

平成 26 年 6 月 17 日現在

機関番号：12101

研究種目：基盤研究(B)

研究期間：2011～2013

課題番号：23360062

研究課題名(和文) “軟脆”特徴を持つ高機能材料の無欠陥表面創成加工技術と評価技術に関する研究

研究課題名(英文) Study on the characterization and grinding technology of "soft-brittle" functional materials

研究代表者

周立波(Zhou, Libo)

茨城大学・工学部・教授

研究者番号：90235705

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 14,600,000円、(間接経費) 4,380,000円

研究成果の概要(和文)：近年新開発された高機能半導体材料や光学素子用結晶などの多くは、軟らかくて脆い機械特性を持っている。生産加工の分野では、これまでこのような“軟脆”(Soft-Brittle)材料が未踏の物性領域で、その超精密加工技術が確立されていない。

本研究では、携帯電話などの無線通信SAWフィルタに用いられるタンタル酸リチウム(LiTaO₃ or LT)ウエハを対象に、その機械および物理特性を精査して、研削加工に対する影響を解明すると同時に、“軟脆”材料の形状精度と表面品位を両立した超精密・無欠陥加工技術及びその評価技術の開発、確立を目指す。

研究成果の概要(英文)：New functional materials has been developed to meet the requirements from semiconductor and optical industries recently. Most of those materials are made in single crystal and present "soft-and-brittle" characteristic in their mechanical property, thus are very difficult to be machined.

As a typical multi-functional single crystal material, Lithium tantalate (LiTaO₃ or LT) exhibits its excellent electro-optical, pyroelectric and piezoelectric properties, and has now been widely applied into many applications, especially in the telecommunication field. However, its mechanical and physical properties and the influence on the grinding performance are still not fully understood. This research project aims to establishment of a fixed abrasive process for LT wafers to achieve both high geometry accuracy and surface integrity, via discovery of influence of the mechanical and physical properties of "soft-and-brittle" materials, especially, its pyroelectric effect and piezoelectric effect.

研究分野：工学

科研費の分科・細目：機械工学

キーワード：軟脆材料 硬脆材料 単結晶 機械化学融合加工 焦電効果 圧電効果

1. 研究開始当初の背景

近年新開発された高機能半導体材料や光学素子用結晶などの多くは、軟らかくて脆い機械特性を持っている。半導体は、これまでシリコン単結晶を中心に材料の開発及び応用が進められてきた。最近のパワーデバイス、青色と緑色半導体レーザ、太陽電池などの開発において、絶縁破壊電界、熱伝導率及び飽和電子速度が高く、バンドギャップが広いなどの特性を持つ半導体材料が求められ、様々な新型結晶の開発が盛んに行なわれている。中には、特に直接遷移型の III-V 族 GaAs, GaN, II-VI 族の CdTe などの化合物半導体が注目されている。IV 族の Si や SiC のような共有結合を持つ結晶に比べて、これらの化合物は弱いイオン結合のため、硬度が Si の 1/3~1/8 程度である。また結晶方位によって結合強度が大きく異なり、極めて脆いのが特徴である。

このような“軟脆”として特徴付けられる結晶に対して、材料の物性に由来する制約から従来の超精密加工技術を使用することはできない。例えば、ポリシングのような遊離砥粒加工では、砥粒が柔らかい工作物の表面に突き刺さって高品位の表面が得られない。このような“軟”と“脆”の性質を併せ持つ材料が精密加工分野においては未踏の物性領域で、学術基盤が確立されていない。

2. 研究の目的

本研究は、研究代表者らが開発した CMG 技術を基に、機械加工プロセスに化学反応の要素を積極的に取り入れて、“軟脆”材料の形状精度と表面品位を両立した超精密加工技術及びその評価技術を体系的に研究、開発する。

3. 研究の方法

- マイクロインデンテーション/スクラッチング及び分子動力学シミュレーションの手法を使い、応力/反応場における“軟脆”材料の機械特性を実験的、理論的に明らかにする。
- 研削加工において、“軟脆”材料の機械特性が材料除去メカニズムに対する影響を解明する。
- “軟脆”材料に即した反応性を有する軟質砥粒を研究し、基礎実験を経て、効果的な CMG 砥石を開発、製作する。
- 加工実験を通して、形状精度と表面品位を両立した加工プロセスの確立、加工条件の最適化及び除去メカニズムの解明を行なう。
- 加工表面及び亜表面の加工品位の評価技術を開発する。

4. 研究成果

材料のヤング率、硬度、破壊靱性値など主要な機械特性は、一般にマイクロ硬さ計を用いて、材料に対するナノインデンテーションで得られる荷重-深さ曲線から算出する。ところが、“軟脆”材料が脆いため、加えられる荷重が数 mN までと極めて小さい。そのため

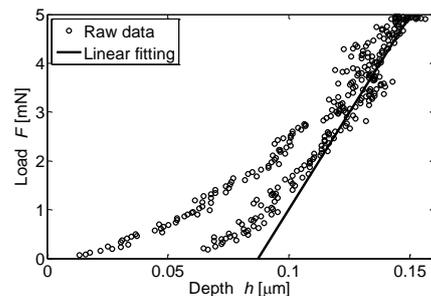


図1 荷重-深さ曲線と接触剛性

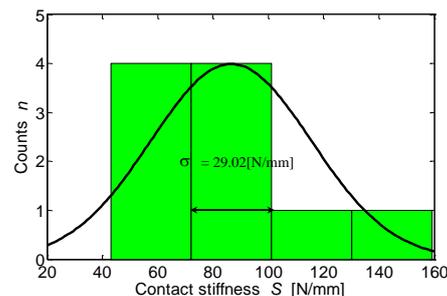


図2 従来法で得た接触剛性とバラツキ

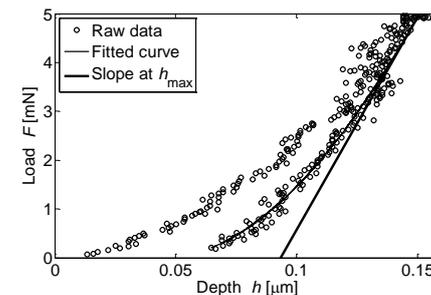


図3 開発した Curve fitting 法と接触剛性

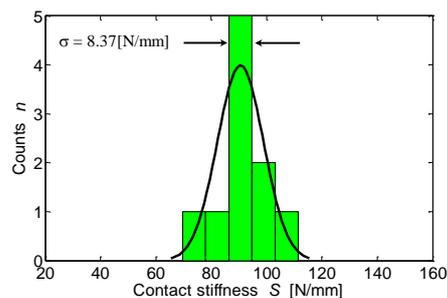


図4 開発手法で得た接触剛性とバラツキ

相対的にノイズの影響が顕在化し、図1に示すように荷重-深さ曲線が不安定になりやすい。

この問題を解決するために、ほとんどの装置メーカーが除荷過程の上位 20~40% のデータを使い直線近似をして、その傾きを接触剛性にしている。この方法は、除荷過程のデータの一部 (50%以下) しか使用していなく、明らかにデータの不安定性の影響を受けやすい。また近似に使うデータの量によって傾きが異なる。その結果、得られた接触剛性が図2に示すように大きなばらつき ($\sigma = 29.02\text{N/mm}$)

を有する。

本研究では、多変数曲線近似手法を開発し、まず除荷過程を $F = \alpha(h - h_p)^m$ に近似し、図3に示す曲線を得た。次にその曲線を微分して、除荷開始点の傾き $S = dF/dh = \alpha \cdot m(h - h_p)^{m-1}$ を接触剛性として求めた。この方法で得られた接触剛性のばらつきが、図4のように従来法の1/3弱($\sigma = 8.37\text{N/mm}$)と小さくなった。

また、インデンテーションに使う圧子の幾何誤差及び先端摩耗に起因して、従来法で得られたヤング率や硬さは、一般に図5のシリコン単結晶の例のように押し込み深さと共に減少傾向にある。この現象に対してこれまで“寸法効果”や“加工変質層”などの影響と説明されてきた。しかし開発した手法を用いると、押し込み深さに関係なくヤング率が一定の値を示した(図5)。これが、本手法による圧子の押し込み深さと接触面積の関係式が極めて正確に補正されていることを意味する。

さらに研究者が意図しないところで、上記の関係式が材料に依存することも明らかにした。一般に同じ押し込み深さにおいて、異なる材料が異なる変形量を示す。この自明の理が本手法により初めてマイクロ領域で確認できるようになった。異種材料への対応に加えて、本開発手法は圧子先端の摩耗にも対応できるRobust性を併せ持つ。

本研究で使用した“軟脆”材料は、携帯電話などの無線通信機器によく使われるLiTaO₃単結晶(LT)である。比較対象として、代表的な硬脆材料の単結晶サファイアと物性値がよくわかっている単結晶Siを選んだ。図6には、この3種類の材料をマイクロインデンテーション時に得られた荷重-深さ曲線、および異なる負荷対応した圧痕のSEM写真を示す。これらの結果により、LT、サファイア、Si結晶にクラックが発生する臨界荷重がそれぞれ、8mN、60mN、900mNである。これまで“硬脆”材料と一括りされたこれらの材料は、応力場においてその特性が2ケタ以上も異なり、同じグループでその加工性能を議論することができない。

次に、開発したRobust手法を用いて、3種類材料の破壊靱性値 K_{IC} を求めて、硬度 H に対する関係を図7のように両対数で示す。参考のために、代表的な金属(steel and Al alloy)、セラミックス(ZrO₂, Al₂O₃, Si₃N₄, SiC)とアモルファス(BK7, soda glass)の材料特性を加えた。これらの材料が明らかに“延性”材料と“脆性”材料2つのグループに分けることができる。それぞれのグループにおいて、材料のヤング率と硬度関係が $H = E^n$ で記述できる。ここで、指数 n は、材料の弾性変形に対する塑性変形のし難さを表す指標である。この指標を使って、材料を K_{IC} - n マップに表示すると、図8ようになる。

このように材料が、“延性”(左上)と“脆性”(右下)の2つのグループにきれいに整理される。 $K_{IC}=1$ を境にして、“脆性”材料をさらに

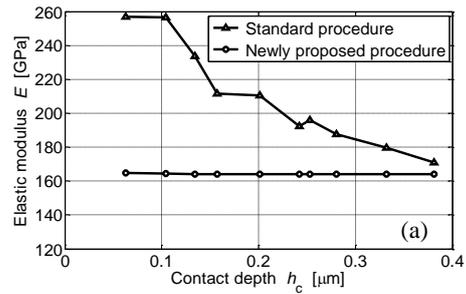
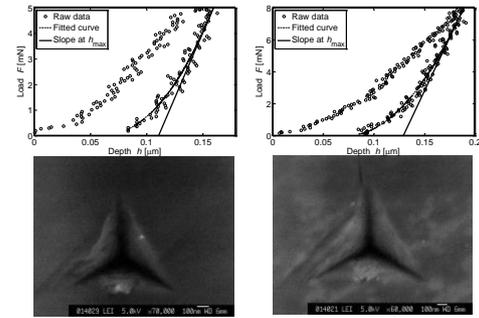
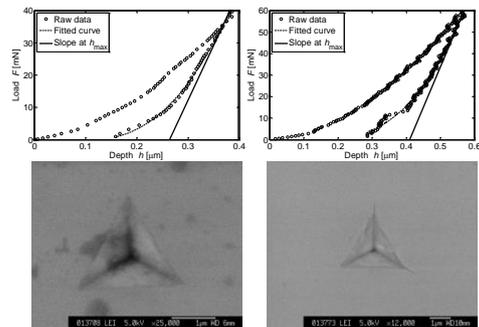


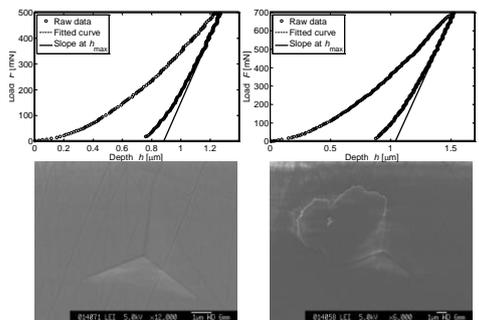
図5 開発手法で得たSiヤング率の例



(a) LT at 5mN and 8mN



(b) Si at 40mN and 60mN



(c) Sapphire at 500mN and 900mN

図6 マイクロインデンテーション

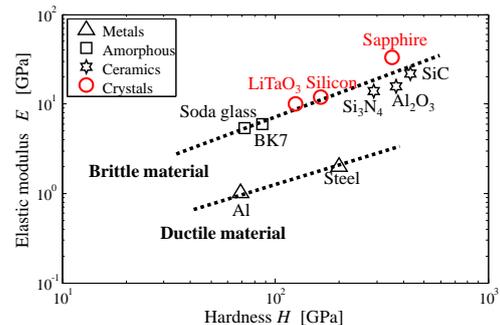


図7 ヤング率と硬度の関係

“難脆”材料と“硬脆”材料の 2 つのサブグループに区分できる。SiC やサファイアが“硬脆”であるに対して、LT が“難脆”に属している。また、Si はその中間に位置していることがわかる。

図 6 の荷重-深さ曲線から，“難脆”材料は、比較的柔らかいゆえ、塑性変形がしやすい。その過程で消費したエネルギー全体の 5 割に達する。しかもその大部分が熱に変換され、後の研削加工において温度上昇をもたらす。さらに、他の 2 種類の材料と異なり、LT 表面にクラック有無にかかわらずエネルギーの割合にほとんど一定であることから、LT にクラックが一旦形成されれば、その成長に余分なエネルギーをほとんど必要としないきわめて“脆い”特徴がわかる。

図 9 に LT 加工のために開発した研削盤を示す。従来の BG 研削盤と異なり、本機の Infeed 送り機構および砥石のハイブリッド化を施した。0.1 $\mu\text{m}/\text{min}$ の微小定寸送り機構に、CMG 加工に必要な定圧送りを加えた。図 10 には研削加工した結果の代表例：(a)ウエハ割れた失敗例 (b) 成功した例を示す。因果関係を精査したところ、図 10、図 11 に示すウエハ表面粗さ及び研削抵抗の増加がウエハ破損に大きな影響を及ぼしていることが分かった。その原因は、LT の強誘電体の物理特性にあると考えられる。強誘電体は、焦電効果と圧電効果を併せ持つ。研削加工中に生じた研削熱及び研削抵抗により材料が自発分極し、材料内部に強に電場が形成される。この電場により材料の内部に大きな応力が生じ、この状態で外部から加えた研削応力が図 6 に示す臨界値に達する前に LT ウエハにクラックが発現され、そのクラックが余分のエネルギーがなくても増殖成長し、最後にウエハの破損に至った。

この問題を解決するため、本研究では、2 つの方法を提案している。まず、焦電効果を抑制するため、研削液の温度を低く制御した。図 12 の結果に示すように、研削液の温度が低くなるにつれ、研削抵抗の増加率及び仕上げ粗さが共に小さくなり、焦電効果が効果的に抑制されたことがわかる。次に、自発分極により形成された電荷を中和するために、電気伝導が可能な電解質を研削液に添加した。図 13 には、研削液の電導度による研削抵抗の増加率及び表面粗さの変化を示す。このように研削液の電導度が大きくなると、研削抵抗の増加率及び仕上げ粗さが共に小さくなった。強誘電体である LT が加工中に生じた自発分極の影響を効果的に抑制することができた。その結果、図 14 に示すように、6 インチの LT ウエハを研削加工だけで 100 μm 以下に薄片化することに成功した。

5. 主な発表論文等

[雑誌論文] (計 20 件)

- ① Yongbo Wu, Weiping Yang, Mas akazu Fujimoto and Libo Zhou: Mirror surface

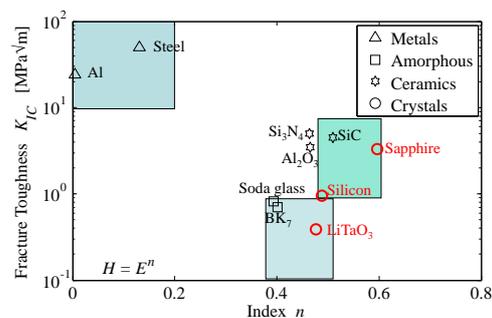


図 8 K_{IC} - n マップ



図 9 開発したウエハ研削機械

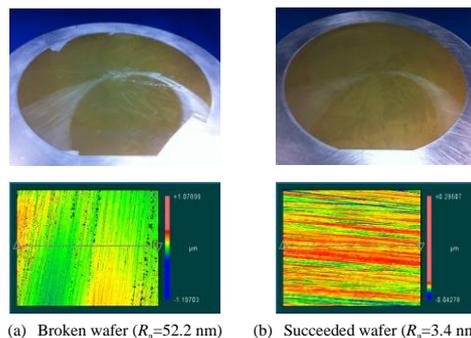


図 10 研削した LT ウエハ

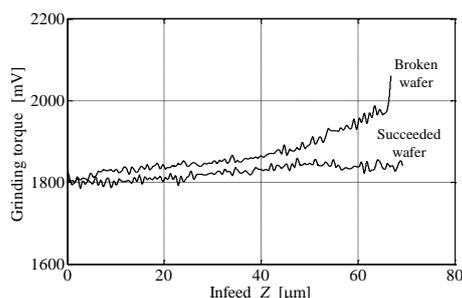


図 11 LT ウエハの研削抵抗

finishing of silicon wafer edge by UF-CMP (ultrasonic assisted fixed-abrasive CMP), *Int. J. of Automation Technology*, 査読有, Vol.7, 6(2013), 663-670.

- ② Wei Hang, Libo Zhou, Jun Shimizu, Julong Yuan and Takeyuki Yamamoto: Study on the mechanical properties of lithium tantalate and the influence on its machinability, *Int. J. of Automation Technology*, 査読有, Vol.7, 6(2013), 644-653.

- ③ Tepei Onuki, Ryusuke Ono, Akira Suzuki, Hiroataka Ojima, Jun Shimizu and Libo Zhou: A Thin Silicon Wafer Thickness Measurement System by Optical Reflectometry Scheme Using Fourier Transform Near-Infrared Spectrometer, 査読有, *Advanced Materials Research*, Vol. 797 (2013), 549-554.
- ④ Wei Hang, Libo Zhou, Jun Shimizu and Julong Yuan: Study on thermal influence of grinding process on LiTaO₃, 査読有, *Advanced Materials Research*, Vol. 797 (2013), 252-257.
- ⑤ 尾島裕隆, 周立波, 清水淳: 大口径 Si ウエハ表面形状の計測評価技術に関する研究—第2報: ウェーブレット変換を用いたノイズ除去手法の適用—, *精密工学会誌*, 査読有, Vol.79, 7(2013), 677-681.
- ⑥ Wei Hang, Libo Zhou, Jun Shimizu and Julong Yuan: A robust procedure of data analysis for micro/nano indentation, *Precision Engineering*, 査読有, Vol.37,2(2013), 408-414.
- ⑦ Anshun He, Han Huang and Libo Zhou: Deformation and removal characteristics of LiTaO₃ single crystals in nanoindentation and nanoscratch, *Int. J. of Abrasive Technology*, 査読有, Vol.5, 3(2012), pp.258-269.
- ⑧ Libo Zhou, Yebing Tian, Han Huang, Hisashi Sato and Jun Shimizu: A study on the diamond grinding of ultra-thin silicon wafers, *Proc IMechE, Part B: J. of Engineering Manufacture*, 査読有, Vol.226, 1(2012), 66-75.
- ⑨ Y. Li, Y. Wu, L. Zhou, H. Guo, J. Cao, M. Fujimoto and M. Kenmochi: Investigation into Chemo-Mechanical Fixed Abrasive Polishing of Fused Silica with the Assistance of Ultrasonic Vibration, *Key Engineering Materials*, 査読有, Vol. 523-524(2012), 155-160.
- ⑩ Wei Hang, Libo Zhou, Jun Shimizu, Takeyuki Yamamoto and Julong Yuan: Study on micro/nano-indentation of typical soft-brittle materials, *Key Engineering Materials*, 査読有, Vol. 523-524(2012), Nov. 7-10, 7-12.
- ⑪ Hiroataka Ojima, Kazutaka Nonomura, Libo Zhou, Jun Shimizu and Tepei Onuki: Research on digital filters for Si wafer surface profile measurement, *Advanced Materials Research*, 査読有, Vol.565(2012), 656-661.
- ⑫ Yutarō Ebina, Wei Hang, Libo Zhou, Jun Shimizu, Onuki Tepei, Hiroataka Ojima and Yoshiaki Tashiro: Study on grinding process of sapphire wafer, *Advanced Materials Research*, 査読有, Vol.565(2012), 22-27.
- ⑬ Anshun He, Han Huang, Libo Zhou: Mechanical Properties and Deformation of LiTaO₃ Single Crystals Characterised by Nanoindentation and Nanoscratch, *Advanced Materials Research*, 査読有, Vol.565(2012), 564-569.
- ⑭ 小貫哲平, 小野龍典, 尾島裕隆, 清水淳, 周立波; 近赤外分光計測を用いた薄片シリコンウエハの厚さ計測法, *砥粒加工学会誌*,

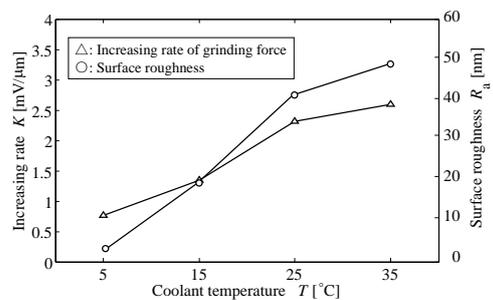


図12 研削温度による焦電効果の抑制

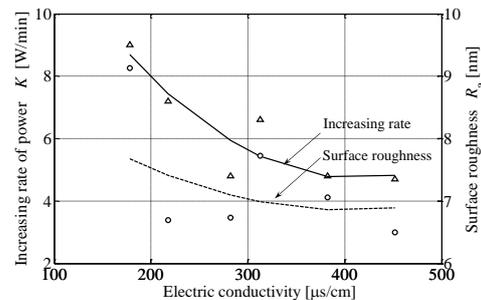


図13 電解質研削液による中和作用

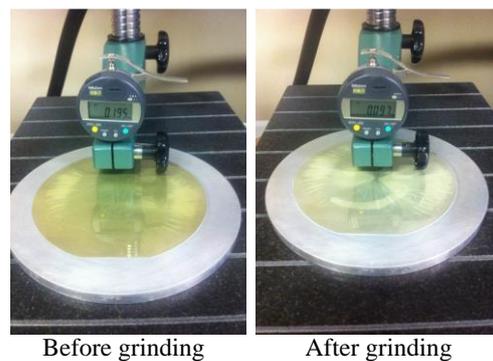


図14 LT ウエハの薄片化

- 査読有, Vol.55, 12(2011), 729-732.
- ⑮ 周立波, 小野真志, 尾島裕隆, 清水淳; 大口径Siウエハ表面形状の計測評価技術に関する研究, —第1報: ウェーブレット変換を用いたノイズ除去手法の開発—, *精密工学会誌*, 査読有, Vol.77, 12(2011), 1165-1169.
- ⑯ 清水淳, 周立波, 小貫哲平, 尾島裕隆, 山本武幸, 鈴木直紀; Siウエハ仕上げ加工に及ぼす加工変質層の影響の解析, *砥粒加工学会誌*, 査読有, Vol.55, 11(2011), 662-667.
- ⑰ Y.B. Tian, L. Zhou, Z.W. Zhong, H. Sato, J. Shimizu: Finite element analysis of deflection and residual stress on machined ultra-thin silicon wafers, *Semiconductor Science and Technology*, 査読有, Vol.26, 10(2011), 1-7.
- ⑱ Yongbo Wu and Yaguo Li, Zhenzhong Wang and Wei Yang and Libo Zhou: Performance improvement of chemo-mechanical grinding in single crystal silicon machining by the assistance of elliptical ultrasonic vibration, *Int. J. Abrasive Technology*, 査読有, Vol.4, 2(2011), 117-131.

- ⑱ Yuki Mikami, Libo Zhou, Jun Shimizu, Hirota Ojima, Yoshiaki Tashiro, Sumio Kamiya; Development of CMG Wheels for Stress Relief in Si Wafer Thinning Process, *Advanced Material Research*, 査読有, Vol.325(2011), 678-683.
- ⑲ Teppei Onuki, Naoto Takagi, Jun Shimizu, Hirota Ojima, Libo Zhou; Spectroscopic measurements of silicon wafer thickness for backgrinding process, *Advanced Material Research*, 査読有, Vol.325(2011), 672-677.

[学会発表] (計 16件)

- ① Libo ZHOU, Yutaro EBINA, Jun SHIMIZU, Teppei ONUKI, Hirota OJIMA and Takeyuki YAMAMOTO: Three-dimensional cutting edge distribution of abrasives on diamond grinding wheel working surface, Proceedings of 6th LEM21, 査読有, Sendai/Japan, Nov. 7-8, 2013. 79-84.
- ② Teppei ONUKI, Ippei MURAYAMA, Takeyuki YAMAMOTO, Hirota OJIMA, Jun SHIMIZU and Libo ZHOU: Control of the incubation effects in pulsed laser micro machining on ferroelectric lithium niobate substrates, Proceedings of 7th LEM21, 査読有, Sendai/Japan, Nov. 7-8, 2013. 67-70.
- ③ Yoshiaki TASHIRO, Libo ZHOU, Jun SHIMIZU, Noriaki SHINODA, Yoshinori MITSUI: Development of fixed diamond abrasive pellet for final finishing of monocrystalline sapphire wafers, Proceedings of 7th LEM21, 査読有, Sendai/ Japan, Nov. 7-8, 2013. 298-301.
- ④ 清水淳, 周立波, 山本武幸, 尾島裕隆, 小貫哲平, 古牧允彦: 化学作用援用研削の分子動力学シミュレーション—シリコンウエハ/砥粒間の凝着の影響—, 砥粒加工学会, ABTEC2013, 日本大学, 2013年8月27~29日
- ⑤ 田代芳章, 周立波, 清水淳, 三井義則, 篠田知顕: ダイヤモンドペレットによる単結晶サファイアウエハの平坦加工技術に関する研究, 砥粒加工学会, ABTEC2013, 日本大学, 2013年8月27~29日
- ⑥ 蛭名雄太郎, 周立波, 清水淳, 成田 潔: 4H-SiC ウエハの鏡面研削加工技術, 砥粒加工学会, ABTEC2013, 日本大学, 2013年8月27~29日
- ⑦ 蛭名雄太郎, 周立波, 清水淳: 高品位サファイアウエハの研削加工技術, 砥粒加工学会, ABTEC2013, 日本大学, 2013年8月27~29日
- ⑧ 蛭名雄太郎, 杭偉, 周立波, 清水淳, 小貫哲平, 尾島裕隆, 山本武幸, 渡辺拓也: ダイヤモンド砥石における砥粒切れ刃の3次元分布, 2013年度精密工学会春季学術講演会, 東京工業大学, 2013年3月13日~15日.
- ⑨ 村山一平, 小貫哲平, 尾島裕隆, 清水淳,

- 周立波: 脆性強誘電材料(LiNbO₃)への非熱的レーザーアブレーション微細加工技術, 第14回高エネ研メカ・ワークショップ, 筑波, 2013年4月12日
- ⑩ 鈴木泰樹, 尾島裕隆, 周立波, 清水淳, 小貫哲平: Development of Areal Wavelet Transform applying to 2D image, 2013年度精密工学会春季学術講演会, 東京工業大学, 2013年3月13日~15日.
- ⑪ 村山一平, 小貫哲平, 尾島裕隆, 清水淳, 周立波: レーザーアブレーション微細加工における材料除去と変質・損傷発生機構解明と制御, 2013年度精密工学会春季学術講演会, 東京工業大学, 2013年3月13日~15日.
- ⑫ 谷口博則, 周立波, 清水淳, 小貫哲平, 尾島裕隆, 吳天旭: 固定砥粒によるシリコンウエハの薄片化に関する加工技術, 日本機械学会第9回生産加工・工作機械部門講演会, 秋田県立大学, 2012年10月26~28日
- ⑬ 杭偉, 周立波, 清水淳, 山本武幸: ナノインデンテーションにおけるデータの解析手法, 砥粒加工学会, ABTEC2012, 同志社大学, 2012年8月29~31日
- ⑭ 清水淳, 周立波, 小貫哲平, 尾島裕隆, 山本武幸: Si ウエハ仕上げ加工に及ぼす加工変質層の影響, 砥粒加工学会, ABTEC2012, 同志社大学, 2012年8月29~31日
- ⑮ Libo Zhou: Si wafer thinning processes: grinding, stress relief and SD evaluation, Keynote speech in 16th Chinese Conference of Abrasive Technology, XinJiang/China, Aug. 8-10, 2011
- ⑯ Kaoru TAKAMORI, Hirota OJIMA, Libo ZHOU, Teppei ONUKI, Jun SHIMIZU and Takeyuki YAMAMOTO: Image based defect detection Algorithm by use of wavelet transformation, Proceedings of 6th LEM21, Nov.8-10, Saitama/Japan, (2011), CD-ROM.

6. 研究組織

(1) 研究代表者

周立波 (ZHOU LIBO)
茨城大学・工学部・教授
研究者番号: 90235705

(2) 研究分担者

清水淳 (SHIMIZU JUN)
茨城大学・工学部・教授
研究者番号: 40292479

小貫哲平 (Onuki Teppei)
茨城大学・工学部・准教授
研究者番号: 70400447

尾島裕隆 (OJIMA HIROTAKA)
茨城大学・工学部・講師
研究者番号: 90375361

山本武幸 (YAMAMOTO TAKEYUKI)
茨城大学・工学部・技術専門職員
研究者番号: 40396594