The University of Osaka
Institutional Knowledge Archive

Title	触媒表面基準エッチング法における材料除去機構の解明と各種機能性材料への応用
Author(s)	藤, 大雪
Citation	大阪大学, 2021, 博士論文
Version Type	
URL	https://hdl.handle.net/11094/82215
rights	
Note	やむを得ない事由があると学位審査研究科が承認したため、全文に代えてその内容の要約を公開しています。全文のご利用をご希望の場合は、大阪大学の博士論文についてをご参照ください。

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　（　藤　大　雪　）	
論文題名	触媒表面基準エッチング法における材料除去機構の解明と各種機能性材料への応用

論文内容の要旨

先端科学技術で利用される光学デバイスや電子デバイスの基板にはその材料の物性値を極限的に発現できる結晶学的ダメージのない原子レベルに規定された表面が求められる．しかしながら砥粒を用いる現行の研磨手法では原理的に機械的ダメージの導入は避けられない．そこで砥粒を使用せず，触媒面を基準面とした化学エッチングのみで材料除去が進行する研磨手法，触媒表面基準エッチング（catalyst-referred etching, CARE）法が開発された．本論文はCARE法の実用化を目指し，本手法の材料除去機構の解明と各種機能性材料への適応について検討した結果をまとめたものである．

第1章では本研究の背景および現行の研磨技術における課題を述べ，本研究の目的を述べた．

第2章ではCARE法の概念を述べ，触媒にPt，加工液に純水を用い，半導体材料であるSiCおよびGaNの平坦化加工を実施した結果を述べ，本手法の加工特性を示した．さらに加工実験から得られた知見を基に，ステップテラス構造を有するSiCモデルを作製し，計算機シミュレーションを用いてSiCのステップ端Si原子の除去過程を解析し，その結果を述べた．

第3章では2章で実施したSiCの材料除去機構の解析から得られた知見を基に，CARE法の酸化物材料への適応を検討した．水晶および石英ガラスを対象試料とし，加工前後でその表面を白色干渉計，AFMを用いて観察することで加工特性を評価し，その結果を述べた．また，ステップテラス構造を有する水晶モデルを作製し，そのステップ端Siの除去過程を，計算機シミュレーションを用いて解析した結果を述べ，CARE法の普遍的な材料除去機構を示した．さらに，材料除去過程において触媒/試料界面に形成される結合に注目することで，Pt触媒の約10倍もの高い触媒活性を示し，CARE法の高能率化を可能にする，Ru，Ni触媒を見出した．

第4章ではPt触媒や高い触媒活性を示すRu，Ni触媒の使用において顕著に確認された加工速度の経時的低下現象について考察した．この低下現象の原因が加工後生成物の吸着や表面酸化による触媒サイトの被覆であると考え，加工後生成物や酸化物の脱離反応を促進する3つの手法を提案し，それぞれの加工特性を述べた．各手法とも加工速度の長期的な安定化にきわめて有効であることを明らかにした．

第5章では半導体材料の表面処理においてその高能率化を目指し，紫外光照射により進行するPEC酸化を援用したCARE法(PEC-CARE法）を提案し，本手法をSiC基板，GaN基板に適応することでその加工特性を評価し，その結果を述べた．各種材料の加工速度は50倍以上も向上し，PEC-CARE法の有効性を示した．

第6章では本手法が触媒表面上のみで進行する化学反応を利用していることに着想し，表面に様々な面方位を有する多結晶材料表面の平坦化に対してもCARE法が有効であると考え，焼結体SiC，NdドープYAGセラミックスを試料として，本手法の有効性を検討した結果を述べた．本手法の適応において，多結晶材料表面の結晶学的特性を考慮し，従来使用していたゴムパッドに比べて硬質なパッドが必要であると考え，高分子材料およびSi基板を母材としたパッドを提案し，作製した．硬質なパッドを用いることで機械的ダメージや粒界段差フリーの高精度表面の取得に成功し，CARE法の新たな可能性を示した．

第7章では各章で得られた知見をまとめ将来展望を述べた．

様式 7

論文審査の結果の要旨及び担当者

氏　名　（　藤　大雪）			
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	教授	森川　良忠
	副 査	准教授	佐野　泰久
	副 査	教授	安武　潔
	副 査	教授	山村　和也
	副 査	教授	荻　博次
	副 査	教授	渡部　平司
	副 査	教授	遠藤　勝義

論文審査の結果の要旨

本論文は触媒表面のみで進行する化学エッチングを利用した研磨技術である触媒表面基準エッチング（CARE）法における材料除去機構の解明と各種機能性材料への適応を目的としており，半導体材料であるSiC，酸化物材料であるSiO_2を対象とした計算機シミュレーションを用いた材料除去機構の解析結果，および，単結晶，多結晶材料の平坦化を実施し得られた加工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. SiC 基板の加工結果から本手法のエッチング機構がステップ端を起点とするステップフロー型であると考察し，第一原理分子動力学を基にした計算アルゴリズムを使用して，ステップ端原子の除去機構の詳細を明らかにしている．また，得られた解析結果から本手法が酸化物材料に対しても有効であると推察し，機能性酸化物材料である SiO_2 基板や SBO 基板の平坦化を実施して，両基板において原子レベルの平滑面の作製に成功している．さらに SiC と同様に計算機シミュレーションを用いて SiO_2 の除去機構を解析し，材料に依らない本手法の材料除去機構を明らかにしている．さらに明かになった材料除去機構から，これまで使用していた Pt 触媒の約 10 倍の触媒作用を示す Ni，Ru 触媒を見出している．
2. 加工の進行に伴い確認された加工速度の低下現象について加工後生成物による触媒表面の被覆であると考察しており，加工後生成物が触媒表面から容易に脱離できるように触媒活性を調整できる合金触媒の利用を提案している．RuTi 合金を用いることで長時間安定した高能率加工を実現し，本提案の効果を実証している．
3. 半導体材料である SiC や GaN の物性に注目し，光電気化学酸化を援用した CARE 法（PEC-CARE 法）を提案している．各材料基板に対して PEC-CARE 法を適応することで，これまでと同等の高精度表面の取得と 100 倍近い加工速度の向上を同時に達成している．
4. 多結晶材料である焼結体 SiC や Nd ドープ YAG セラミクスに高分子材料や Si を母材とした硬質なパッドを用いた CARE 法を適応し，その加工特性を示している．硬質なパッドを利用することで，最表面に位置する結晶粒からエッチングすることが可能になり，粒界段差やスクラッチのない原子レベルで平滑な表面の作製に成功している．

以上のように、本論文は触媒反応により進行する新規な研磨手法であるCARE法について，その材料除去機構を実験および理論の観点から明らかにしており，さらにそこから得られた知見を基に，多様な機能性材料への適応や本手法の高能率化に着手し，それを達成している．これは学術的にも，工業的にも非常に有益であり，今後の精密加工技術の発展に大きく貢献できるものであると言える．よって本論文は博士論文として価値あるものと認める．