

**科学研究費助成事業 研究成果報告書**

平成 27 年 5 月 20 日現在

機関番号：34419

研究種目：若手研究(B)

研究期間：2012～2014

課題番号：24760110

研究課題名(和文)次世代オプトエレクトロニクス基板の原子スケール平坦化技術の開発

研究課題名(英文)Development of polishing method for next-generation opt-electronic materials producing atomically-smooth surfaces

研究代表者

村田 順二(MURATA, Junji)

近畿大学・理工学部・講師

研究者番号：70531474

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 3,400,000円

研究成果の概要(和文)：本研究では、触媒を用いた化学エッチングを応用した微粒子・薬液フリー平坦化法を開発し、既存の技術では実現することが困難であったダメージレス超平坦GaN表面を高効率かつ安定的に創生することを目的とした研究開発を実施した。その結果、2インチ基板の全面にわたって既存の技術では到達が困難である原子レベルの平坦な表面が得られた。また、加工時間を数十時間から60分程度までに短縮することができた。本加工法によって得られたGaN表面は優れた結晶性や発光特性、電気特性を有することが明らかとなった。

研究成果の概要(英文)：In this research, a novel abrasive-free polishing process for GaN surface utilizing a chemical etching with catalyst has been developed to obtain damage-free and super-smooth GaN surfaces with a high removal efficiency. Atomically-smooth surface can be achieved over an entire wafer (2 inch in diameter) surface by the proposed method. The polishing duration to obtain a flat GaN surface were reduced from several tens of hours to approximately 60 min compared with a conventional polishing method. The processed GaN surface showed a superior crystallographic, luminescence and electrical properties to that processed by a mechanical polishing.

研究分野：精密加工学

キーワード：窒化ガリウム 研磨加工 触媒 エッチング

1. 研究開始当初の背景

窒化ガリウム(GaN)は、次世代の高周波・パワーデバイスや短波長発光デバイスへの応用が期待されている。しかし、デバイス作動時の発熱が大きいことや寿命が短いなど、材料の持つ物性を発揮したデバイス性能の実現には至っていない。高性能デバイスの実現のためには、平滑であり結晶の乱れの無い表面が要求される。しかし、これらの材料は熱的・化学的に安定であるため、従来の微粒子を用いた研磨技術では要求される平坦な表面の作製が極めて困難であるといった問題がある。

2. 研究の目的

本研究では、従来技術とは異なる概念に基づく加工法として、Pt 触媒を用いた化学エッチングを応用し、微粒子や薬品を用いない加工技術の開発を行い、原子オーダーで制御された GaN 表面を安定的に創生することを目的とする。研究代表者は、Pt などの貴金属触媒の存在下において、半導体表面のエッチングが促進される現象に着目し、平坦化加工への応用を提案した。湿式雰囲気下において、GaN 表面と Pt プレートとを接触運動させる(図 1)ことで、GaN から Pt に電子が移動、GaN に正孔が生成する。この正孔により GaN 表面が酸化し、酸化膜が溶液中に溶出することで加工が進行する。電荷移動は Pt と接触した GaN 表面でのみ起こるため、GaN の凸部のみがエッチングされ、結果として平坦化が進行する。GaN の酸化膜は水に可溶である。そのため、本加工法では従来の研磨技術において必要不可欠である微粒子や薬液を一切用いずに加工を行うことが可能であり、クリーンかつ環境負荷の極めて小さいプロセスが実現する。本技術によって、従来技術では実現できなかった原子レベルで制御された平坦で極めて結晶性に優れた表面の安定的な創生が実現することを目的とする。これにより、今後大きな市場規模となる窒化物系デバイスの性能の飛躍的な向上が可能であるほか、製品価格が低下することが予想され、学術的な点だけでなく産業応用可能な技術として貢献することを目的とし研究を実施した。

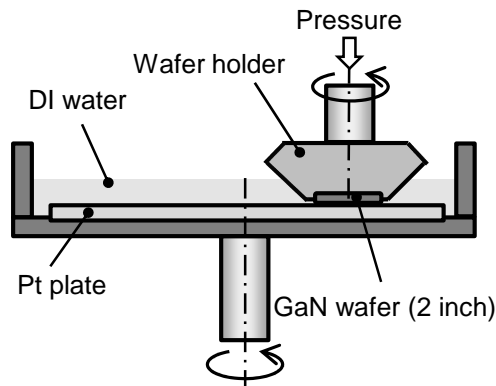


図 1 開発技術の概念図

3. 研究の方法

本研究では、1.加工の大面积化/高速化、2.表面性能評価、3.デバイス試作/評価の3点の項目を軸に研究を実施した。研究の初期においては、加工要素の最適化を行い、大面积において安定的に高機能表面を創生できるよう、装置開発を含めた研究を行った。本加工法で加工した表面について、表面科学の研究者と連携しながら、様々な表面分析技術を駆使し多角的に評価を実施した。

4. 研究成果

(1) 加工の大面积化

本研究項目では、開発加工技術により GaN ウェハの表面を全面にわたって安定的に加工することを目的とした研究を実施した。試料には市販品として入手可能なサイズである 2 インチ自立 GaN ウェハを使用した。

ウェハの全面にわたって均一な加工を行

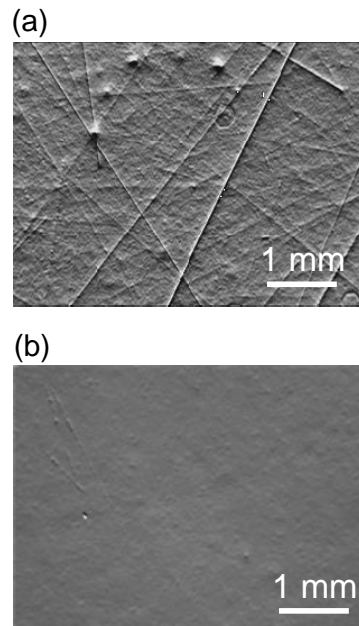


図 2 加工前(a)と加工後(b)の GaN 表面

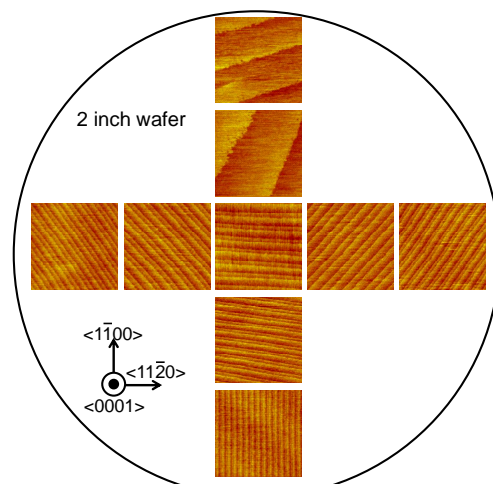


図 3 加工後 2 インチ GaN ウェハの AFM 像。ウェハ全面にわたって原子ステップが観察される。

うためには、ウェハ表面と触媒の接触圧力の均一性が要求される。硬質な触媒プレートではウェハの一部にしか触媒が接触しないことから、軟質な基材に対し触媒薄膜を成膜したシートを採用した。その結果、ウェハにうねりや反りなどがあっても、シート触媒がそれに沿って変形するため、両者の均一な接触が可能となった。図1に示すように、加工を行うことで、数 mm の視野範囲にわたってスクラッチやピットが除去されていることが確認された。さらに図2では、2 インチウェハの全面にわたって本加工法の特徴である原子ステップ構造が確認され、試料の数十ミリメートルスケールの大面積にわたっての加工を実現した。

### (2) 加工の高速化

本研究開発項目では、機械研磨が施された GaN ウェハを、原子レベルの平滑面に至るまでの研磨時間の短縮を目的とした。機械研磨後の GaN 表面は表面粗さが大きく、また深いスクラッチやクラックなどの欠陥が存在する。これらを取り除くためには、高速な研磨方法で短時間に加工を行うことが必要となる。そこで、研究代表者らが開発した光照射と固体酸触媒を利用した研磨方法(図4)を適用し、その後本研究で開発した加工方法を最終研磨加工とする多段階の研磨プロセスを検討した。その結果、Pt 触媒を用いた加工技術単独の研磨では、数十時間の加工時間を要していたが、多段階の研磨方法を採用により約 60 分の研磨時間で平滑表面が得られることがわかった。

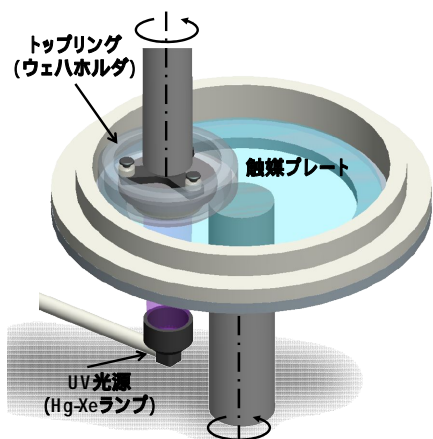


図4 光照射と酸触媒を併用した研磨技術

### (3) 表面物性評価

加工前後の GaN 基板表面について、その表面物性を種々の分析方法によって評価した。X 線回折法 (XRD) および反射電子回折法 (RHEED) により表面を分析した。加工前の GaN 表面の格子定数は結晶内部と比較して約 2.2 % の歪みが発生していることがわかった。それに対し、加工後 GaN 表面の歪みは 0.9 % と低減されていることが明らかとなった。

た。これにより、本加工技術によって前加工面に存在していた結晶歪を低減することができることが明らかとなった。

また、Photoluminescence (PL) 法により表面の発光特性を分析したものが図5である。エネルギー3.46 eV 付近のバンド端発光強度を比較すると、未処理の GaN 表面 (sample 1) と比較して加工後表面の GaN 表面 (sample 3) は約 18 倍の発光強度が得られることがわかった。これは、前述したように加工によって表面に存在する歪が除去されたことによるものと考えられる。この結果により、本加工法によって処理した GaN 基板を使用して LED などを製造した場合、その発光強度の大幅な向上が示唆された。

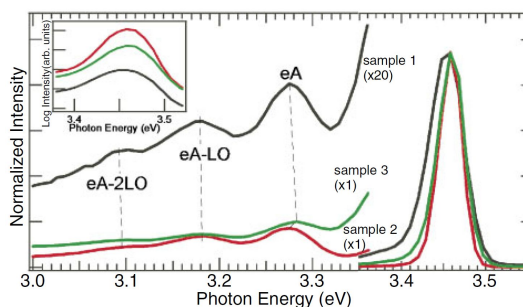


図5 GaN 表面の PL 発光強度の比較 sample 1:加工前 GaN, sample 2:超高真空加熱処理後 GaN, sample 3:加工後 GaN

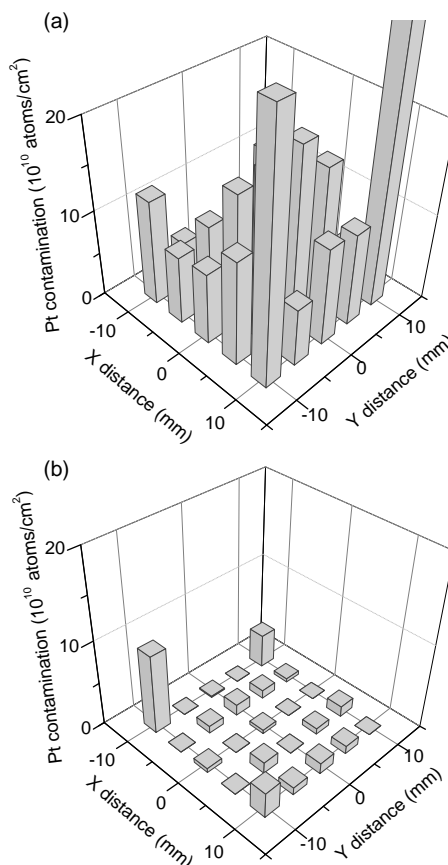


図6 加工前後 GaN 表面の Pt 汚染濃度分布 (a)加工前, (b)加工後表面

#### (4) デバイス試作と電気特性評価

半導体表面にデバイスを試作する上で、重要となるのが金属汚染の除去である。金属汚染が存在すると、半導体デバイスの電気特性が悪化することが懸念される。本加工法では Pt 触媒と GaN 表面が接触して加工を行うため、加工後 GaN 表面には Pt の金属汚染が存在することが懸念された。そこで、加工後の GaN 表面を全反射蛍光 X 線分析 (TRXF) 法によって評価した。図 6 (a) に示すように、加工後 GaN 表面には、 $10^{10}$ - $10^{11}$  atoms/cm<sup>2</sup> のオーダーで Pt 汚染が存在することが明らかとなった。Pt は貴金属であり通常の酸洗浄では除去が困難である。そこで、王水洗浄を行った後、再度 GaN 表面を TRXF 分析したものが図 6 (b) である。洗浄後には Pt 汚染が低減されており、多くの部分で TRXF の検出下限以下となることがわかった。また、王水洗浄は GaN 表面のモルフォロジーに影響を与えないことを確認した。

また、加工前後の GaN 表面上に金属薄膜を成膜し、簡易的なショットキーバリア構造を形成してその電気特性 (I-V 特性) の評価を行った。その結果、逆方向のリーク電流が低減されるとともに、理想化係数 (Ideality factor) が改善されることがわかった。

#### 5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕(計 4 件)

J. Murata, S. Sadakuni, Photo-electrochemical etching of free-standing GaN wafer surfaces grown by hydride vapor phase epitaxy, *Electrochimica Acta*, 査読有, 171(2015), pp. 89-95.

DOI: 10.1016/j.electacta.2015.04.166

A. N. Hattori, K. Hattori, Y. Moriwaki, A. Yamamoto, S. Sadakuni, J. Murata, K. Arima, Y. Sano, K. Yamauchi, H. Daimon, K. Endo, Enhancement of photoluminescence efficiency from GaN(0001) by surface treatment, *Japanese Journal of Applied Physics*, 査読有, 53(2014), pp. 021001-1-5.

DOI: 10.7567/JJAP.53.021001

S. Sadakuni, J. Murata, Y. Sano, K. Yagi, S. Matsuyama, and K. Yamauchi, Bias-Assisted Photochemical Planarization of GaN(0001) Substrate with Damage Layer, *Japanese Journal of Applied Physics*, 査読有, 52 (2013) pp. 036504-1-4.

DOI: 10.7567/JJAP.52.036504

J. Murata, S. Sadakuni, T. Okamoto, A. N. Hattori, K. Yagi, Y. Sano, K. Arima, K. Yamauchi, Structural and chemical characteristics of atomically smooth GaN surfaces prepared by abrasive-free polishing with Pt catalyst, *Journal of Crystal Growth*, 査読有, 349 (2012), pp.

83-88.

DOI: 10.1016/j.jcrysgro.2012.04.007

〔学会発表〕(計 4 件)

村田順二, 物理化学反応を利用したものづくり - 半導体・太陽電池・光学素子の精密加工技術 -, 2014 年 11 月 13 日, 4 大学合同セミナー in MOBIO, ものづくりビジネスセンター大阪 (大阪府東大阪市)

村田順二, 化学反応による精密加工, 2014 年度 HOCX 総会 特別講演, 2014 年 5 月 27 日, アウィーナ大阪 (大阪府大阪市)

進藤大輝, 村田順二他, 不織布研磨パッドの組成が研磨特性に与える影響, 2014 年度精密工学会春季学術講演会, 2014 年 3 月 18 日, 東京大学 (東京都文京区)

北井庸平, 村田順二他, 仕上げ研磨用高性能スエードパッドの開発, 2013 年度精密工学会春季学術講演会, 2013 年 3 月 13 日, 東京工業大学 (東京都目黒区)

〔図書〕(計 1 件)

谷泰弘, 村田順二, 数理工学社, 機械工学テキストライブラリ 生産加工入門, 2014 年, pp. 93-186

〔産業財産権〕

出願状況 (計 0 件)

取得状況 (計 1 件)

名称: 研磨具及び研磨装置  
発明者: 佐野泰久, 山内和人, 村田順二, 岡本武志, 定國峻, 八木圭太  
権利者: 大阪大学, 荏原製作所  
種類: 特許  
番号: 5682076  
出願年月日: 2013 年 10 月 16 日  
取得年月日: 2015 年 3 月 11 日  
国内外の別: 国内

〔その他〕

研究室ホームページ  
<https://sites.google.com/site/adfablab/>

研究者情報 (研究代表者)

<http://researchmap.jp/read0151422/>

#### 6. 研究組織

(1) 研究代表者

村田 順二 (MURATA, Junji)  
近畿大学・理工学部・講師  
研究者番号: 70531474

(2) 研究協力者

服部 梓 (HATTORI, Azusa)  
大阪大学・産業科学研究所・助教