OUKA
The University of Osaka
Institutional Knowledge Archive

Title	遷移金属を用いた触媒表面基準エッチング法による機能性材料の平坦化加工
Author(s)	定國, 峻
Citation	大阪大学, 2013, 博士論文
Version Type	VoR
URL	https://hdl.handle.net/11094/27529
rights	
Note	

The University of Osaka Institutional Knowledge Archive : OUKA

https://ir.library.osaka-u.ac.jp/

The University of Osaka

【100】

氏名	定國 峻（さだ くに しゅん）
博士の専攻分野の名称	博士（工学）
学位記番号	第 26166 号
学位授与年月日	平成25年3月25日
学位授与の要件	学位規則第4条第1項該当 工学研究科精密科学・応用物理学専攻
学位論文名	遷移金属を用いた触媒表面基準エッチング法による機能性材料の平坦化加工
論文審査委員	（主査） 教授 山内 和人 （副査） 教授 森川 良忠　教授 遠藤 勝義　教授 森田 瑞穂 教授 安武 潔　教授 桑原 裕司　教授 渡部 平司 准教授 佐野 泰久

論文内容の要旨

科学技術の永続的発展には，ワイドギャップ半導体に代表される新たな機能性材料の台頭が望まれる．その物性を究極的に発現させるための高度な精密加工技術が要求されており，精密加工技術の最終工程である研磨技術の発展が必要不可欠である．本論文では，遷移金属を触媒として溶液中分子の解離吸着反応により加工が進行する触媒表面基準エッチング (catalyst-referred etching, CARE) 法を提案し，複数の機能性材料表面を幾何学的，結晶学的に完全性高く平坦化した研究成果をまとめている．

第1章では，本研究の背景，目的及び本論文の構成について述べた．

第2章では，遷移金属である白金を触媒として用い，フッ化水素酸を加工液として用いたCARE法による4H-SiC (0001) 表面の平坦化加工について述べた．加工後表面は1バイレイヤー高さのステップテラス構造により構成される原子レベルで平坦な表面であることを示した．高分解能透過型電子顕微鏡を用いた観察により，そのテラス幅は基板のオフ角に依存せず広狭交互であり，結晶の積層構造に起因して形成されることを明らかにした．また，第一原理計算を用いた計算機シミュレーションにより反応素過程を解析した結果について示した．

第3章では，純水を加工液として用いたCARE法によるGaN (0001) 表面の平坦化加工について述べた．計算機シミュレーションにより実現可能性を解析した結果について示した．加工後表面は4H-SiC (0001) 表面同様に平坦であり，1バイレイヤー高さのステップテラス構造により構成されることを述べた．GaN表面にも広狭交互のテラス構造が観察されたが，その形成原因は4H-SiCの場合とは異なることを明らかにした．また，紫外光照射援用プロセスを導入し，加工能率を10倍へと向上した結果について述べた．

第4章では，本加工法を用いて機能性酸化物材料の平坦化加工を行った結果について述べた．いずれの加工材料においても原子レベルで平坦な表面が作製可能であることを述べた．

第5章では，触媒に着目し高能率加工条件を探索した．本加工法における触媒作用は溶液中分子の解離吸着反応の促進であり，不完全に占有されたd電子軌道を有する遷移金属が触媒として有効である．触媒活性の優れる複数の遷移金属を見出すとともに，触媒電位や溶液pHを制御することで高能率加工を実現した．

第6章では，光電気化学反応と固体酸触媒を用いたCARE法について述べ，GaN (0001) 表面の平坦化加工を行った．高能率に平坦な表面を作製可能であり，前処理工程として有用であることを示した．

第7章では，本研究を総括し，主たる結果についてまとめた．

スラリーを一切使用せず完全性の高い表面を実現可能であることは，従来技術に対して本加工法が有する大きな優位性である．とりわけスラリーの使用が嫌忌されるデバイスプロセスにおける応用展開が有望である．また，材料本来の特性が露出する理想的平坦表面の作製技術は，産業的側面に限定されず学術的にも有用性が認識されている．本技術の確立は，先進の材料工学・表面工学の発展に寄与するものと期待する．

論文審査の結果の要旨

本論文は，化学エッチングに基準面を導入した化学研磨法である，触媒表面基準エッチング (catalyst-referred etching, CARE) 法の提案，加工特性の考察，ならびに機能性材料表面の高精度平坦化加工を行った結果についてまとめたものであり，主な成果を要約すると以下の通りである．

(1) Pt触媒とフッ化水素酸を用いたCARE法により平坦化処理した4H-SiC(0001) 基板表面を，原子間力顕微鏡および透過型電子顕微鏡 (transmission electron microscopy, TEM) により観察しており，原子レベルの平坦性を確認している．また，基板オフ角に依存せず1バイレイヤー高さのステップテラス構造が存在し，そのテラス幅が広狭交互であることを明らかにしている．高分解能TEMにより取得した構造像をもとに，第一原理計算による解析結果を参照し，1バイレイヤー毎に露出するヘキサゴナル面とキュービック面のうち表面エネルギーの小さい後者が幅の広いテラスを構成していることが示されている．

(2) 遷移金属を触媒として用い，H_2O 分子の解離吸着反応により加工が進行するCARE法を提案し，不完全に占有されたd電子軌道を有するCr, Ni, Pt等を触媒材料として選択することで，各種機能材料をエッチング可能であることが示されている．一方，d電子軌道が閉殻であるAuやAgを用いた場合においては一切の加工が成されないことを明らかにしている．

(3) SiC, GaN, ZnO, サファイア，石英ガラス基板表面の高精度平坦化処理が可能であることを実証している．加工後表面がいずれもラフネス0.1 nm rms程度に極めて平坦であり，単結晶材料においては全てパンチングのない1バイレイヤー高さのステップテラス構造によって構成されることが示されている．また，加工特性が触媒表面状態に強く依存することを見出しており，触媒電位と溶液pHの制御による高能率加工に成功している．

(4) 紫外光照射プロセスの導入による高能率化が検討されている．これは，CARE法の加工起点がステップ端であることを鑑み，光電気化学反応によりテラス上に微小ピットを形成することで加工速度が増加すると考えたものである．低オフ角であるGaN基板に対して加工実験を行い，10倍の速度を得ることに成功している．

(5) 光電気化学反応と固体酸触媒を用いた化学研磨法をCARE法の前処理プロセスとして導入することにより，ラッピング処理後GaN基板をスラリーの使用無く高能率・高精度に平坦化処理する二段階研磨プロセスを実現している．

以上のように、本論文は化学エッチングに基づくダメージレスかつ高能率な平坦・平滑化を実現する触媒表面基準エッチング法を提案し，各種機能性材料の平坦表面創成が可能であることを実証しており，工業的ならびに学術的発展に寄与するところが大きい．よって本論文は博士論文として価値あるものと認める．