

令和 3 年 6 月 1 日現在

機関番号：14401

研究種目：挑戦的研究（萌芽）

研究期間：2019～2020

課題番号：19K22145

研究課題名（和文）結晶面方位変調テンプレートをを用いた高スループットμLED製造プロセスの開発

研究課題名（英文）Development of High-Throughput Micro-LED Fabrication Process Utilizing Crystallographic Orientation Modulated Templates

研究代表者

片山 竜二（Katayama, Ryuji）

大阪大学・工学研究科・教授

研究者番号：40343115

交付決定額（研究期間全体）：（直接経費） 4,900,000円

研究成果の概要（和文）：本研究では、一画素分のLEDチップを一つずつ並べて実装するという現状のμLEDパネルの極めて高価な製造コストと長い製造時間を劇的に低減する、結晶工学的技術の開発を目的とした。表面活性化ウエハ接合技術を用い、複数の異なる結晶面方位を有する微小ドメインを並べた結晶面方位変調GaNテンプレートを作製し、この上にInGaN量子井戸発光層を成長した。その際、結晶中へのIn原子の取り込み効率や量子閉じ込めシュタルク効果による発光の長波長シフトが結晶面方位により顕著に異なる性状を利用することで、フルカラーμLEDの集合体の高スループット作製プロセスを実証した。

研究成果の学術的意義や社会的意義

本研究で得られた、結晶面方位の異なる薄膜の積層技術とこれを用いて作製する結晶面方位変調テンプレートは、現状のエピタキシャル成長技術では実現し得ない新規構造のデバイス実現への道を拓く、結晶工学分野における革新的なツールとなる。つまり、本研究で提案する技術開発は、窒化物半導体材料やμLEDのみならず、縦型パワートランジスタ、垂直共振器型レーザなど、全ての集積型デバイス・システム開発の突破口となりうることから、学術的意義のみならず革新的な省エネルギー技術を提供することで、社会に貢献できる。

研究成果の概要（英文）：The purpose of this research was to develop a crystallographic technology that dramatically reduces the extremely expensive manufacturing cost and long manufacturing duration of the current μLED panels, in which each LED chip for one pixel is picked and placed separately. Crystallographic-orientation-modulated GaN templates tiled with microdomains with different crystallographic orientations were successfully prepared utilizing the surface-activated wafer bonding technology, and an InGaN quantum wells were grown on the template. Here we demonstrated a high-throughput fabrication process for full-color μLED utilizing the strong dependences of the In incorporation efficiency as well as of the emission wavelength shift due to the quantum confinement Stark effect on the crystallographic orientations of InGaN growth.

研究分野：結晶工学

キーワード：μLED 結晶面方位 MOVPE 表面活性化接合

## 1. 研究開始当初の背景

**(1)高精細ディスプレイパネルの抱える問題** 近年モバイル機器に搭載され始めた有機 EL パネルは、バックライトが常時点灯する液晶パネルと比べて画素を完全に消灯できるため低消費電力である一方、低い歩留まりや寿命による焼付きなど有機物固有の問題を抱える。対して、窒化物半導体など無機化合物からなるマイクロ ( $\mu$ ) LED はこの問題が無い一方、切断した赤緑青三色の各チップを一個ずつ並べて実装するという現状の製造法では、この工程に 4K パネルでは 40 日間という膨大な製造時間とリソースを要し超高コストのため、消費者製品としての普及の見込は全くない。この問題に対し、MBE 成長により形成した直径の異なるナノコラムからなる三色発光領域をモノリシック集積し、チップ化後の実装コストの問題を解決する試みも報告されているが〔関口他, Appl. Phys. Lett. **96**, 231104 (2010)〕, サブミクロン微細加工のコスト増大や低い収率、大面積化が困難など、実用化には課題が多く実現に至っていない。

**(2)結晶面方位による InGaN 組成制御** 窒化物半導体 LED の研究事例を遡ると、結晶工学的な学理を踏まえての上記課題の解決の試みがある。+c 面 GaN 結晶をストライプ状に加工した側壁に形成される、結晶面方位の異なる傾斜した半極性面に InGaN 量子井戸を成長すると、+c 面との In 取り込み効率と成長速度の差を利用し、多色発光 LED を集積できるとの報告がある〔船戸他, Appl. Phys. Express **1**, 011106 (2008)〕。ただし、In 取り込み効率の差が十分ではなく青から黄色までの発光に留まり、かつ平面部と斜面部のアスペクト比の制限や特有の凹凸構造のためこれらを独立駆動できず、全色をカバーできない問題がある。これに対し応募者らは、前頁で述べたようにあらゆる結晶面方位の中で In 取り込み効率が最も高い -c 面を利用し、赤色発光 LED の作製に成功している。

**(3)表面活性化ウエハ接合による GaN 薄膜転写** 応募者は上記と全く別の、窒化物半導体を用いた波長変換素子開発の成果として、表面活性化ウエハ接合と基板除去により、+c 面 GaN 上への -c 面 GaN の転写に成功している。

**(4)着想に至った経緯** 上記の背景を踏まえて応募者は、背景(3)の実績を応用して結晶面方位が異なるドメインを同一平面上に並べた GaN 下地層が用意できれば、背景(2)の実績を併用してその上に InGaN 発光層を一括成長し、独立駆動可能な多色  $\mu$  LED の集合体、即ち  $\mu$  LED パネルを短時間で作製できると考えた。その際、船戸らのアプローチでは実現不可能な「完全にうら向きの面」も含むため、赤緑青三色によるフルカラーを実現可能である。また本提案で用いる全ての結晶成長法・プロセスは 8 インチ径以上に大口径化されており、特に表面活性化ウエハ接合は既に LSI・SoC 作製に多用される高スループット技術である。チップ毎に並べて実装する従来の製造法に比べ遥かに短納期・低コスト化できると共に、スマートフォンの 5 インチパネルにおいても、4K 解像度相当の高精細化が現状の技術で十分実現可能となる。

## 2. 研究の目的

本研究では、一画素分の LED チップを一つずつ並べて実装するという現状の極めて高価な  $\mu$  LED パネルの製造コストを劇的に低減する結晶工学的技術の開発を目的とした。まず表面活性化ウエハ接合技術を用い、複数の異なる結晶面方位・面積のドメインを並べた GaN テンプレートを作製し、この上に InGaN 量子井戸発光層を成長する。その際、結晶中への In 原子の取り込み効率が面方位により顕著に異なる性状を利用することで、フルカラー  $\mu$  LED の集合体の高スループット作製プロセスを実証する。

## 3. 研究の方法

本研究で開発するプロセスを図 1 に示し、各工程の計画を下記に詳述する。

**(1)工程 I：結晶面方位の異なる GaN 薄膜の積層技術の開発** まずおもて(+c, Ga 極性, (0001)) 面 GaN 基板を用いて、接合条件の最適化を行った。この時、目的とするデバイスはサファイア基板側から光を取り出すため接合界面は透明でかつ、将来的には電流注入のために導電性が必要となるため、金属や絶縁性酸化膜などの中間層を用いない表面活性化による直接接合を用いた。接合強度は引張試験により定量評価した。続いて Si 基板上の GaN 薄膜をサファイア基板上 GaN 薄膜に接合し、Si 基板を研磨とウェットエッチングにより除去することで、うら(-c, N 極性, (000-1)) 面 GaN 薄膜の転写を試みた。また AFM 観察, RHEED 観察を用いて、表面活性化条件の変化による表面平坦性と結晶性の変化を評価した。

**(2)工程 II：結晶面方位を変調した GaN テンプレートの作製技術の開発** 続いて上記(1)の -c 面 GaN の転写に加えて、サファイア基板上に成膜したおもて+c 面方位の GaN 薄膜上に、斜め(半極性, (20-21)) 面方位の GaN を接合転写した GaN 積層構造を同様に作製した。Si 基板を研磨とウェットエッチングにより除去後、ドライエッチングにより、各結晶面方位の表面を露出させた。この後結晶再成長により InGaN 量子井戸発光層を形成する必要があるため、表面平坦性を保ちながらドライエッチングできる条件を最適化し求めた。

**(3)工程 III：多色 LED の一括成長技術の開発** この上に GaN、発光層となる InGaN 量子井戸を

MOVPE 成長した。InGaN 薄膜の発光波長は、In 組成を増やすと青から緑、赤へと長波長化する。この混晶の結晶成長では、In 取り込み効率の差と分極による短波長発光効果の低減に起因し、同じ成長温度であっても面方位によって異なる発光色が得られることがこれまでの成果で明らかとなっている。そこで本研究ではこの性状を積極活用し、一括成長で多色の発光ドメインを得ることを狙った。

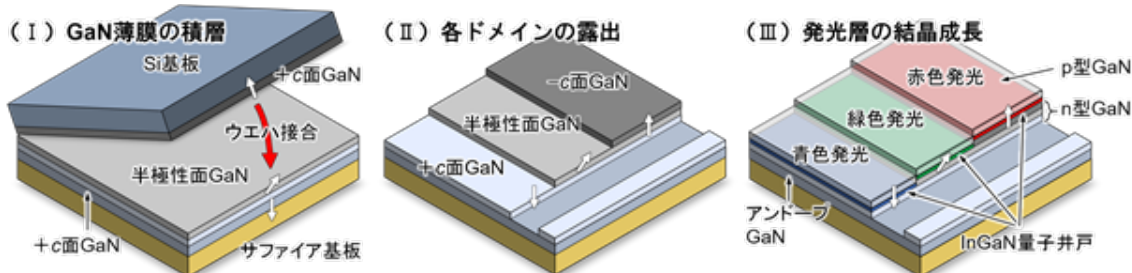


図1 提案する  $\mu$ LED 作製プロセス (白矢印は c 軸方位, 素子分離等の後工程は割愛)

#### 4. 研究成果

**(1)結晶面方位の異なる GaN 薄膜の積層技術の開発** 2019 年度はまず、表面活性化接合技術を開発した。この技術は、超高真空中で試料表面に Ar ビームを照射することで表面層を除去し、未結合手からなる活性状態となった 1 組の面を重ね合わせて加熱、圧力印加を行うことで接合する技術である。GaN 試料の接合強度を引張試験により定量的に求め、強度が最大となる接合条件を探索した。+c 面 GaN 基板同士を接合させ、Ar ビーム照射時間を変化させ、接合強度を最適化した。Ar ビーム照射時間と接合強度の関係より、照射時間の増加に伴い接合強度は増加しピークとなり、その後次第に減少することが分かった。この傾向は、Ar ビームの照射によって表面不純物層が除去され接合強度が次第に増加するが、過剰に Ar ビームを照射すると表面平坦性が悪化し接合強度が減少していくためと考えられる。Ar ビーム照射時間が 350 秒のとき、接合強度は最大の 13.5 MPa を示した。この接合条件で Si 基板上 GaN とサファイア基板上 GaN を接合させたところ、これまでで最も大面積な 22 mm 角の試料同士の接合に成功した。続いて、Ar ビーム照射によって GaN 表面の状態がどのように変化するか調査した。AFM を用いて試料表面形状を測定すると、Ar ビームを照射した試料表面に原子配列の秩序の乱れが見られた。次に、RHEED を用いて試料表面の結晶状態を評価すると Ar ビームを照射した試料ではハローパターンを観測した。以上から、Ar ビーム照射によって GaN 表面のごく薄い領域がアモルファスに変化し、照射時間により秩序の乱れの度合いが変化し、接合強度が変化したと考えられる。

**(2)結晶面方位を変調した GaN テンプレートの作製技術の開発** 続いて 2020 年度は、GaN 薄膜の表面活性化接合条件の最適化などの前年度得られた成果をもとに、同一基板上への異なる発光色を有する InGaN 量子井戸の作製を目指した。まず Si 基板上+c 面 GaN 薄膜とサファイア基板上+c 面 GaN 薄膜を表面活性化接合後、Si 基板を除去し極性反転した GaN 薄膜が積層した構造を作製した。次に部分的にドライエッチングにより掘り込み、面内に±c 面なる二種の面方位の GaN が露出したテンプレートを形成した。同様に、Si 基板上+c 面 GaN 薄膜とパターン形成サファイア基板上(20-21)面 GaN 薄膜を表面活性化接合し、面内に-c 面((000-1)面)と(20-21)面が露出したテンプレートの作製に成功した。ここで先行研究によると、同一の MOVPE 成長条件においては(20-21)面、(0001)面、(000-1)面の順に In 取り込み効率が増加する傾向があり、 $\text{In}_{0.3}\text{Ga}_{0.7}\text{N}/\text{GaN}$  量子井戸中のピエゾ電界はそれぞれ  $-0.5 \text{ MV/cm}$ ,  $+3.6 \text{ MV/cm}$ ,  $-3.6 \text{ MV/cm}$  と見積もられ〔谷川他,第 6 回窒化物半導体結晶成長講演会 I-St-1(2014).〕, これらの性状の差異を利用することで発光色の異なる量子井戸の作製を試みた。

**(3)多色 LED の一括成長技術の開発** まずサファイア基板上に製膜した個別の(20-21)面、(0001)面、(000-1)面 GaN 薄膜小片を用意し、これらを同一のサセプタ上に設置し一括で MOVPE 成長することで、In 取り込み効率やフォトルミネッセンス発光波長の面方位依存性を検証した。テンプレート上に厚さ 150 nm 程度の GaN を  $1100^\circ\text{C}$  で再成長後、 $690\sim 790^\circ\text{C}$  まで降温し 5 周期の多重量子井戸を成長した。フォトルミネッセンスは  $405 \text{ nm}$  半導体レーザーで励起し、室温で測定した。結果を図 2 (a)に示すが、いずれの面方位においても高温で成長するほど発光波長は短波長化した。これは Ga より蒸気圧が高い In の結晶中への取り込み効率が低下していくという InGaN 混晶の MOVPE 成長で良く見られる一般的な傾向と一致する。また成長温度  $740^\circ\text{C}$  以上の場合は、(20-21)面、(0001)面、(000-1)面の順に長波長で発光しており、In 取り込み効率の面方位依存性を反映して先行研究と同様の傾向がみられた。ところが成長温度が  $710^\circ\text{C}$  以下の場合、(0001)面と(000-1)面の発光波長の順序が入れ替わっている。ここで X 線回折逆格子空間マップ測定からこれらの試料の InGaN 井戸層の InN モル分率と膜厚を見積もった所、それぞれ 35%と 2.4 nm 程度であり、臨界膜厚に達し格子緩和している懸念があることが分かった。そこでこの格子緩和の影響を避けるため、続いて成長温度  $690^\circ\text{C}$  における InGaN 井戸層の成長時間を変化させ、面方位依存性を検証した。結果を図 2 (b)に示すが、井戸層厚さの増大に伴い(20-21)面 InGaN の発光波長の変化は少ない一方で、(0001)面では顕著に長波長側にシフトしている。これは先に述べた通り、(20-21)面方位の量子井戸中ではフラットバンドで

あるのに対して(0001)面方位ではc軸方向に強いピエゾ電界が印加されているため、量子閉じ込めシュタルク効果が顕著となり、井戸層厚さの増大に伴い発光波長が長波長側にシフトしたものと解釈できる。ここで、(0001)面 InGaN 量子井戸をちょうど逆さまにした(000-1)面についても同様に強いピエゾ分極を持つことから、井戸層厚さ依存性においては量子閉じ込めシュタルクシフトによる発光波長の長波長シフトが予想されるが、井戸層厚さ 2.3 nm においては長波長シフトが飽和した。これは臨界膜厚に達して歪すなわちピエゾ電界が低減したものと説明できる。以上の結果を踏まえ、最後に、(2)で作製した面方位変調テンプレート上に InGaN 量子井戸を一括成長させた。テンプレート上に厚さ 150 nm 程度の GaN を 1050°C で再成長後、5 周期の InGaN 多重量子井戸を成長した。成長温度は 690°C、井戸層と障壁層の厚さはそれぞれ 1.5 nm と 10 nm とした。まず、表面活性化接合と基板除去、ドライエッチングを用いて作製した面方位変調 GaN テンプレート上に、剥離などの異常なく InGaN 量子井戸を成長することに成功した。また図3に示す通り、励起レーザーの照射一を変えることで発光色が変化することが分かり、面方位の変調により発光波長が制御できることを明らかとなった。その際の発光波長の面方位依存性は、先の個別の小片試料を用いて検証した結果とよく一致した。研究期間内においては、緑から橙色の波長域での発光波長制御に成功したが、今後はより低温もしくは In 原料供給比が多い条件での結晶成長を行い(000-1)面ないし(10-11)面上の発光色を赤色領域まで長波長化し〔正直, 谷川, 片山他, Appl. Phys. Express 8, 061005 (2015)〕, 一方で青色発光用の面方位としてはより In 取り込み効率が低い(10-12)面を用いて In 濃度のコントラストをつけることで、フルカラー発光が期待される。以上の成果は、In 取り込み効率の面方位依存性を利用したフルカラーLED の高スループットな作製手法の原理実証にあたることから、このデバイス応用に向けたコア技術を開発できたと考えられる。

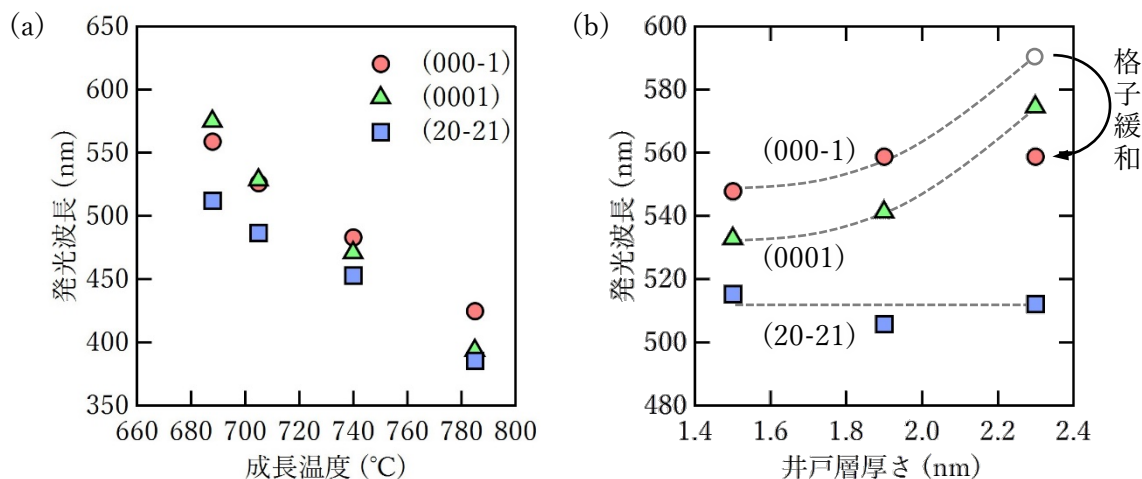


図2 (a)発光波長の成長温度依存性, (b)発光波長の InGaN 井戸層厚さ依存性。

(a)(0001)面・(000-1)面テンプレート上 (b)(20-21)面・(000-1)面テンプレート上

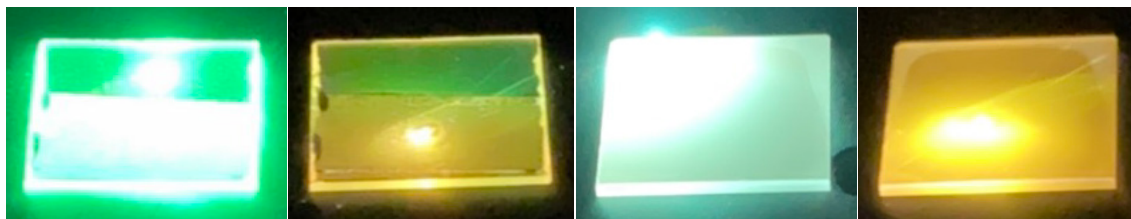


図3 面方位変調 GaN テンプレート上に MOVPE 成長した InGaN 量子井戸からの発光。(a)左：(0001)面励起, 右：(000-1)面励起。(b)左：(20-21)面励起, 右：(000-1)面励起。

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計0件

〔学会発表〕 計20件（うち招待講演 9件 / うち国際学会 9件）

1. 発表者名 田辺 凌、吉田 新、安田悠馬、上向井正裕、谷川智之、片山竜二
2. 発表標題 表面活性化接合を用いた面方位変調GaNテンプレートの作製と組成変調InGaN量子井戸の有機金属気相成長
3. 学会等名 第68回応用物理学会春季学術講演会
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 R. Katayama, M. Uemukai, and T. Tanikawa
2. 発表標題 Novel wavelength converters made of nitride semiconductors: transverse QPM waveguides and monolithic microcavities
3. 学会等名 SPIE Photonics West 2021 (招待講演) (国際学会)
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 R. Katayama, M. Uemukai, and T. Tanikawa
2. 発表標題 Novel Method of Short-Wavelength Emission from Polarity-Inverted Nitride Semiconductor Waveguides
3. 学会等名 第8回結晶成長と結晶技術に関するアジア会議 (CGCT-8) (国際学会)
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 片山 竜二
2. 発表標題 窒化物半導体極性制御特異構造の形成技術の深化と物性・機能の制御
3. 学会等名 新学術領域研究 特異構造の結晶科学 オンライン成果報告・連絡会
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 片山 竜二
2. 発表標題 ワイドギャップ窒化物半導体波長変換デバイスによる紫外光発生
3. 学会等名 応用電子物性分科会研究例会（招待講演）
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 N. Yokoyama, R. Tanabe, S. Ichikawa, Y. Fujiwara, M. Uemukai, T. Tanikawa and R. Katayama
2. 発表標題 Fabrication of GaN Polarity-Inverted Structure by Inductively Coupled Plasma Reactive Ion Etching and Surface Activated Bonding
3. 学会等名 第39回 電子材料シンポジウム EMS39
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 片山 竜二, 上向井 正裕, 谷川 智之
2. 発表標題 ワイドギャップ半導体の分極制御と量子光学応用：遠UVC全固体光源
3. 学会等名 第81回 応用物理学会秋季学術講演会（招待講演）
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 N. Yokoyama, R. Tanabe, T. Morikawa, Y. Fujiwara, M. Uemukai, T. Tanikawa, R. Katayama
2. 発表標題 Inductively coupled plasma reactive ion etching of GaN films maintaining surface flatness for surface activated bonding
3. 学会等名 第8回 発光素子とその産業応用に関する国際学会 LEDIA'20（国際学会）
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 横山 尚生, 田辺 凌, 森川 隆哉, 藤原 康文, 上向井 正裕, 谷川 智之, 片山 竜二
2. 発表標題 表面活性化接合に必要な表面平坦性を維持するGaNのエッチング
3. 学会等名 第67回 応用物理学会春季学術講演会
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 R. Tanabe, N. Yokoyama, M. Uemukai, T. Tanikawa and R. Katayama
2. 発表標題 Bonding Strength of Polarity-Inverted GaN/GaN Structure Fabricated by Surface-Activated Bonding
3. 学会等名 APWS2019 (国際学会)
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 R. Katayama, M. Uemukai and T. Tanikawa
2. 発表標題 Quantum Optical Application of Nitride Semiconductor
3. 学会等名 International Workshop on Creation of Singularity Structures (招待講演) (国際学会)
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 N. Yokoyama, R. Tanabe, M. Uemukai, T. Tanikawa and R. Katayama
2. 発表標題 Bonding Strength Optimization of Polarity-Inverted GaN/GaN Structure Fabricated by Surface-Activated Bonding
3. 学会等名 第38回 電子材料シンポジウム EMS38
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 R. Tanabe, N. Yokoyama, M. Uemukai, T. Hikosaka, S. Nunoue, K. Shojiki, H. Miyake, M. Kushimoto, H. Cheong, Y. Honda, H. Amano and R. Katayama
2. 発表標題 Raman Scattering Evaluation of Strain Evolution During Surface-Activated Bonding of GaN and Removal of Si Substrate
3. 学会等名 第38回 電子材料シンポジウム EMS38
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 片山 竜二, 上向井 正裕, 谷川 智之
2. 発表標題 ワイドギャップ半導体を用いた新規波長変換デバイスの開発ー極性反転導波路と微小共振器ー
3. 学会等名 第80回 応用物理学会秋季学術講演会 (招待講演)
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 田辺 凌, 横山 尚生, 上向井 正裕, 谷川 智之, 片山 竜二
2. 発表標題 表面活性化接合により作製したGaN分極反転積層構造の接合強度評価
3. 学会等名 第80回 応用物理学会秋季学術講演会
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 R. Katayama, M. Uemukai and T. Tanikawa
2. 発表標題 Quantum Optical Application of Nitride Semiconductor: DUV Laser and Quantum Computer
3. 学会等名 紫外発光材料及びデバイスに関する国際ワークショップ IWUMD2019 (招待講演) (国際学会)
4. 発表年 2019年



1. 発表者名 R. Katayama, M. Uemukai and T. Tanikawa
2. 発表標題 Nonlinear Optical Application of Nitride Semiconductors: Polarity-Inverted Waveguides and Microcavities
3. 学会等名 固体素子と材料に関する国際会議 SSDM2019 (招待講演) (国際学会)
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 片山 竜二, 上向井 正裕, 谷川 智之
2. 発表標題 窒化物半導体波長変換デバイスの開発ー極性反転導波路と微小共振器ー
3. 学会等名 第11回 日本結晶成長学会 ナノ構造・エピタキシャル成長講演会 (招待講演)
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 R. Katayama
2. 発表標題 Nonlinear Optical Application of Nitride Semiconductors: Polarity-Inverted Waveguides and Microcavities
3. 学会等名 Workshop on Nitride Semiconductor Lasers (招待講演) (国際学会)
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 R. Tanabe, T. Onodera, M. Uemukai, T. Hikosaka, S. Nunoue, K. Shojiki, H. Miyake, M. Kushimoto, H.J. Cheong, Y. Honda, H. Amano and R. Katayama
2. 発表標題 Raman Scattering Investigation of Strain Evolution during Surface-Activated Bonding of GaN and Removal of Si Substrate
3. 学会等名 第7回 発光素子とその産業応用に関する国際学会 LEDIA'19 (国際学会)
4. 発表年 2019年

〔図書〕 計0件

〔出願〕 計1件

産業財産権の名称 窒化物半導体膜の形成方法	発明者 高橋伸明、三浦仁 嗣、根石浩司、片山 竜二、森勇介、今西	権利者 同左
産業財産権の種類、番号 特許、PCT/JP2019/038987	出願年 2021年	国内・外国の別 外国

〔取得〕 計0件

〔その他〕

-

6. 研究組織

	氏名 (ローマ字氏名) (研究者番号)	所属研究機関・部局・職 (機関番号)	備考
研究 分 担 者	上向井 正裕  (Uemukai Masahiro)  (80362672)	大阪大学・工学研究科・助教    (14401)	

7. 科研費を使用して開催した国際研究集会

〔国際研究集会〕 計0件

8. 本研究に関連して実施した国際共同研究の実施状況

共同研究相手国	相手方研究機関
---------	---------