

令和 2 年 6 月 9 日現在

機関番号：13102

研究種目：若手研究

研究期間：2018～2019

課題番号：18K14026

研究課題名（和文）大型ダイヤモンド単結晶成長のためのIr薄膜への原子オーダープラナリゼーション

研究課題名（英文）Atomically flat planarization of Ir thin films for larger diameter single crystalline diamond growth

研究代表者

會田 英雄（AIDA, HIDEO）

長岡技術科学大学・工学研究科・准教授

研究者番号：10811648

交付決定額（研究期間全体）：（直接経費） 3,300,000円

研究成果の概要（和文）：大型ダイヤモンド基板実用化に向けて、新しいダイヤモンド成長プロセスを提案し、そのキーとなるダイヤモンド下地構造としてIr/Si基板構造の作成に取り組んだ。本プロセスの実現には、Ir薄膜の接合転写技術が新たに必要となり、そこでは極微量プラナリゼーションCMP加工技術が必須である。これは従来研磨技術では困難であることから、磁気浮上機構搭載型研磨加工機を設計試作することで達成し、最終的に目的とするIr薄膜/Si基板構造が得られた。

研究成果の学術的意義や社会的意義

本研究はダイヤモンド成長に使用するIr薄膜/Si基板構造を達成した。従来のダイヤモンド成長用のIr/MgO下地基板構造ではダイヤモンドとMgO基板との1桁以上異なる熱膨張係数差によりダイヤモンド成長にクラックが発生し、ダイヤモンドの大型化を妨げていた。一方、本研究で達成した構造では熱膨張係数差は殆ど発生せず、クラックフリーダイヤモンド成長が理論的に可能である。これにより、ダイヤモンドを用いた高効率なパワーエレクトロニクスデバイスの実現性を高めることができた。

研究成果の概要（英文）：A new diamond growth process toward the large diamond substrates was proposed. A key manufacturing process relies on the Ir / Si substrate structures. In order to realize the manufacturing of the structure, a new processing consists of bonding and transfer of Ir thin film was required. This process also required a very small amount of planarization CMP processing. Since this is difficult with conventional polishing technology, we first designed a new concept of polishing machine equipped with a magnetic levitation mechanism, and finally obtained the desired Ir/Si substrate structure.

研究分野：精密加工

キーワード：ヘテロエピタキシャル成長 ダイヤモンド プラナリゼーション 化学機械研磨

### 1. 研究開始当初の背景

低炭素社会に向けた省エネルギーデバイス開発は、高度文明社会において常に重要な課題である。その一環として、電力変換などを担うパワーエレクトロニクスデバイスに関係し、従来型 Si デバイスを SiC や GaN などの次世代半導体デバイスへと置き換える検討が進んでいる。さらに次々世代までも見据えれば「単結晶ダイヤモンドによる究極半導体デバイス」がある。この単結晶ダイヤモンドを用いたパワーエレクトロニクスデバイスは、大電力制御素子、高周波大出力素子、スイッチング素子として、従来の Si デバイスはもちろん、ポスト Si デバイスである SiC/GaN デバイスをも遥かに凌駕する理論的性能が期待され、まさに理想的なパワーエレクトロニクス材料と考えられる。しかし、その実用化に対しては、結晶の育成・成長、結晶加工、結晶欠陥評価法、MOS 界面形成法等、多方面からの課題が山積しており、特に単結晶ダイヤモンド基板の大型化に関する研究は、相当に遅れている。そこで大型単結晶ダイヤモンド成長できる手法の検討が必要である。

ダイヤモンド成長手法には古くからいくつかの手法が存在するが、大型化に向けて理論的可能性を秘めた手法という観点ではヘテロエピタキシャル成長法が特に注目されている。ダイヤモンドを成長可能な大型下地基板構造が存在さえすれば、下地同等サイズの大型単結晶ダイヤモンドが成長可能とされる方式である。そこで、当該手法においては、ダイヤモンドを成膜可能な下地構造を探求する研究が長年実施されてきた。その結果、単結晶 MgO 基板へのヘテロエピタキシャル Ir 薄膜（膜厚 1 μm 以下）を下地構造とし、その上に単結晶ダイヤモンド成長が確認されるに至っている。しかし、ダイヤモンドと Ir の格子不整合、およびダイヤモンドと MgO 基板の熱膨張係数差が、高品質化・大型化を強固に拒んでおり、解決すべき課題が多い。先に挙げた要因の中でも特に、1 桁以上も異なるダイヤモンドと MgO 基板との熱膨張係数差に起因した冷却過程の熱応力は深刻であり、成長後のダイヤモンドに生じるクラックは避け難い課題である。今のうちに本質的な解決策を提案しなければ、ダイヤモンド基板の大型化は期待できず、将来の究極ダイヤモンドデバイス実現のネックとなることは必至である。したがって究極ダイヤモンドデバイス実現構想の一環として、大型単結晶ダイヤモンド実現に資するヘテロエピタキシャルダイヤモンド基板成膜用の下地基板構造の追究が必要である。

### 2. 研究の目的

大型ダイヤモンド基板実用化に向けて、新しい革新的ダイヤモンド成長プロセスとして、MgO 基板への Ir 薄膜成長工程、Ir 薄膜の超精密平坦化加工工程、Ir 薄膜と Si 基板の接合工程を核とする大口径ヘテロエピタキシャルダイヤモンドの革新的成長手法を提案する（図 1）。MgO 基板上 Ir 薄膜は、ダイヤモンド成長に対し品質が良い反面、冷却時熱応力に問題がある。そこで基本戦略は、ダイヤモンドと熱膨張係数が近い Si 基板の活用である。ただし、Si 基板上への直接的 Ir 成膜では、高品質ダイヤモンドを成長することが可能な高品質 Ir 薄膜は得られない。そこで新工程として、MgO 基板上に成膜させた Ir 薄膜を、Si 基板上に接合転写移植したのち、ヘテロエピタキシャルダイヤモンドを成長するプロセスについてその可能性を進める。しかしながら、接合転写移植を実施する Ir 薄膜は極薄膜(1 μm 以下)であるため、接合転写の実施に当たり必要となる平坦化研磨加工は容易ではない。

そこで本研究では、本提案プロセスの実現に向けて、その第一の主要課題である極微量プラナリゼーション CMP 加工技術の開発を進める。そのため新たに磁気浮上機構搭載型研磨加工機を設計試作し、研磨時の負荷荷重を制御することで極力無荷重状態を実現して極微量研磨加工にアプローチする。最終的に Ir 薄膜/Si 基板構造の製作を行いダイヤモンドヘテロエピタキシャル成長が可能な下地基板を作製する基礎技術を完成する。

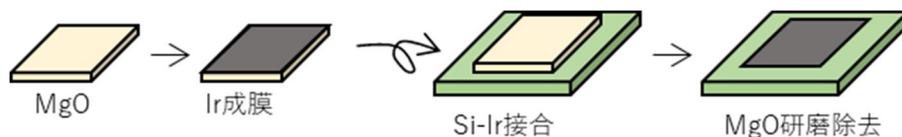


図 1 本研究で提案するダイヤモンド成長のための Ir/Si 下地基板構造作成プロセス

### 3. 研究の方法

本研究では、最終的にダイヤモンドヘテロエピタキシャル成長のための Ir 薄膜/Si 基板構造を実現するため、以下の(1)および(2)の課題に取り組んだ。

#### (1)超微量プラナリゼーション CMP を可能とする磁気浮上研磨加工技術の開発

一般に原子オーダー表面創成には、表面ダメージを与えず原子平坦性を生み出す化学的機械的複合研磨法：CMP (Chemical Mechanical Polishing) が有効である。本検討では、極薄 Ir 膜に対する超微量プラナリゼーション CMP 加工を達成する必要がある。Ir は CMP 加工除去速度が高く、

従来 CMP 加工の適用は叶わない。研磨加工速度制御パラメータには、研磨剤の化学的成分，研磨時の研磨工具および被加工物の回転速度(研磨の相対運動速度)，および被加工物への負荷荷重があるが，その中でも特に負荷荷重に着目する必要がある。ナノメートルレベルの超微少除去で原子オーダー表面達成が要求されるため，サンプル保持具重量や基板自重でさえも無視できない。そこで図 2 のように研磨対象物と研磨パッドを磁気浮上効果で引き離しつつ研磨を行う手法を考案し，それを実現するための磁気浮上機構搭載研磨機の開発を進めた。その際，当初計画では研磨パッドを貼付けた研磨定盤内部に電磁石ユニットを埋め込みと，加工物を保持する研磨ユニット側に永久磁石を埋め込んだ構造を想定した。すなわち研磨定盤と研磨ユニット間の磁石相互作用により，研磨面に掛かる加工負荷を超微細制御する装置を検討していたが，実際の遂行に当たっては，永久磁石・電磁石の能力を種々に比較検討していくための効率的な開発を考慮しつつ新たな機能として加圧・減圧のシームレス制御を付与することの有効性が見出された。そこで当初の計画構成に対する原理検証をカバーしつつ新たな観点も両立することが可能な新装置構成において磁気浮上研磨加工ユニットを考案し設計製作した。これにより最終的に本研究目的に対して威力を発揮できる研磨加工機を完成させた。

### (2)接合転写を用いたダイヤモンドエピタキシャル成長用の Ir/Si 基板構造の作成

MgO 基板上に成膜した極薄 Ir 薄膜を Si 基板へ接合転写移植したのち母材である MgO 基板を研磨除去する本研究で提案する一連のプロセスを実施した。これにより本研究の最終目的と Ir/MgO 構造の作成を実施した。

### (3)Ir 成膜用 MgO 基板の表面研磨処理による Ir 薄膜の高品質化

本研究では MgO 基板上 Ir 薄膜を Si 基板へ接合転写して Ir/Si 基板構造を作製するが，Ir 薄膜の結晶品質は本プロセスには依存せず 基本的に MgO 基板への Ir 薄膜の成膜技術に依存する。本研究を通じて Ir 薄膜/Si 基板構造を実証すれば，Ir 薄膜の結晶品質改善が次なる重要な検討課題となる。本研究では超精密微小プラナリゼーション加工開発を行っているため，本研究で得られた検討知見を MgO 基板表面処理へも展開した。Ir 薄膜成膜前の MgO 基板を超精密研磨することで表面改質を実施して，成膜される Ir 薄膜の品質改善を試み，接合転写により Si 基板上へ転写移植される Ir 薄膜の結晶品質向上を検討した。

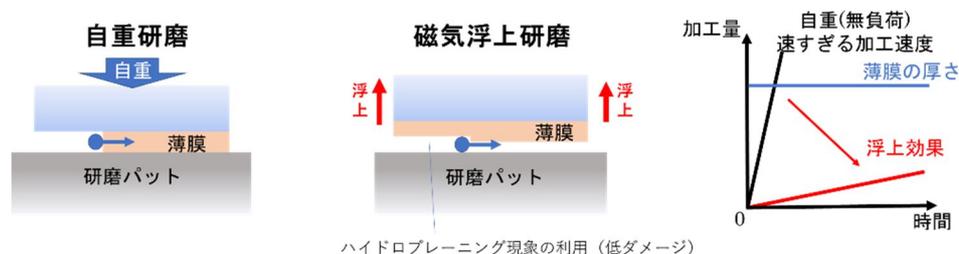


図 2 磁気浮上研磨の効果の模式図

## 4. 研究成果

### (1)超微少プラナリゼーション CMP を可能とする磁気浮上研磨加工技術の開発

磁気作用によって負荷荷重を制御する研磨機構を備えた研磨装置の開発について，試作したいくつかの研磨装置の中から永久磁石型および電磁石型の 2 つのタイプの研磨加工ユニットの写真を図 3 に示す。いずれのタイプも基本的な原理は同じであるが，電磁石にすることによりより緻密に浮上力を制御することが可能となる。図 4 は本ユニットの中心部に構成している磁石間距離による負荷荷重の減少効果を示したものである。研磨加工器具を浮上させる力が生じることにより，通常研磨状態 2kPa の荷重に対し，荷重負荷 0.3kPa までの減少を達成した。次に実際に加工レートの低減制御に対する本開発研磨装置の効果を検証した。実際にターゲットとなる Ir 薄膜は極微薄膜であり十分な加工量を研磨しながら加工レートを検証する評価を展開することは不可能である。そこで装置性能を正確に把握するための検証実験には十分な加工量を確保できるサファイア基板を用いた。その結果を図 5 に示す。浮上力を作用させずに研磨加工を行った場合，最低でも回転数 100, 150, 200rpm に対してそれぞれ 280, 420, 680nm/h の加工レートが発生した。通常の研磨加工では加工レートの向上について議論することはあるが，最低加工レート以下への加工レート制御について言及することはない。本研究で開発した磁気浮上研磨装置では，図 5 に示すように加工中の浮上効果を適用することによって最低加工レート以下への制御を可能となり，回転数 100, 150, 200rpm に対してそれぞれ 250, 280, 530nm/h となった。回転数が高いほど加工レート減少効果が高い結果が得られた。これは当初より想定しているハイドロプレーニング現象を積極的に活用できる加工条件を達成していると考えられる。すなわち浮上しつつ高速回転を与えつつも磁気浮上効果によって研磨対象物を接触面から引き

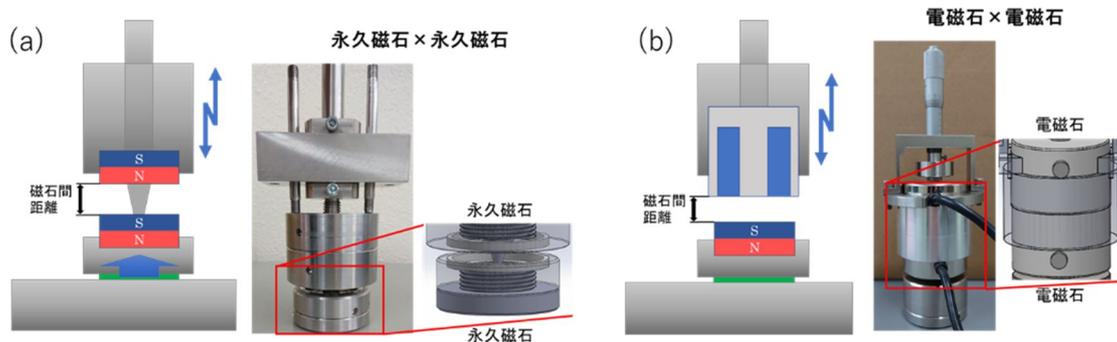


図3 本研究で作成した磁気浮上研磨加工ユニット(a)永久磁石型および(b)電磁石型

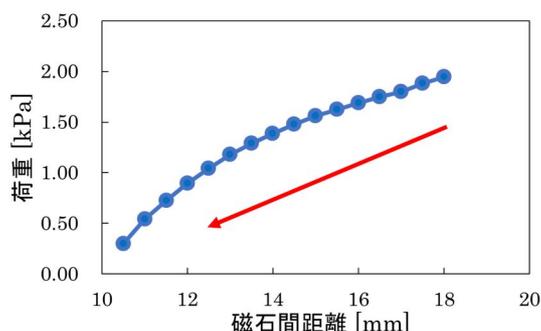


図4 磁石間距離の調整による研磨負荷の低減効果

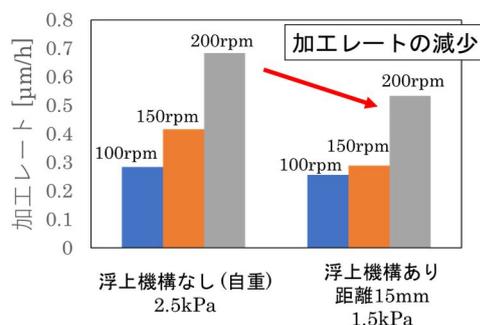


図5 サファイア基板の磁気浮上研磨による加工レートの低減効果

離すことが可能となり、加工速度低減制御とダメージ発生回避の効果を同時に得ているものと考えられる。以上の結果から、最終的に研磨加工器具の設計を磁気浮上降下範囲内に収めることにより負付加工条件でのハイドロプレーニング現象を利用した研磨条件が達成できたと言える。また、当初想定したものは研磨常盤内への永久または電磁石埋め込みであったが、本研究で最終的に採用した研磨ユニット型方式とすることで当初構想原理を実証しつつ、装置構成を簡易とすることができた。

### (2) 接合転写を用いたダイヤモンドエピタキシャル成長用の Ir/Si 基板構造の作成

図1に示す接合転写プロセスを実施した。図6は、Ir 薄膜を成膜した MgO 基板と、それを Si 基板へ接合転写した状態を示した写真であり、10 mm角 MgO 基板に成膜した Ir 薄膜が Si 基板にほぼ同一の大きさで転写移植された。図7はそのプロセスの最終段階において MgO 基板を微小研磨加工により完全除去し、さらに、転写された Ir の極薄膜表面も微小研磨して Ir/Si 基板を製作する最重要工程における加工状況の進行をとらえた X 線回折測定(XRD)評価結果である。MgO 基板にはある程度の厚み(約 500  $\mu\text{m}$ )があるため、負荷荷重を十分に与えた状態で MgO/Ir 界面付近にある程度近づくまで大まかな研磨を進めた。その状態では、図7(a)に示すように MgO および Ir からの回折線に加えて Si に由来する弱い回折線が得られた。このままさらに研磨を進めると、図7(b)に示すように MgO の回折線が減少しつつ転写先の Si 基板の回折線の強度の増加が認められた。そこで、微小研磨を実施すべく負荷荷重を精密制御して 1  $\mu\text{m}$  以下の極薄い Ir 薄膜と MgO 基板の界面付近へと研磨を進めた。その結果、図7(c)に示すように MgO に基づく回折線が消滅し Si 基板の回折線強度が増加した。この際 Ir 薄膜に基づく回折線ピークの減少も僅かに認められたが、それでも十分な強度を有していた。つまり MgO 基板の完全除去と Ir 薄膜の超微小除去を達成した。以上の結果から、本研究が目標とした Ir/Si 基板構造を作製することができた。

### (3) Ir 成膜用 MgO 基板の表面研磨処理による Ir 薄膜の高品質化

本検討を通じて Ir 薄膜を MgO 基板から Si 基板へと移植する一連のプロセスを得た。これを下地構造としてダイヤモンドを成膜した場合のダイヤモンドの結晶品質は Ir 薄膜の結晶品質に依存する。Ir 薄膜の品質改善は、成膜技術に依存するところが大きいと考えられる一方、本研究における Ir 薄膜や MgO 基板の研磨加工のための各種評価過程において、Ir 薄膜を成膜するた

めの MgO 基板表面には未だ不完全性があるという新たな課題発見があった。この不完全性の改善は、本研究で達成した Ir/Si 基板構造における接合強度を高めるためにも極めて重要となる。本研究では MgO 基板および Ir 薄膜の超精密研磨加工を行うための各種検討を進めてきたことから、得られた MgO の超精密研磨に関する知見を適用して Ir 薄膜を成膜する前の MgO 基板表面の改善を実施し、従来基板に比べて表面粗さを 1/4 となる 0.1nm を達成した。図 8 は本研究を応用した微小プラナリゼーション CMP 加工技術により MgO 基板の表面平坦性を改善したのち成膜した Ir 薄膜の結晶品質を XRD ロッキングカーブ法で評価した結果である。得られた Ir 薄膜の結晶品質は約 20%減少し、これは欠陥密度換算で約 40%の低減効果である。したがって、本研究で達成した Ir/Si 下地基板構造から高品質ダイヤモンドを製造する新提案アプローチの可能性をより盤石なものにできたと結論する。

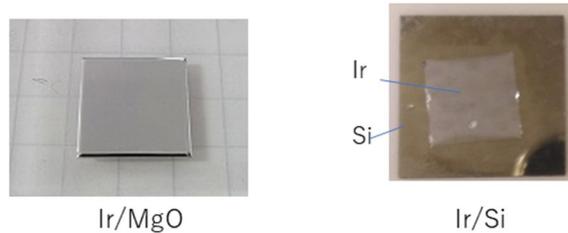


図 6 MgO 基板上 Ir 薄膜(左)と Ir 薄膜を Si 基板へ接合転写移植して得た Ir/Si 基板(右)

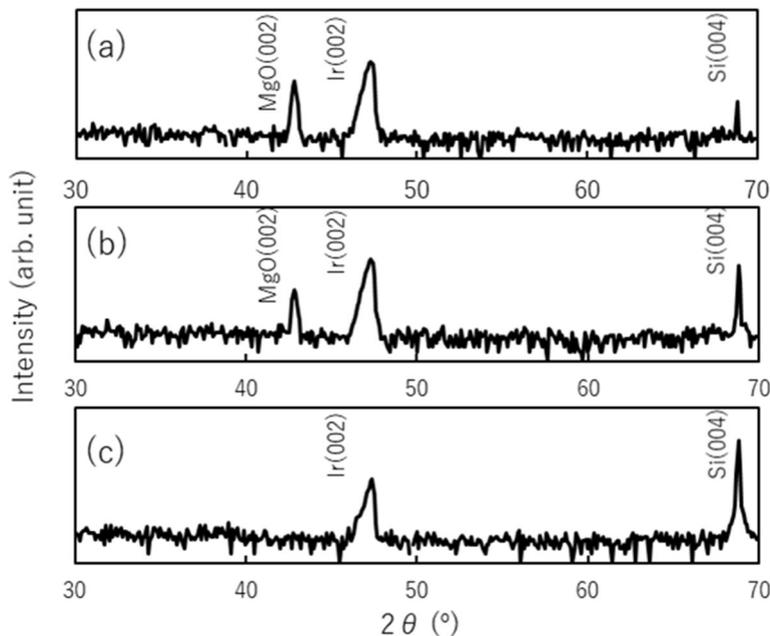


図 7 MgO 基板から Si 基板への Ir 薄膜の接合転写プロセスにおける XRD 結果 (a) MgO/Ir/Si 状態, (b)(a)の状態よりも MgO 厚みが減少した MgO/Ir/Si 状態, および(c)MgO 基板が完全除去され Ir/Si 基板となった状態

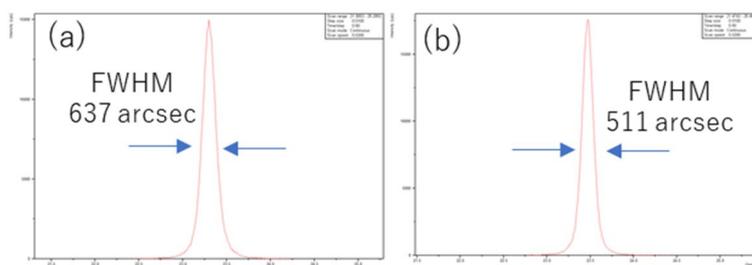


図 8 MgO 基板上に成膜した Ir 薄膜の XRD ロッキングカーブ測定 (a)従来法による成膜および(b)本研究を通じて得られた品質改善 Ir 薄膜

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計1件（うち査読付論文 1件/うち国際共著 0件/うちオープンアクセス 0件）

1. 著者名 Hideo Aida, Ryotaro Higashi, Hidetoshi Takeda, and Toshiro Doi	4. 巻 7
2. 論文標題 Proposal on rapid determination of removal rate in chemical mechanical polishing of hard-to-process single crystals	5. 発行年 2019年
3. 雑誌名 Advanced Micro-Fabrication and Green Technology (Transaction of MIRAI)	6. 最初と最後の頁 4-9
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） なし	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

〔学会発表〕 計2件（うち招待講演 1件/うち国際学会 2件）

1. 発表者名 Hideo Aida, Osamu Ohnishi, Hidetoshi Takeda, Syuhei Kurokawa, Yasuhisa Sano, and Toshiro Doi
2. 発表標題 Challenges toward prospective precise polishing techniques by fusing environmental controlling and plasma technology
3. 学会等名 International Symposium on Advanced Plasma Science and its Applications 2019（招待講演）（国際学会）
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 Hideo Aida, Ryotaro Higashi, Hidetoshi Takeda, and Toshiro Doi
2. 発表標題 Development of rapid determination method of removal rate in chemical mechanical polishing of hard-to-process single crystals
3. 学会等名 Manufacturing Institute for Research on Advanced Initiatives (MIRAI) 2019（国際学会）
4. 発表年 2019年

〔図書〕 計0件

〔産業財産権〕

〔その他〕

-

6. 研究組織

氏名 （ローマ字氏名） （研究者番号）	所属研究機関・部局・職 （機関番号）	備考