The University of Osaka
Institutional Knowledge Archive

Title	後方パルスレーザ堆積法におけるレーザ誘起プルーム挙動に依存したナノ柱状構造体創製に関する研究
Author(s)	神田, 和輝
Citation	大阪大学, 2020, 博士論文
Version Type	VoR
URL	https://doi.org/10.18910/77488
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　（　神田和輝　）	
論文題名	後方パルスレーザ堆積法におけるレーザ誘起プルーム挙動に依存した ナノ柱状構造体創製に関する研究

論文内容の要旨

自動車の信頼性確保には車載半導体パッケージにおける封止樹脂と金属部材であるリードフレームの異材接合が重要である。従来は、接着剤の塗布や樹脂への密着付与剤の添加等による接合工法が用いられてきた。しかし接着剤の場合、塗布・硬化工程を必要とすることから生産工程が煩雑化し生産性低下を招く。また、密着付与剤の場合は樹脂母材特性が劣化するなど課題が多い。これらを解決する方法の1つとして、金属表面の樹脂との接合部に対し選択的に微細構造を形成することで樹脂と金属を接合する技術が望まれている。加えて、車載半導体パッケージのリードフレームには、耐食性向上等を目的に厚さ10 μm以下のニッケルめっきが施されており、めっき機能を損なわないようにめっき表層に微細構造を形成する必要がある。従って樹脂との接合性とめっき機能を両立するために、200 nm程の高さの複数の柱状構造から成るナノ柱状構造体を形成することが有効手段となり得る。しかし、従来技術ではナノ柱状構造体の局所形成は困難であった。そこで本研究では、パルスレーザを金属表面に照射した際に発生するレーザ誘起プルームの後方運動を活用し、ニッケルめっき表面にナノ柱状構造体の形成を試みた。そして、後方パルスレーザ堆積法による「ナノ柱状構造体の創製」と「ナノ柱状構造体の形成機構の解明」を本論文の目的とした。

第1章では、本研究の背景及び目的を述べ、半導体パッケージを対象とした樹脂と金属の異材接合における、後方パルスレーザ堆積法によるナノ柱状構造体の有用性について述べた。また、ナノ構造体の形成機構がレーザ誘起プルームに含まれる粒子の基板上への堆積であると推察した。そして、プルーム中の粒子の運動エネルギを減少させ、粒子の基板上の表面拡散を低下させることでナノ柱状構造体を形成できる可能性を示した。

第2章では、レーザパルス照射の繰り返しによりナノ構造体の形成が進行すると考え、ナノ構造体形成におけるレーザパルス数の影響を実験により明らかにした。結果として、レーザパルス数がナノ構造体の高さに影響することが明らかになった。また、ナノ構造体の形成機構が、プルーム中の粒子の堆積であることが示された。

第3章では、レーザフルエンスがレーザ誘起プルームの伝播距離に寄与することから、ナノ柱状構造体形成におけるレーザフルエンスの影響を実験により明らかにした。結果として、3.75 J/cm^{2}以上のレーザフルエンスにおいて、高さ200 nmのナノ柱状構造体を形成することが出来た。また、レーザフルエンスがナノ柱状構造体の高さ、幅、ピッチ、及び形成範囲に影響することが示された。そして、これら形状変化は、レーザフルエンスによるレーザ誘起プルーム中の粒子の運動エネルギ変動が起因していることが示された。

第4章では、後方パルスレーザ堆積法において雰囲気圧力によるプルームの閉じ込め効果が重要であることから、ナノ柱状構造体形成に必要な雰囲気圧力条件を実験により明らかにした。結果として、低真空下ではナノ柱状構造体が形成されず、ナノ柱状構造体の形成には少なくとも10000 Pa以上の雰囲気圧力が必要であることが示された。

第5章では、レーザ誘起プルーム中の粒子と雰囲気中の酸素分子との酸化反応により粒子の運動エネルギが減少すると考えられることから、ナノ柱状構造体形成における雰囲気中の酸素分圧の影響を実験により明らかにした。結果として、酸素分圧を上げることでナノ構造体が平坦膜からナノ柱状構造体に変化することが示された。従って、ナノ柱状構造体の形成には酸素雰囲気下でレーザ照射を行う必要があることが明らかになった。

第6章は本論文の結論であり、研究で得られた成果を総括した。本研究により、後方パルスレーザ堆積法によりニッケル表面にナノ柱状構造体の形成が可能であることを示した。また、ナノ柱状構造体の形成はレーザ誘起プルーム中の粒子の基板上への堆積に起因していることを明らかにし、堆積後の粒子の表面拡散がナノ構造体の形状に影響することを示した。加えて、レーザパルス数、レーザフルエンス、雰囲気圧力、及び雰囲気中の酸素分圧がナノ柱状構造体形成に影響を及ぼすことを明らかにした。そして、レーザ誘起プルーム中の粒子の運動エネルギを物理的・化学的な相互作用により変動させることで、ナノ構造体の形状が変化することを示した。また、本研究を通じ、後方パルスレーザ堆積法により平坦膜からナノ柱状構造体までナノ構造体が変化することを示した。本研究で得られた知見が、樹脂と金属の異材接合だけでなく、種々の機能性薄膜の形成に応用・発展する可能性を示した。

様式 7

論文審査の結果の要旨及び担当者

氏　名　（　神田　和輝　）		
論文審査担当者	（職）	氏　名
	主 査　教授	塚本 雅裕
	副 査　教授	赤松 史光
	副 査　教授	近藤 勝義
	副 査　准教授	佐藤 雄二

論文審査の結果の要旨

本論文は後方パルスレーザ堆積法におけるナノ柱状構造体の創製及び形成機構を明らかにすることを目的としている。自動車の信頼性確保には車載半導体パッケージにおける封止樹脂と金属部材との異材接合が重要になる。産業的観点から、従来法である接着剤や密着付与剤等を使用せずに接合する技術が望まれており、金属表面の樹脂との接合部のみに選択的に微細構造を形成することで樹脂と金属を接合する技術が期待されている。加えて、車載半導体パッケージのリードフレームには、耐食性向上等を目的に厚さ 10 μm 以下のニッケルめっきが施されており、樹脂との接合性とめっき機能を両立するために、200 nm 程の高さの複数の柱状構造から成るナノ柱状構造体を形成することが有効手段となり得る。しかし、従来技術ではナノ柱状構造体の局所形成は困難である。そこで本研究では、パルスレーザを金属表面に照射した際に発生するレーザ誘起プルームの後方運動を利用したナノ柱状構造体の形成方法（以下、後方パルスレーザ堆積法）を提案した。本方法を用いたナノ柱状構造体形成を実証し、その形成機構の解明を行った。

第１章では、本研究の背景及び目的を述べており、車載半導体パッケージを対象とした樹脂と金属の異材接合において、後方パルスレーザ堆積法によるナノ柱状構造体の有用性を述べている。また、レーザと金属、及びレーザ誘起プルームの相互作用から後方パルスレーザ堆積法におけるナノ構造体の形成機構を推察し、レーザ誘起プルーム中の粒子の運動エネルギを減少させることで、ナノ柱状構造体を形成できる可能性を示している。

第２章では、後方パルスレーザ堆積法において、レーザ照射の繰り返しによりナノ構造体が形成されると考え、ナノ構造体形成におけるレーザパルス数の影響を実験により明らかにしている。レーザパルス数増加に伴うナノ構造体の形態変化を観察した結果、レーザパルス数の増加によってナノ構造体の高さが増加することを示している。また、ナノ構造体の形成機構がレーザ誘起プルーム中の粒子の堆積であることを明らかにしている。そしてこのことから、レーザ誘起プルーム中の粒子の運動エネルギを減少させることで、粒子の基板堆積後の表面拡散が低下し、ナノ柱状構造体を形成する機構について示している。

第３章では、レーザフルエンスがレーザ誘起プルームの伝播距離及び温度に寄与することから、ナノ柱状構造体形成におけるレーザフルエンスの影響を実験により明らかにしている。レーザフルエンス増加に伴うナノ構造体の形態変化を観察した結果、3.75 J/cm^2 以上のレーザフルエンスにおいて、高さが 200 nm でありアスペクト比が 5.0 であるナノ柱状構造体を形成できることを実証している。また、レーザフルエンスがナノ柱状構造体の形成範囲に影響することを明らかにしている。加えて、レーザフルエンスがナノ柱状構造体の高さや幅、ピッチに影響することを明らかにしている。そしてレーザフルエンスが大きくなると、ナノ柱状構造体ではなく平坦層が形成され、ナノ柱状構造体のアスペクト比が低下することを明らかにしている。またこれらナノ構造体の形態変化は、レーザフルエンス増加によりレーザ誘起プルームの温度が上がり、基板堆積後の粒子の表面拡散増加が起因する可能性を示している。

第４章では、後方パルスレーザ堆積法において雰囲気圧力によるレーザ誘起プルームの閉じ込め効果が重要と考え、

ナノ柱状構造体形成に必要な雰囲気圧力を実験により明らかにしている。雰囲気圧力によるナノ柱状構造体の形態変化を観察した結果、低真空下ではナノ柱状構造体が形成されないことを明らかにしている。そして、ナノ柱状構造体の形成には、少なくとも 10000 Pa 以上の雰囲気圧力が必要であることを明らかにしている。従って、大気圧相当の雰囲気圧力であればナノ柱状構造体を形成可能であることを明らかにし、産業用途における本方法の有用性を示している。また、これら雰囲気圧力によるナノ柱状構造体の形態変化の原因が、雰囲気圧力が低下することでレーザ誘起プルームの閉じ込め効果が弱まった結果、レーザ誘起プルームの後方運動が減少し、粒子の堆積量が減少したためであることを示している。

第 5 章では、レーザ誘起プルーム中の粒子と雰囲気中の酸素分子との酸化反応により粒子の運動エネルギが減少すると考え、ナノ柱状構造体形成における雰囲気中の酸素分圧の影響を実験により明らかにしている。全圧を大気圧とし、酸素分圧によるナノ柱状構造体の形態変化を観察した結果、酸素分圧を上げることでナノ構造体が平坦膜からナノ柱状構造体に変化することを明らかにしている。従って、ナノ柱状構造体の形成には酸素雰囲気下でレーザ照射を行う必要があることを明らかにしている。そして、大気相当の酸素分圧下であればナノ柱状構造体を形成可能であることを明らかにし、産業用途における本方法の有用性を示している。

第 6 章は、本論文の結論であり、本研究で得られた成果を総括している。そして、後方パルスレーザ堆積法によるナノ柱状構造体の創製に関する新たな知見について言及している。

以上のように、本論文は後方パルスレーザ堆積法におけるナノ柱状構造体の創製及び形成機構を明らかにしており、今後の車載半導体パッケージにおける樹脂と金属の異材接合だけでなく、種々の機能性薄膜の形成に対する大きな貢献が期待される。よって本論文は博士論文として価値あるものと認める。