上しコストダウンを目指す上で重要である。紙面の都合で割愛したが、筆者の土肥らは密閉型ベルジャーCMP装置を用いた加工手法を提案している。サファイヤをはじめ近年脚光を浴びる難加工素材であるSiC、GaNといった素材に対しても加工レートの上昇が確認されており、注目を集めている。詳細については参考文献^{5)~7)}を参照されたい。

さらに本稿では近年注目を集めるPSSについても着目し、その製造方法を紹介するとともに、CMPの新たな応用技術として、PSSパターン形状制御におけるCMPの有効性を示した。微細パターンを精密制御し窒化物のエピタキシャル成長に対して最適なパターンを得ることに成功しており、新しい応用展開として実用化に向けた検討がスタートしている。今後の展開に期待していただきたい。

参考文献

- 1) H. Aida, T. Doi, H. Takeda, H. Katakura, S.-W. Kim, K. Koyama, T. Yamazaki and M. Uneda: Ultraprecision CMP for Sapphire, GaN, and SiC for Advanced Optoelectronics Materials, Curr. Appl. Phys., 12 (2012) S41.
- 2) H. Aida, S.-W. Kim, K. Sunakawa, N. Aota, K. Koyama, M. Takeuchi and T. Suzuki: III-Nitride Epitaxy on Atomically Controlled Surface of Sapphire Substrate with Slight

Misorientation, Jpn. J. Appl. Phys., 51 (2012) 025502.

- 3) T.K. Doy: Colloidal Silica Polishing Based on Micromechanical Removal Action and Its Applications, Sensors Mater., 3 (1998) 153.
- 4) 只友一行: LEDに関わる加工技術の現状と課題将来展望, 第1回窒化物半導体デバイスに関わる超精密加工プロセス研究会講演資料.
- 5) T. Doi, A. Philipossian and K. Ichikawa: Design and Performance of a Controlled Atmosphere Polisher for Silicon Crystal Polishing, Electrochem. Solid-State Lett., 7, 8 (2004) G158.
- 6) T.K. Doi, S. Watanabe, H. Doy, S. Sakurai and D. Ichikawa: Impact of Novel Bell-jartype CMP Machine on CMP Characteristic of Optoelectronics Materials, Int. J. Manufacturing Sci. Technol., 9 (2007) 5.
- 7) 土肥俊郎, 山崎努, 会田英雄: ベルジャー型研磨装置によるガラス研磨技術と難加工材料への適応, 機械技術, 60, 5 (2012) 33.

會田英雄

2000年青山学院大学大学院修士課程修了。並木精密宝石(株)NJC技術研究所にてサファイヤの結晶成長・基板研磨・マイクロパターニング、III族窒化物薄膜成長、窒化物基板の超精密加工などの技術開発に従事。現在、並木精密宝石株式会社共同研究所副所長。窒化物半導体デバイスに関わる超精密加工プロセス研究分科会(日本機械学会)副査。博士(工学)(九州大学)。

青田奈津子

2005年横浜市立大学大学院修士課程修了。並木精密宝石(株)NJC技術研究所にてサファイヤ基板の微細加工(PSS)技術、CMPを応用したPSSのパターン形状制御技術、基板の形状制御技術開発などに従事。現在、同研究所チーフ。

木村 豊

2009年岩手大学大学院博士後期課程修了。並木精密宝石(株)NJC技術研究所にてサファイヤ基板の微細加工(PSS)技術開発およびCMPを応用したPSSのパターン形状制御技術の開発に従事。博士(工学)(岩手大学)。

川又友喜

2010年法政大学大学院修士課程修了。並木精密宝石(株)NJC技術研究所にて耐熱マグネットの開発を担当。現在はサファイヤ基板微細加工(PSS)技術の開発およびCMPを応用したPSSのパターン形状制御技術の開発に従事。

小山浩司

2001年横浜市立大学大学院修士課程修了。並木精密宝石(株)NJC技術研究所にてダイヤモンドカンチレバー開発に従事。現在は難加工物質の超精密加工プロセスを中心にその応用加工技術開発に従事。同研究所アシスタントマネージャ。

山崎 努

1999年埼玉大学教育学部卒業。(株)東京精密にてCMPプロセス、ステルス(レーザ)ダイシングなどに関する研究開発に従事した後、2009年より九州大学産学連携センター学術研究員。最近ではHDD用ガラス基板およびオプトエレクトロニクス用難加工基板材料の超精密平坦化加工に関する研究開発に従事。博士(工学)(九州大学)。

土肥俊郎

1973年山梨大学大学院修士課程修了。超精密加工とその応用に関する研究。最近ではグリーンデバイス用難加工材料の加工プロセスに関する研究開発に従事。主な著書として「詳説・半導体CMP技術」(工業調査会)、「Advances in CMP/Polishing technologies」(ELSEVIER)など多数。日本学術振興会第136委員会委員長。九州大学産学連携センター教授(特任)。工学博士(東京大学)。