

大口径基板対応量産型 MOCVD 装置 UR25K の開発

Development of 4 inch x 11 (or 6 inch x 6) Multi-Wafer MOCVD System "UR25K"

池 永 和 正*	山 本 淳***	山 口 晃**	矢 野 良 樹*
IKENAGA Kazutada	YAMAMOTO Jun	YAMAGUCHI Akira	YANO Yoshiki
福 田 靖*	田 渕 俊 也*	伴 雄 三 郎***	内 山 康 右***
FUKUDA Yasushi	TABUCHI Toshiya	BAN Yuzaburo	UCHIYAMA Kousuke

窒化物半導体発光ダイオード (LED) の需要拡大及びチップコスト低減といった顧客ニーズに対応するため、4インチ基板11枚 (6インチ基板6枚) 処理対応の量産型 MOCVD 装置 UR25K を開発した。生産性及び操作性の向上を実現するため、サセプタ及びサセプタ対向板の搬送用ロボットを搭載した。初期評価として SR4000 (2インチ×3枚または4インチ×1枚) 及び SR23K (2インチ×10枚または3インチ×8枚) の成長条件をベースに GaN・AlGaIn・InGaIn, 及び LED 構造を作製して、膜厚・組成等の特性、及びその均一性を評価した。成長速度 $10\mu\text{m/h}$ の高速成長で作製した GaN 膜において、X線ロックンクカーブ半値幅 (XRC-FWHM) は対称方向 (0002) / 非対称方向 (10-12) でそれぞれ $< 200\text{arcsec}$ / $< 300\text{arcsec}$ と良好な結晶性が得られ、また、カーボン濃度の増加はなかった。4インチ基板面内の AlGaIn (平均 Al 組成 10.4%) は、約 $1\mu\text{m/h}$ の成長速度で面内の Al 組成分布は $< \Delta 2\%$ が得られた。InGaIn は光励起発光 (PL) 特性及び LED 構造での電流注入発光 (EL) 特性からそれぞれ評価し SR4000 と遜色ないレベルであった。

We have developed a mass-production MOCVD system (UR25K) with a capacity of 4 inches by 11 (or 6 inches by 6) to meet the increasing demand of LED market on high performance and low-cost production. In UR25K, the susceptor, on which 4 inch sapphire substrates by 11 were set, and the ceiling plate were automatically transferred between the reactor and the pass-box. For the preliminary test of the reactor, we have grown GaN, AlGaIn and InGaIn on 4 inch sapphire substrates at atmospheric pressure by scaling the growth conditions of the smaller reactors such as SR4000 (2 inch × 3 or 4 inch × 1) and SR23K (2 inch × 10 or 3 inch × 8). FWHM (full width half maximum) of XRC (X-ray rocking curve) of nondoped GaN for (0002) and (10-12) were less than 200 arcsec and 300 arcsec respectively, even though the growth rate of nondoped GaN was more than $10\mu\text{m/h}$. The distribution of Al composition in the $\text{Al}_{0.1}\text{Ga}_{0.9}\text{N}$ in a wafer for a growth rate of $1\mu\text{m/h}$ was under $\Delta 2\%$. These results showed that the gas phase reaction between NH_3 and metal-organic materials was effectively suppressed. Both PL and EL characteristic on InGaIn MQW or LED structure were estimated at the same level as SR4000.

1. はじめに

1990年代前半窒化ガリウム (GaN) を用いた高輝度青色発光ダイオード (LED) が開発されて以降¹⁾, これらのデバイスの市場は、信号機・大型フルカラー

* 電子機材事業本部事業戦略推進部先端技術開発部
 ** 電子機材事業本部化合物事業部装置技術部
 *** 大陽日酸イー・エム・シー株式会社

ディスプレイ等の屋外表示装置、携帯電話、自動車関連 (メータランプ等) が牽引した。このような中、現在注目されている市場は白色 LED のノート PC 用・液晶薄型 TV 用のバックライトへの搭載である。長期的展望として2015年にはノート PC でほぼ100%, 液晶 TV で30%ほどのバックライトが冷陰極放電管 (CCFL) から LED へ代替されること、及び世界的に

LED 照明の設置に注力していることから、白色 LED の数量ベースの市場は 2010 年以降年率 20% 前後の継続的増加が予想されている²⁾。

以上のように窒化物系 LED の大量生産時代を向かえつつある中、デバイスの製造コスト低減の要請から、MOCVD 装置メーカーに対して処理基板の大口径化・多数枚化の要求が益々強くなってきている。

現在、当社では GaN 用 MOCVD 装置として SR2000 (2 インチ 1 枚相当径), SR4000 (4 インチ 1 枚相当径), SR6000 (6 インチ 1 枚相当径), SR23K (2 インチ 10 枚または 3 インチ 8 枚) を商品化している。上記白色 LED 市場や Si 基板上の電界効果トランジスタ (FET) への応用を考えたとき、従来機ではスループットの面で不十分であり大口径基板 (4 インチ / 6 インチ) の多数枚処理が可能な MOCVD 装置の商品化が必須である。

今回 UR25K のリアクタの基本仕様及び成長条件の決定に際して、事前に SR4000, SR6000 を用いて 4 インチ及び 6 インチ基板 1 枚でのエピ成長実験を行った。Fig. 1 は 6 インチサファイア上の電流注入発光 (EL) 測定の一例である。

ここでは、大口径多数枚対応の MOCVD 装置 UR25K のハードウェアの概要及び LED を構成する各膜種の成長実験の結果について報告する。

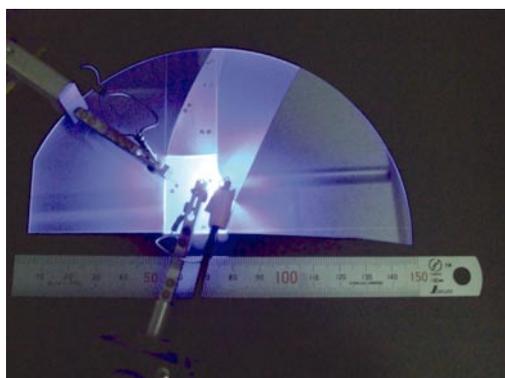


Fig. 1 Current-injected photoemission of LED structure grown on 6 inch sapphire by SR6000.

2. UR25K の装置概要

本章では、主に UR25K のリアクタ及び搬送システムについて紹介する。

Fig. 2 は UR25K のリアクタ内部の写真である。リアクタの基本仕様は SR23K³⁾ と同様、原料ガスは 3 層流ノズルからの中央噴出し、サセプタ (基板支持台) は自回転フェースアップタイプ、同軸 3 ゾーン加熱方式となっている。サセプタは 4 インチ基板 11 枚もしくは 6 インチ基板 6 枚載置可能である。また、基板の

自転用歯車とそのベアリングの配置を工夫して基板同士の間隔を極力狭くし、サセプタ単位面積当たりの原料利用率の向上を図っている。ガスノズルはリアクタの下方から挿入されているためノズルの設置精度が向上し、原料ガスの噴出しの均等化が促進される。リアクタ上蓋には基板温度や基板の反り等の In-situ monitor (その場観察モニター) が装着可能である。

Fig. 3 に UR25K の搬送系概念図を示す。搬送システムの基本仕様として、スループットの向上と洗浄部品の交換の作業性を考慮してロボット搬送を採用した。窒素雰囲気グローブボックス内に設置された搬送ロボットアームがリアクタ・基板交換テーブル・パスボックスを適宜移動し、成長毎に使用済みサセプタカバーとサセプタ対向板をパスボックスから出し入れすることが可能となっている。成長済みのサセプタをパスボックスで冷却待機させ、また、I/O 室から基板を出し入れすることにより、2 セットのサセプタを大気に触れることなく連続的かつ効率的に運用することが可能となっている。

グローブボックス内の日常動作は基板の設置・回収のみでその他は全て自動化されており、作業の信頼性とスループットが向上している。

LED 製造時の 1 日の成長回数を試算した結果を Table 1 に示す。サセプタカバー及びサセプタ対向板は、リアクタ内成長環境の安定性の確保のためドラ

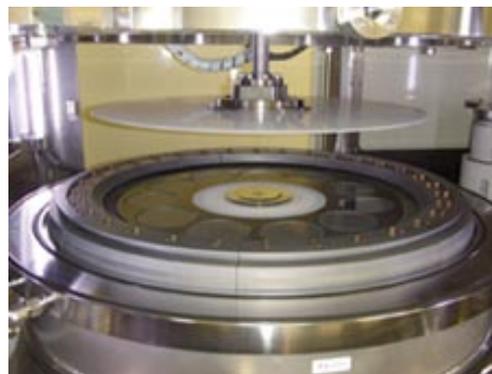


Fig. 2 Photo of the reactor of the UR25K (4 inch × 11) .

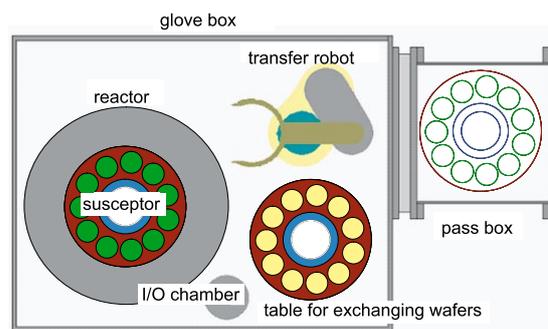


Fig. 3 Concept of the transfer system of UR25K.

Table 1 Estimation of daily throughput of UR25K for the typical LED structure.

Growth process of typical LED structure			
Step	Thickness	Growth rate	Require time
Heat			20min
Thermal cleaning			10min
Cool			10min
Buffer layer			1.7min
Heat			11min
GaN	3000nm	3.75 $\mu\text{m}/\text{h}$	48min
n-GaN	4000nm	3.75 $\mu\text{m}/\text{h}$	64min
Cool			25min
InGaN SLS (10 pairs)	50nm	0.117 $\mu\text{m}/\text{h}$	26min
InGaN/GaN MQW (6 pairs)	90nm		46min
InGaN	20nm		10min
Heat			3.5min
p-AlGaN	10nm	1 $\mu\text{m}/\text{h}$	0.6min
p-GaN	100nm	1.34 $\mu\text{m}/\text{h}$	4.5min
p ⁺ -GaN	5nm	0.1 $\mu\text{m}/\text{h}$	3min
Cool (under 200 degee C.)			35min
Subtotal			318.3min
Transfer robot			
Unloading a ceiling plate [Reactor → Passbox]			5min
Loading a ceiling plate with cleaning [Passbox → Reactor]			5min
Unloading a susceptor [Reactor → Passbox]			3min
Loading a susceptor set new wafers [Table for exchange of wafers → Reactor]			3min
Subtotal			16min
Total			334.3min
Number of growths per day			4.31 times/day

イ洗浄装置の併用を前提とした⁴⁾。洗浄する部品を複数準備し、一方の部品類が成長に使用されている間に他方の部品類が洗浄されグローブボックス内で待機状態になっている。このデバイス構造の場合、手動操作が主体である SR23K は成長3回/日であるのに対して UR25K では4回以上の成長が可能となった。

3. 実験方法

本章及び次章では、エピ成長実験とその評価結果について紹介する。

一連の成長実験は大気圧下にて実施した。成長には直径100mm(4インチ)、厚み0.9mmのc面サファイア基板を用いた。キャリアガスには、N₂及びH₂、V族原料にはNH₃(当社製スーパーアンモニア)をそれぞれの精製器に通して使用した。Ⅲ族原料には、トリメチルガリウム(TMG)、トリメチルアルミニウム(TMA)、トリメチルインジウム(TMI)をそれぞれ用いた。p型ドーパントにはシクロペンタジエニルマグネシウム(Cp₂Mg)、n型ドーパントにはN₂希釈の10ppmモノシラン(SiH₄)をそれぞれ用いた。

各種膜の評価項目をTable 2に示す。組成・構造の評価にはX線回折(XRD ω -2 θ)、膜厚の評価に

Table 2 Evaluation items of various structures.

Material	Item	Method of evaluation
GaN	Thickness	SEM
		Optical interferometry (RPM sigma S)
	XRC FWHM	XRD ω scan
	Surface morphology	Nomarski microscope
	Elemental analysis	SIMS
AlGaIn	Al content	XRD ω -2 θ
	Thickness	
LED	Thickness	TEM
		XRD ω -2 θ
	Optical property	Photoluminescence (RPM sigma S)
		Electroluminescence (TNSC original system)

は、光学膜厚測定(RPM Sigma S)、XRD、走査型電子顕微鏡(SEM)、透過型電子顕微鏡(TEM)をそれぞれ用いた。結晶品質の評価には、(0002)及び(10-12)のX線ロックアップ半値幅(XRC-FWHM)を測定した。電気的特性評価にはシート抵抗測定装置を用いた。Photoluminescence(PL)発光波長の評価には、RPM Sigma Sを、元素分析には2次イオン質量分析(SIMS)をそれぞれ用いた。

UR25Kの成長条件はSR4000とSR23Kをベースに設計した。具体的には、ガス流量は基板中心部の流速をSR23Kと同等となるように設定し、3層流の流量バランスはSR4000をベースに決定した。成長温度の設定は、SR23Kの基板温度と同等になるようにした。

4. 実験結果及び考察

4.1 nondoped-GaN

Fig. 4は4インチサファイア基板上にGaInを1時間成長したときの膜厚マッピングである。

成長速度を見積もると3.6 $\mu\text{m}/\text{h}$ 、4インチ面内の膜厚分布は1.2%(std.)(外周2mmカット)であった。3インチ径(ϕ 75mm)の分布はSR23Kと同等であった。

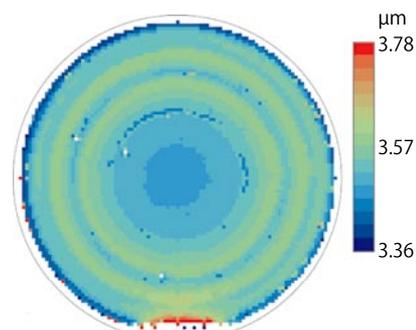


Fig. 4 Thickness mapping of GaN grown on 4 inch sapphire substrate (exclusion zone : 2mm) .

TMG 供給量と基板総面積から算出される原料利用効率は約 17% であった。従来の当社 GaN-MOCVD 装置シリーズの中で最高値であり、基板間隔を狭めた効果が大きい。

この成長した GaN の XRC 測定を行った結果を Fig. 5 に示す。

XRC から得られる (0002) 及び (10-12) の FWHM と転位密度には相関があることが報告⁵⁾されており、その幅が狭ければ転位密度の少ない品質の良好な GaN である。今回成長した GaN の XRC-FWHM は 4 インチ基板面内でそれぞれ、(0002) : < 200 arcsec, (10-12) < 300 arcsec であり、SR4000 で得られている結晶性と同等もしくはそれ以上の値を達成した。

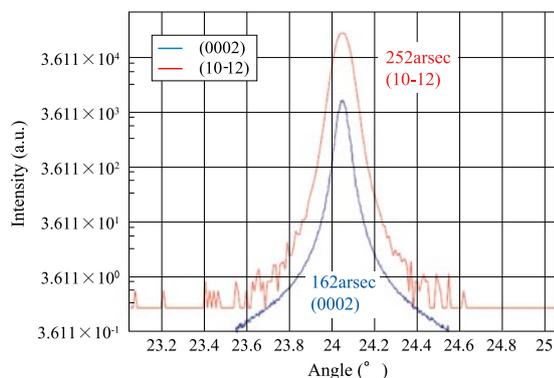


Fig. 5 X-ray rocking curve of GaN.

4.2 高速成長 GaN

実際の LED 構造に占める下地 GaN の膜厚の割合が大きいので、下地 GaN の成長速度の向上は成長時間の短縮によるスループット向上の観点で重要な技術である。しかしながら単純に TMG を増加させ、成長速度の向上を図ると、品質の劣化及び表面の平坦性が悪化することが報告されている^{6,7)}。

今回、これまで SR23K 及び SR4000 で培った条件を活用し 10 μm/h にて nondoped-GaN を 3 μm 成長した。3.6 μm/h と 10 μm/h で成長した nondoped-GaN の表面モフォロジーを Fig. 6 に示す。成長速度の上昇にともなう表面状態の荒れの発生はなく、良好なモフォロジーを保持している。

この高速成長の GaN を LED に採用することを考慮し、n-type GaN/nondoped-GaN を 7 μm 成長し、その結晶性について調査した結果を Fig. 7 に示す。

XRC-FWHM は 3.6 μm/h のものとほぼ同等であり、さらに 11 枚全ポケットの FWHM はどれも (0002) : < 200 arcsec, (10-12) : < 300 arcsec と良好な値であった。シート抵抗の基板面内分布は、3.6 μm/h で成長したものと同等であった。

また、高速成長条件を採用すると原料である有機金

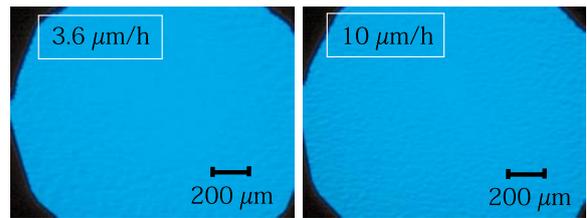


Fig. 6 Comparison of surface morphology of GaN between 3.6 μm/h and 10 μm/h.

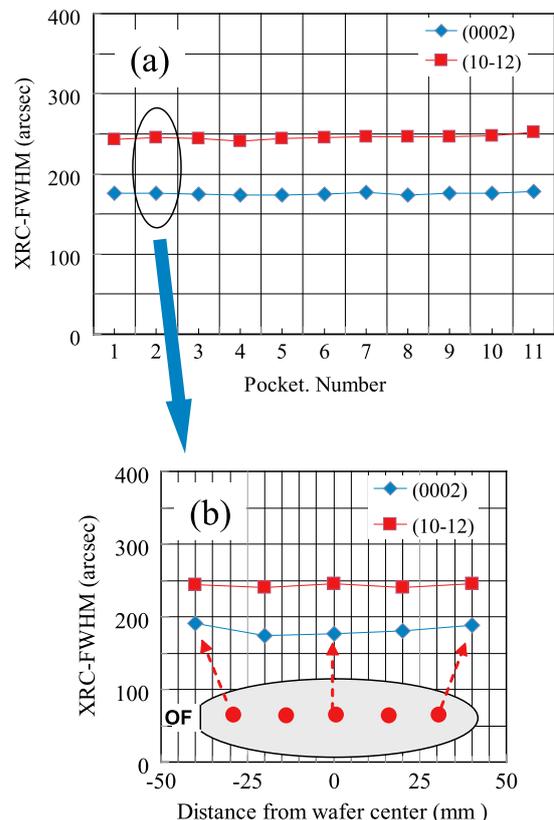


Fig. 7 XRC-FWHM of (a) wafer to wafer and (b) on wafer.

属分子内に存在する炭素 (C) が不純物として GaN 膜中へ取り込まれ易くなることが報告されている^{6,7)}。Fig. 8 は GaN 膜中 C, 酸素 (O), 水素 (H) の SIMS 分析の結果である。GaN の高速成長による C 濃度の増加は見られなかった。さらに O 濃度, H 濃度においても検出下限以下であった。

これらの結果は、高速成長 (≒ 10 μm/h) の下地 GaN が LED プロセスへの適用並びに全体成長時間の短縮に大きく貢献できることを示唆するものである。

4.3 AlGaIn

AlGaIn 成長の原料に使用される TMA は、気相中で膜に取り込まれない安定なアダクトを形成しやすいことが知られている⁸⁾。この気相反応が十分制御された温度環境であること、流体設計されたリアクタであることはプロセス条件の広ウインドウ化の観点で極めて重要である。

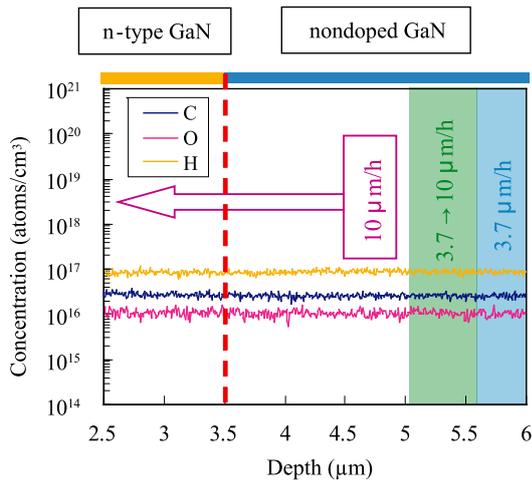


Fig. 8 SIMS depth profile of GaN sample at growth rate of 10 $\mu\text{m}/\text{h}$. (Detection Limits - H; $8 \times 10^{16} \text{cm}^{-3}$, C; $1 \times 10^{16} \text{cm}^{-3}$, O; $1 \times 10^{16} \text{cm}^{-3}$)

Fig. 9は大気圧で成長したAlGaInのAl組成分布及び膜厚分布の結果である。リアクタ内の原料ガスの流速もAlGaInの気相反応を抑制するためのパラメータの一つである。基板上的ガス流速を上げることで原料ガスの基板上への到達時間を短縮でき、気相反応を抑制することができる。今回は最もガスを大量に使用するAlGaIn層のガス使用量の低減を目的にSR23Kと比較して流速を約30%下げて成長した。その結果、SR23Kで成長した2インチ基板領域に関して同等の分布であり、4インチ基板面内でAl組成10.4%、Al組成分布1.8%を達成した。大気圧成長ではほぼ1 $\mu\text{m}/\text{h}$ の成長速度を達成しており、他機種同様、大気圧下でも気相反応が十分制御できている。

4.4 InGaIn/GaN MQW 及び LED 構造

InGaInの成長温度は800°C前後であるが、In組成が成長温度に非常に敏感で、この領域の温度制御はLEDの歩留まりを決定する重要なパラメータである。今回はInGaIn/GaNの5重量子井戸構造(5QW)を成

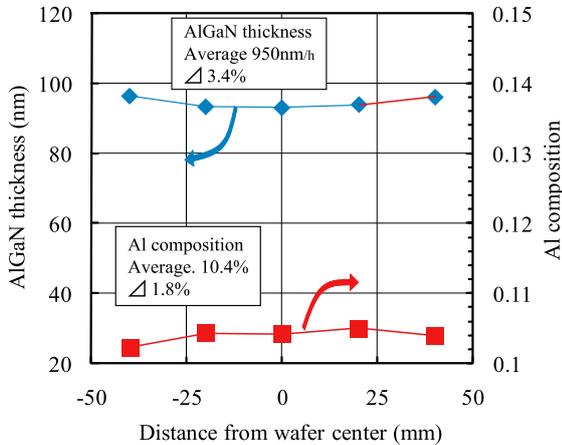


Fig. 9 Al composition and thickness distribution of bulk AlGaIn (growth time : 6min) .

長し、そのPL発光特性を調査した。そのスペクトルをFig. 10に示す。

半値幅<25 nm でありSR23K及びSR4000と比較しても遜色ない発光特性である。

次にこのMQW構造を活性層として用いてLED構造を作製した。成長した構造の概略図及び断面TEM写真をFig. 11に示す。TEM写真より、InGaIn well層及びGaN barrier層の界面の平坦性は良好であること、各層の厚みはそれぞれInGaIn well層 : 2.2 nm, GaN barrier層 : 11.3 nm, p-AlGaIn層 : 20.3 nm, p-GaN層 : 89.7 nmと設計膜厚通りであり、各層の界面の急峻性が確認できる。

Fig. 12にXRD ω -2 θ の測定結果及び構造シミュレーションの結果を合わせて示す。シミュレーション結果は測定結果とほぼ合致し、サテライトピークは急峻で且つそれぞれの半値幅も狭い。サテライトピーク間隔から見積もったMQWの1周期厚みは13.5 nmであり、TEMの結果と一致している。これは、p層成長時の昇温過程においてMQWが破壊されることなく、またMQW成長時において、Inがbarrier層に拡散することなく、設計通りの構造ができていることを

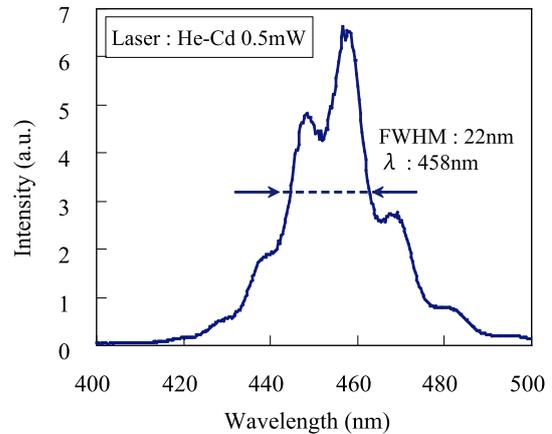


Fig. 10 PL spectrum of InGaIn/GaN MQW structure at room temperature.

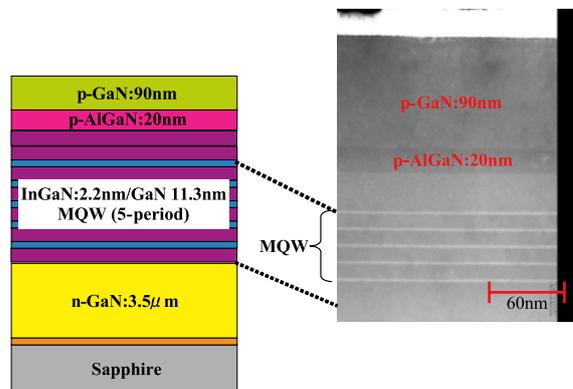


Fig. 11 Schematic diagram and cross-sectional TEM image of the LED structure.

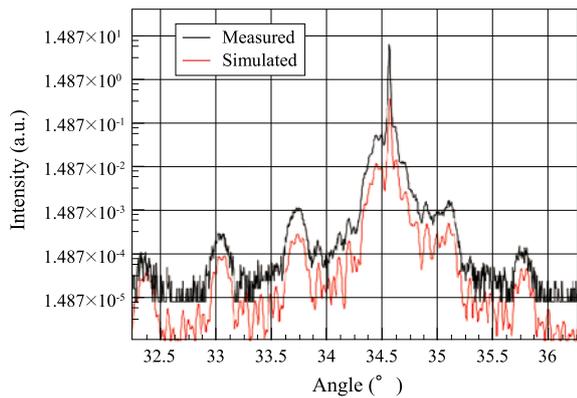


Fig. 12 XRD ω-2θ scan of LED structure.

示唆している。

簡易 EL 測定を行ったが、同構造で比較した EL 出力は、SR4000のそれと同等であった。さらに上記 LED の構造及び成長条件を最適化して同評価を実施した結果を Fig. 13 に示す。4 インチ基板上 LED 構造において、SR4000 とほぼ同レベルの光出力及び発光スペクトルの半値幅を達成した。この結果は、UR25K が SR4000 と同レベルの LED を作製可能な量産装置であることを示している。

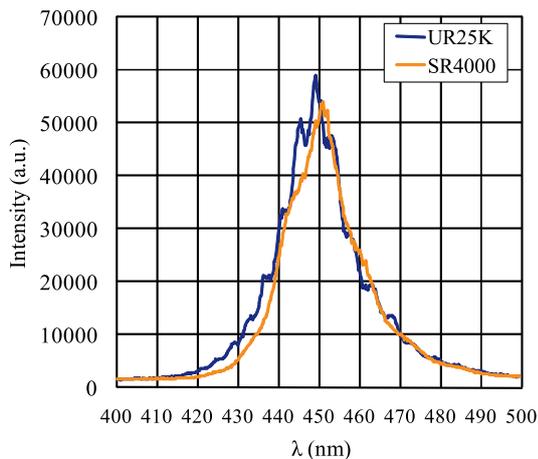


Fig.13 Comparison of EL spectra of LED between UR25K and SR4000.

5. まとめ

大口径基板 (4 インチ / 6 インチ) 対応の量産型 MOCVD 装置 “UR25K” の初期評価として、GaN, AlGaIn 及び InGaIn の大気圧での成長実験を行った。NH₃ と有機金属原料との間の気相反応が十分抑制されていることを検証し、リアクタ内の温度環境及び原料ガスフローが設計通り制御できていることを確認した。

サセプタ内の自転用歯車の設計を工夫し、基板間隔を極力狭めることで有機金属の原料利用効率を 17% 以上に向上できた。

UR25K 及び SR4000 でそれぞれ成長した 4 インチ基板の評価結果を Table 3 に示す。UR25K のエピ特性は、現時点で SR4000 とほぼ同等の値を達成することができた。特に GaN の成長速度を約 10 μm/h まで上げても膜中の C 濃度の上昇は見られなかった。

今後は、LED チップでの評価及びその分布に着目し性能向上に努める。本装置が、今後拡大が予想される窒化ガリウム系半導体デバイス市場において、生産装置として大いに貢献できるものとする。

Table 3 Comparison of results of several materials grown on 4 inch sapphire substrate between UR25K and SR4000.

Material	Item	UR25K (4 inch × 11)	SR4000 (4 inch × 1)
nondoped GaN	XRC-FWHM (0002)	162arcsec	185arcsec
	XRC-FWHM (10-12)	252arcsec	345arcsec
	Thickness uniformity	σ = 1.2%*	σ = 0.8%*
AlGaIn	Al composition	0.104	0.26
	Al uniformity	△ 1.8%	△ 3.6%
	Thickness uniformity	△ 3.4%	△ 8.2%
InGaIn/GaN	PL wavelength	456nm	463nm
	PL FWHM	22nm	24nm
	Peak position uniformity	σ = 0.9%*	σ = 0.5%*

* Exclusion zone : 2mm

参考文献

- 1) Nakamura, S.; Mukai, T.; Senoh, M. Candela-class high-brightness InGaIn/AlGaIn double-heterostructure blue-light-emitting diodes. Appl. Phys. Lett. 1994, 64, p.1687-1689.
- 2) 2009 年度版 LED 関連市場総調査. 富士キメラ総研, 2009, p.13-22.
- 3) 徳永裕樹, 福田靖, 生方映徳, 阿久津仲勇, 稲石美明, 小関修一, 山口晃, 植松邦全. 大量量産 GaN 用 MOCVD 装置の開発. 大陽日酸技報. 2006, (25), p.1-6.
- 4) Fukuda, Y.; Orita, T.; Akutsu, N.; Ikenaga, K.; Koseki, S.; Matsumoto, K.; Hasaka, S. Ex situ dry cleaning of reactor component of nitride metal organic chemical vapor deposition using chlorinated gas. J. Crystal Growth. 2007, 298, p.433-43.
- 5) Heinke, H.; Kirchner, V.; Einfeldt, S.; Hommel, D. X-ray diffraction analysis of the defect structure in epitaxial GaIn. Appl. Phys. Lett. 2000, 77, p.2145-2147.
- 6) Matsumoto, K.; Tokunaga, H.; Ubukata, A.; Ikenaga, K.; Fukuda, Y.; Tabuchi, T.; Kitamura, Y.; Koseki, S.; Yamaguchi, A.; Uematsu, K. High growth rate metal organic vapor phase epitaxy GaIn. J. Crystal Growth. 2008, 310, p.3950-3952.
- 7) 矢野良樹, 生方映徳, 池永和正, 田淵俊也, 松本功, 清水三聡. 大気圧 MOVPE 装置による窒化ガリウムの高速成長. 第 69 会応用物理学会学術講演会予稿集 No.1. 2008, p.309.
- 8) Nakamura, K.; Makino, O.; Tachibana, A.; Matsumoto, K. Quantum chemical study of parasitic reaction in III-V nitride semiconductor crystal growth. J. Organomet. Chem. 2000, 611, p.514-524.