The University of Osaka
Institutional Knowledge Archive

Title	純水中での触媒援用型エッチング法の開発
Author(s)	礒橋, 藍
Citation	大阪大学, 2017, 博士論文
Version Type	VoR
URL	https://doi.org/10.18910/61714
rights	
Note	

The University of Osaka Institutional Knowledge Archive : OUKA

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

The University of Osaka

様式３

論　文　内　容　の　要　旨

氏　名　（　　礒橋　藍　　）	
論文題名	純水中での触媒援用型エッチング法の開発

論文内容の要旨

本論分は環境負荷の少ない純水を用いた高精度化学的表面処理技術の開発を主目的に，触媒存在下における純水中でのエッチング反応を応用した高精度研磨技術の提案し，これを開発した結果をまとめたものである．各種酸化物材料，次世代半導体基板上に原子レベルで平坦，平滑な表面を実現し，実験からその加工特性を，計算機シミュレーションからその材料除去機構を詳細に検討することで高能率加工が実現されうる加工系の提案，調査を行った．章毎の内容を以下に要約する．

第1章では本論分の背景となる表面処理技術についてその概要を述べ，現行技術への課題，要求を示した上で本研究の目的となる，目指すべき技術像を述べた．

第2章では純化学作用に基づく加工技術として触媒を利用した化学的研磨法，触媒表面基準エッチング（CARE）法の基礎概念を述べた．白金（Pt）触媒，フッ化水素酸（HF）溶液を用いたCARE法を次世代パワーデバイス用半導体基板として注目を集めるSiC基板に対して適用し，加工後表面の平滑性及び結晶性をはじめとした加工特性評価を行った結果について記述した．さらに，計算機シミュレーションによる材料除去過程の解析を行い，原理考察を行った結果について述べた．

第3章では純水中で進行するエッチング反応の可能性を議論し，これを純水CAREとして各種酸化物材料基板に適用した結果を述べた．得られた結果を元に計算モデルを構築し，材料除去機構に対する計算機シミュレーションを実施し，反応素過程を詳細に解析した結果を記した．また，加工液pH，触媒金属への加工速度の依存性や重水を用いた評価実験から材料除去反応を実験的側面から考察した結果について記した．加工を続けた場合に確認された触媒被毒現象に対してはその解消手段を提案，実証し，妥当性を計算機シミュレーションから示した結果について述べた．

第4章では難加工材料として知られるSiC基板，GaN基板に対し，純水CAREを適用し加工後表面の平坦性や加工速度の触媒依存性などをはじめとする加工特性評価を行った結果を記した．また，SiC基板の材料除去過程を計算機シミュレーションにより解析することで，純水CAREにおけるPtの果たす触媒作用など，詳細な原理考察を行った結果について述べた．

第5章では半導体材料に対する純水CAREの加工速度向上を目指し，酸化反応の援用や，高い触媒活性を有するNiの導入など，新たな加工系の検討を行った結果について述べた．両手法共に加工速度は飛躍的に向上し，実プロセスへの応用可能性を示した．

第6章では本研究で得られた成果，知見を総括し，今後の展望を述べた．

様式 7

論文審査の結果の要旨及び担当者

氏　名　（　礒橋　藍　）			
論文審査担当者		（職）	氏　名
	主 査	教授	山内　和人
	副 査	教授	桑原　裕司
	副 査	准教授	佐野　泰久
	副 査	教授	安武　潔
	副 査	教授	森田　瑞穂
	副 査	教授	森川　良忠
	副 査	教授	遠藤　勝義

論文審査の結果の要旨

本論文は，環境負荷の少ない純水を用いた高精度化学的表面処理技術の開発を主目的に，触媒存在下における純水中でのエッチング反応を応用した高精度表面研磨技術の提案，開発を行い，これを各種機能性材料基板の平坦化加工に適用した結果をまとめたものである．石英硝子をはじめとする各種酸化物材料や次世代半導体基板上に原子レベルで平坦，平滑な表面を実現し，実験面からその加工特性を，理論面からその材料除去機構を詳細に検討し，高能率加工系の実現可能性を調査，実証した結果が記されている．主な成果を要約すると以下の通りである．

1. Pt，HF溶液を使用した触媒表面基準エッチング法 (HF–CARE) をSiC基板の平坦化加工に適用し，その加工原理が“HF分子の解離吸着による構造変化を介して段階的に進行するSi–C結合の切断反応である”ということを実験，理論計算の双方から評価し，その妥当性を示している．
2. Siに対するF^-とOH^-の求核性が類似することに着眼し，CARE加工系における純水中でのエッチング反応の可能性を新たに見出し，純水を加工液とするCARE法（純水CARE）を提案しており，これにより，石英硝子をはじめとした各種酸化物材料ならびにSiC, GaN基板などの半導体セラミックス材料の高精度平坦化加工が可能であると明らかにしている．単結晶材料上では全ての材料で結晶構造に起因するワンバイレイヤー高さのステップテラス構造を有する原子レベル平坦面が得られることが示されている．純水CAREにおける材料除去機構をHF–CAREに倣い計算機シミュレーションで評価し，さらに，加工液pHや溶存イオン種を変化させることで加工特性評価を行い，反応の律速過程や触媒の被毒現象に至るまでを詳細に評価している．
3. 加工液，触媒材料の選択性の広さを生かし，遷移金属触媒の効果的な利用法を提案，実証している．なかでもNiを触媒とした際に除去反応効率が高いことが示されており，表面酸化をはじめとした触媒機能劣化に対して電気めっき技術をベースとした電気化学反応を応用することで，In-situで活性なNiを供給し続ける方法を提示している．これにより，純水CAREにおいてもHF溶液使用時と遜色ない高能率加工の実現に成功している．
4. 光電気化学反応の援用によるセラミックス材料表面の酸化反応を誘起させることで，加工の高効率化に成功しており，さらに，酸化反応過程を阻害しうる各種要因を詳細に検討することで，ラッピング処理後のGaN表面を純水CAREのみで高能率・高精度に平坦化処理する二段階研磨プロセスの実証に成功している．

以上のように、本論文は全く新たな反応系である純水中でのエッチング反応を見出し，それを学術的に評価するだけでなく，産業的にも有意である環境負荷の少ない加工技術はと発展させ，その有用性を実証する内容であり，学術的，産業的に精密科学の発展に大きく貢献しうると評価できる．よって本論文は博士論文として価値あるものと認める。