

令和 2 年 6 月 9 日現在

機関番号：14401

研究種目：挑戦的研究(萌芽)

研究期間：2018～2019

課題番号：18K18810

研究課題名(和文) 能動制御型電気化学機械研磨による難加工材料のスラリーレス高能率加工

研究課題名(英文) Highly efficient slurryless finishing of difficult-to-polish materials by active controlled electrochemical mechanical polishing

研究代表者

山村 和也 (Yamamura, Kazuya)

大阪大学・工学研究科・教授

研究者番号：60240074

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 4,900,000円

研究成果の概要(和文)：本研究では、スラリーレスの電気化学機械研磨(ECMP)を提案し、4H-SiC(0001)に対する研磨特性を評価した。本研磨法をスライス面の研磨に適用した結果、10-23 $\mu\text{m}/\text{h}$ の研磨レートと1 nm Sq以下の表面粗さを得た。また、粗ECMPと仕上げECMPから成る2ステップスラリーレスECMPを適用することで、0.2 nm Sqの表面粗さを高能率に得ることに成功した。

研究成果の学術的意義や社会的意義

本研究では、酸化により形成した軟質膜を母材よりも軟質な砥粒によって積極的に除去することで形状創成や表面仕上げをおこなうという、通常の陽極酸化の目的とは逆転する発想に基づいた新しい加工法を開発し、その有用性を実証したことに工学的な意義がある。

また、提案する加工法は、従来のCMP装置と比較して装置構成が極めて単純であり、装置コストの大幅な低減が期待できる一方、現状の研磨プロセスでは使用することが常識となっているスラリーを全く使用しないという革新的なプロセスであり、低環境負荷と研磨プロセスの低コスト化を実現する新しい加工法として従来プロセスを凌駕する点において社会的な意義がある。

研究成果の概要(英文)： In this study, slurryless ECMP was proposed, developed and applied to 4H-SiC wafers. The anodic oxidation properties and mechanism of 4H-SiC (0001) surface and the polishing mechanism of slurryless ECMP were investigated and clarified. When applying slurryless ECMP to sliced 4H-SiC (0001) surfaces, MRRs of 10 - 23 $\mu\text{m}/\text{h}$ were obtained, and damage-free surfaces with Sq surface roughness less than 1 nm was obtained. We also succeeded in obtaining a surface roughness of 0.2 nm Sq with high efficiency by applying a two-step slurryless ECMP consisting of rough ECMP and finish ECMP.

研究分野：超精密加工

キーワード：電気化学機械研磨 スラリーレス 難加工材料 SiC

様式 C - 19、F - 19 - 1、Z - 19 (共通)

1. 研究開始当初の背景

SiC や GaN 等のワイドギャップ半導体は、高温環境下においても信頼性の高い動作が可能であり、青色 LED や低損失パワーデバイスの作製に不可欠な材料である。しかしながら、高硬度かつ化学的に不活性であるためにウエハ製造にかかわるスライシング、ラッピング、ポリシングのいずれのプロセスにおいても要求仕様を満足するウエハを高効率に得ることが極めて困難である。現在、これらの材料の最終研磨法としてアルカリ等の薬液と遊離砥粒を含むスラリーを用いた CMP (Chemical Mechanical Polishing) プロセスが一般的に用いられている。しかしながら、加工能率が低い、材料の表面欠陥がアルカリ等の薬液成分によって浸食されて形成されるエッチピットのために表面粗さが悪化する(図 1 左上)、凝集による砥粒の粗大化が生じてスクラッチが形成される、スラリーの購入および廃棄する際の処理コストが大きい、等の問題点を多数有している。また、図 1 左下は CMP プロセスにおける費用の内訳であるが、費用全体のうち 86% が消耗品であり、消耗品のうち 59% をスラリーが占めており、スラリーの使用はコスト面においても大きな問題となっている。

2. 研究の目的

以上の背景のもと、CMP が有する種々の問題点(図 1 左)を克服するために、薬液を用いることなく硬脆材料の表面を陽極酸化によって軟質化し、軟質化した層のみを母材よりも低硬度な固定砥粒を作用させて除去することでエッチピットフリーかつダメージフリーな表面を得る革新的な陽極酸化援用電気化学機械研磨プロセスを提案する(図 1 右)。陽極酸化を単結晶 SiC ウエハの研磨に適用した先行研究は 2, 3 例見られるが、既存の CMP レベルの表面粗さが得られないことから実用化には至っていない。その理由としては、陽極酸化時における酸化膜と母材の界面粗さの悪化を防ぐことができない点が挙げられる。また、GaN の表面仕上げに適用した報告例は無い。

本研究では、加工物表面における陽極酸化のメカニズムを原子レベルで解析し、界面粗さの悪化要因をあきらかにする。また、界面粗さの悪化に影響を及ぼす酸化膜の形成状態をリアルタイムに計測するとともに最適な酸化状態を能動的に制御する機構を新たに構築し、省電力化に欠かせない高性能パワーデバイス用のワイドギャップ半導体材料や金型用難加工材料に対するスラリーレスの低コストな革新的超精密研磨プロセスを世界に先駆けて実現することを目的とする。

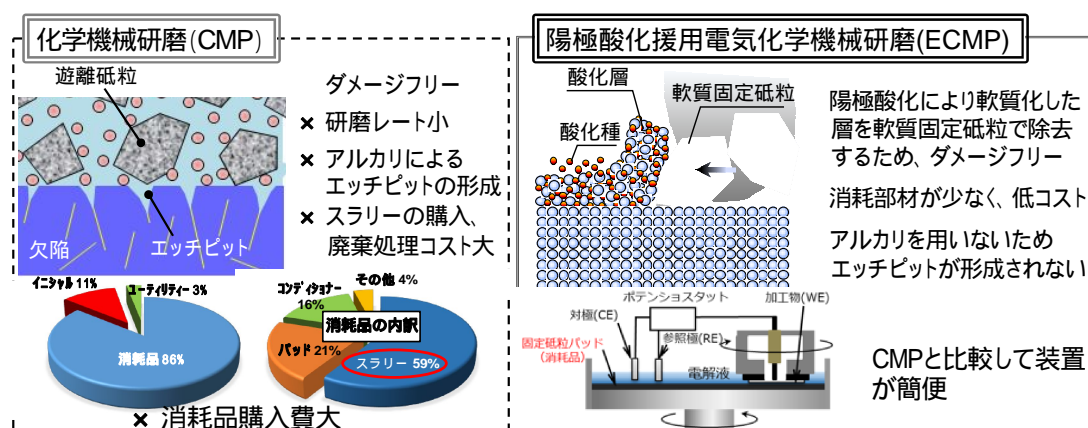


図 1 陽極酸化を援用したスラリーレスの革新的な高能率ダメージフリー研磨法

3. 研究の方法

本研究では研究目的を達成するために、研究期間内において、

- 1) 陽極酸化援用電気化学機械研磨装置の試作。
- 2) ポテンシostatを用いた電位制御と電気化学インピーダンス測定による電位 - 酸化特性の取得と

酸化メカニズムの考察。

3) 単結晶 SiC、GaN ウエハの表面粗さを 0.2 nm rms 以下に仕上げる研磨条件の最適化。

を行い、パワーデバイス用ワイドギャップ半導体ウエハに対する陽極酸化援用電気化学機械研磨プロセスの有用性を明らかにする。

4. 研究成果

(1) 研磨レートの検討

図 2 に開発した電気化学機械研磨装置の概略図を示す。n-type、on-axis の 4H-SiC 基板を作用電極(WE)として電解液容器の底部に設置された銅板の上に固定し、(0001)表面の一部を 1 wt% の塩化ナトリウム(NaCl)水溶液に接触させた。アルミニウム合金の軸端を対極(CE)とし、SiC 基板と 2 電極の酸化ユニットを構成した。直流電源を用いて、陽極酸化電流密度を 10 mA/cm^2 に制御した。リング形状のピトリファイドボンドのセラミックス(外径 12 mm、内径 6 mm、平均粒径 $1 \mu\text{m}$)を軸端に固定し、140 kPa の研磨圧力を印加し、軸を 1500 rpm で回転させ、サンプルを X ステージにより 10 mm/s の速度で往復揺動させ、サンプル表面を酸化すると同時に研磨を行った。研磨時間は 2 h であった。研磨する際に、電解液の循環流量を 380 ml/min に設定した。

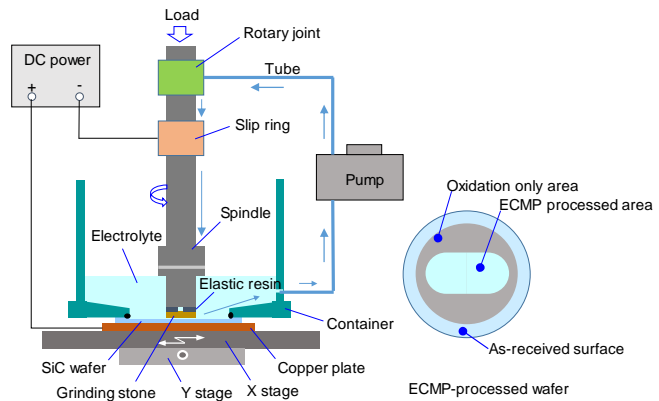


図 2 電気化学機械研磨装置の概略図と研磨領域

図 3 にアズスライス 4H-SiC (0001)の走査型白色光干渉計(SWLI)像を示す。アズスライス SiC 表面にソーマークが観察され、A-B 断面図より、ソーマークの深さは $1 \mu\text{m}$ 以上に達していた。また、表面には脆性破壊的な除去による多くのピットが形成され、 S_q 表面粗さは $0.204 \mu\text{m}$ であった。

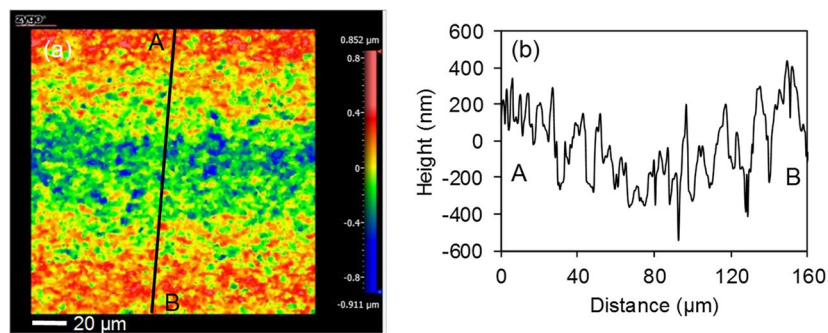


図 3 (a) アズスライス 4H-SiC (0001)表面の SWLI 像、 $S_q = 0.204 \mu\text{m}$ 、 $S_z = 1.763 \mu\text{m}$ 。(b) アズスライス表面の A-B 断面図。

図 4(a)にスラリーレス ECMP を用いて 2 h 研磨した SiC 表面の SWLI 像を示す。研磨した表面には研磨方向に沿って多くの研磨マークが観察されたが、初期のソーマークとピットは全て除去され、 S_q 表面粗さが $0.204 \mu\text{m}$ から 0.778 nm へと大幅に低減した。研磨痕の断面図より、 $24 \mu\text{m}$ の研磨深さが観察され、 $12 \mu\text{m/h}$ の非常に高い研磨レートが得られた。研磨マークは単純な 1 軸揺動のために形成されたと考えられるため、研磨の運動パターンを最適化することで、研磨マークの形成が抑制され、表面粗さをさらに低減できると考えられる。

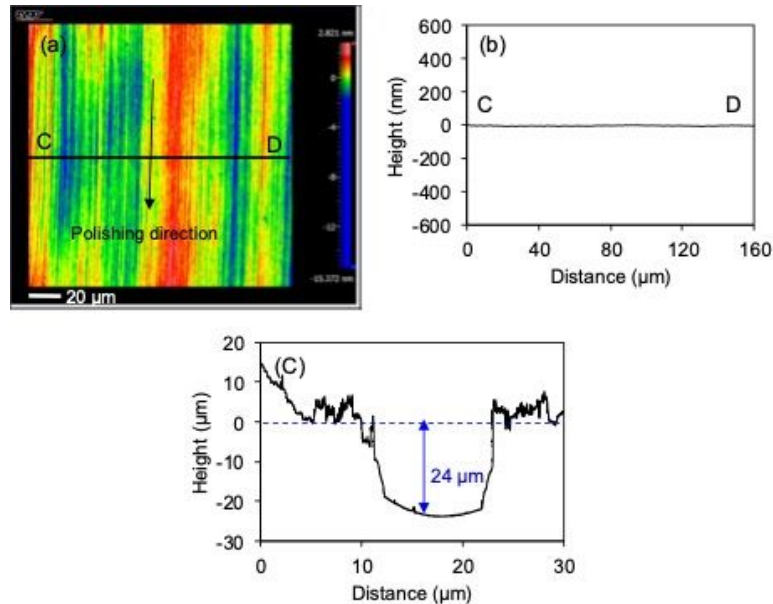


図 4 (a) 研磨した表面の SWLI 像、 $S_q = 0.778 \text{ nm}$ 、 $S_z = 18.194 \text{ nm}$ 。(b) 研磨した表面の断面図 C-D。(c) 研磨痕の断面図。

(2) 表面粗さの検討

図 5 に異なる電位で 1 wt % の NaCl 水溶液中で陽極酸化させた 4H-SiC (0001) 表面 (CMP) の AFM 像を示す。酸化電位が低い場合 (図 5(a)) では、表面の酸化レートが小さいが、表面に酸化物突起が生成されず、均一な薄い酸化膜が形成される。酸化電位が高い場合 (図 5(b)) では、酸化レートは大きいですが、表面に突起状の酸化物が生成され、表面粗さが悪化する。したがって、SiC の陽極酸化における酸化電位を制御した、粗 ECMP (高電位高速研磨) と仕上げ ECMP (低電位低速研磨) から成る 2 ステップ スラリーレス ECMP プロセスを提案する。スライスウェハに対して、初期研磨段階で粗 ECMP を用いて表面のダメージとウネりを高速に除去し、最後の研磨段階では仕上げ ECMP を適用することで、原子レベルで平滑な表面を得る。

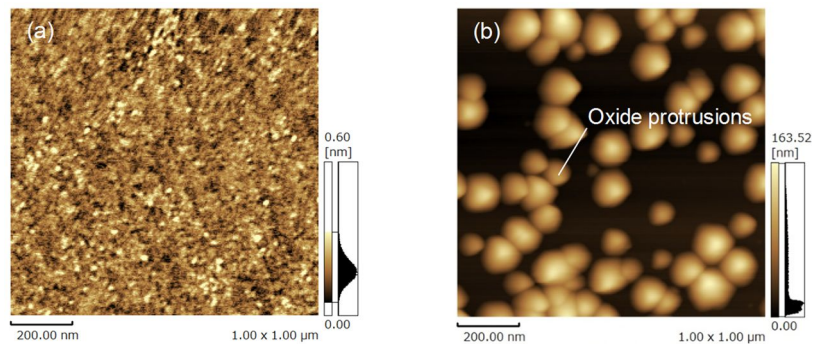


図 5 酸化した表面の AFM 像。(a) 3 V で 60 min 酸化させた表面。(b) 9 V で 1 min 酸化させた表面。

1 wt% の NaCl 水溶液を電解液とし、セリア砥石を用いた 2 ステップスラリーレス ECMP プロセスをアズスライス 4H-SiC (0001) の研磨に適用した。粗 ECMP では、 10 mA/cm^2 の電流密度を用いてアズスライス SiC 表面を 2 h 研磨した。仕上げ ECMP では、3 V の電位を用いて粗 ECMP 研磨した表面をさらに 1 h 研磨した。図 6 に研磨実験の結果を示す。2 h の粗 ECMP によりアズスライス SiC 表面 (図 6(a)) の S_q 粗さは 0.125 μm から 0.770 nm に低減したが、表面 (図 6(b)) には多くの空間周波数が高い研磨マークが存在している。図 6(c) に粗 ECMP 研磨した表面をさらに仕上げ ECMP で研磨した結果を示す

が、高空間周波数成分の研磨マークが除去されたことがわかる。図 7(a) に粗 ECMP で研磨した表面の AFM 像を示す。表面粗さは 1.324 nm で、多くの微細構造が見られる。図 7(b) に仕上げ ECMP 条件で研磨した表面の AFM 像を示す。図 7(c) に示す断面図では 1 bilayer に相当するステップテラス構造(ステップ高さ 0.25 nm)が観察され、原子レベルで平滑な表面であることを示している。ステップ端が直線ではないのは研磨の不均一性に起因するためと考えられる。以上より、提案した 2 ステップスラリーレス ECMP プロセスは SiC ウェハの研磨に有望であることを示した。

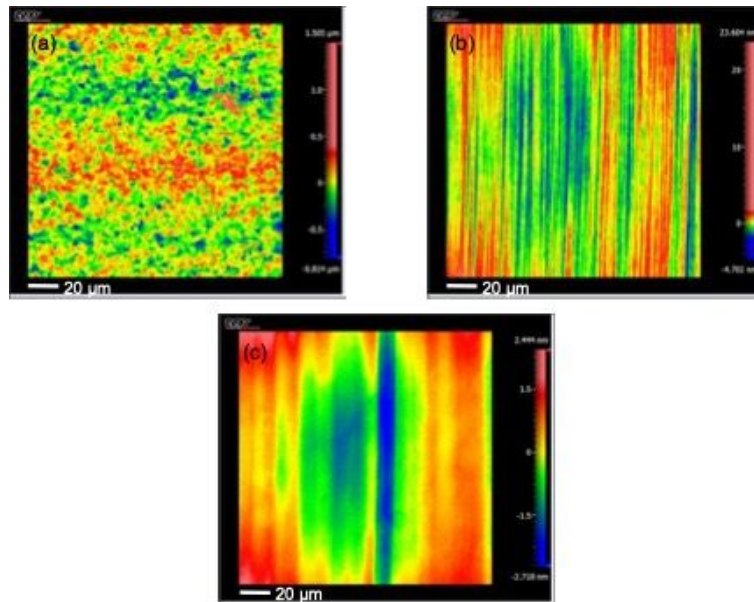


図 6 (a) アズスライス 4H-SiC (0001) 表面の SWLI 像、 $S_q = 0.125 \mu\text{m}$, $S_z = 2.319 \mu\text{m}$ 。(b) スラリーレス ECMP で研磨した SiC 表面の SWLI 像、 $S_q = 0.770 \text{ nm}$, $S_z = 28.306 \text{ nm}$ 。(c) 仕上げ ECMP で研磨した SiC 表面の SWLI 像、 $S_q = 0.808 \text{ nm}$, $S_z = 5.162 \text{ nm}$ 。

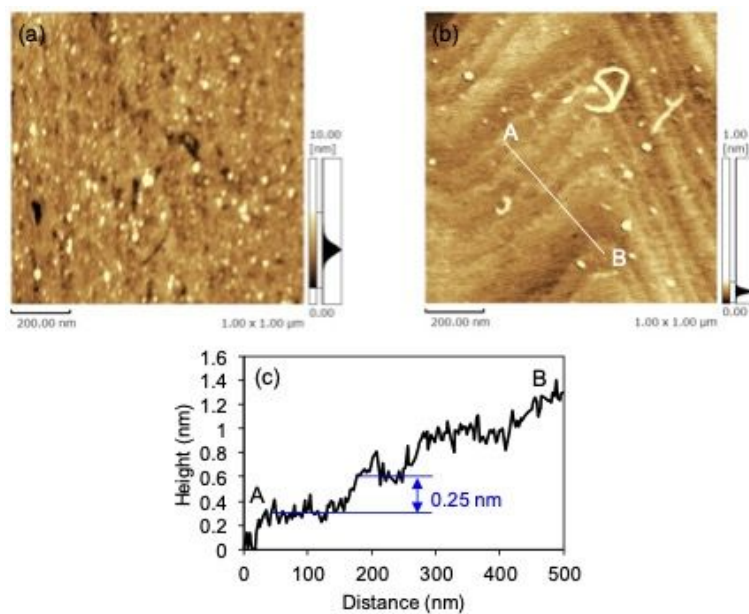


図 7 (a) 粗 ECMP で研磨した表面の SWLI 像、 $S_q = 1.324 \text{ nm}$, $S_z = 19.448 \text{ nm}$ 。(b) 仕上げ ECMP で研磨した表面の SWLI 像、 $S_q = 0.231 \text{ nm}$, $S_z = 7.048 \text{ nm}$ 。(c) A-B 断面。

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計5件（うち査読付論文 5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 Xu. Yang, X. Yang, R. Sun, K. Kawai, K. Arima, K. Yamamura	4. 巻 2
2. 論文標題 Obtaining Atomically Smooth 4H-SiC (0001) Surface by Controlling Balance Between Anodizing and Polishing in Electrochemical Mechanical Polishing	5. 発行年 2019年
3. 雑誌名 Nanomanufacturing and Metrology	6. 最初と最後の頁 140-147
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1007/s41871-019-00043-5	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 -
1. 著者名 Xu. Yang, X. Yang, K. Kawai, K. Arima, K. Yamamura	4. 巻 144
2. 論文標題 Highly efficient planarization of sliced 4H-SiC (0001) wafer by slurryless electrochemical mechanical polishing	5. 発行年 2019年
3. 雑誌名 International Journal of Machine Tools and Manufacture	6. 最初と最後の頁 103431
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1016/j.ijmachtools.2019.103431	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 -
1. 著者名 X. Yang, R. Sun, Y. Ohkubo, K. Kawai, K. Arima, K. Endo, K. Yamamura	4. 巻 271
2. 論文標題 Investigation of anodic oxidation mechanism of 4H-SiC (0001) for electrochemical mechanical polishing	5. 発行年 2018年
3. 雑誌名 Electrochimica Acta	6. 最初と最後の頁 666-676
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1016/j.electacta.2018.03.184	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 -
1. 著者名 X. Yang, X. Yang, K. Kawai, K. Arima, K. Yamamura	4. 巻 100
2. 論文標題 Ultrasonic-assisted anodic oxidation of 4H-SiC (0001) surface	5. 発行年 2019年
3. 雑誌名 Electrochemistry Communications	6. 最初と最後の頁 1-5
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1016/j.elecom.2019.01.012	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 -

1. 著者名 X. Yang, R. Sun, K. Kawai, K. Arima, K. Yamamura	4. 巻 11
2. 論文標題 Surface Modification and Microstructuring of 4H-SiC(0001) by Anodic Oxidation with Sodium Chloride Aqueous Solution	5. 発行年 2019年
3. 雑誌名 Applied Materials & Interfaces	6. 最初と最後の頁 2535-2542
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1021/acsami.8b19557	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12件 (うち招待講演 0件 / うち国際学会 6件)

1. 発表者名 Xu. Yang, X. Yang, K. Kawai, K. Arima, K. Yamamura
2. 発表標題 Comparison of two-step and simultaneous slurryless electrochemical mechanical polishing for obtaining smooth 4H-SiC (0001) surface
3. 学会等名 The 15th China-Japan International Conference on Ultra-Precision Machining Process (CJUMP2019) (国際学会)
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 Xu. Yang, X. Yang, K. Kawai, K. Arima, K. Yamamura
2. 発表標題 Slurryless electrochemical mechanical polishing of 4H-SiC (0001) surfaces
3. 学会等名 International Conference on Silicon Carbide and Related Materials (ICSCRM2019) (国際学会)
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 Xu Yang, X. Yang, K. Kawai, K. Arima, K. Yamamura
2. 発表標題 Preliminary study on slurryless electrochemical mechanical polishing of sliced 4H-SiC (0001) surface
3. 学会等名 The 8th International Conference of Asian Society for Precision Engineering and Nanotechnology (ASPEN2019) (国際学会)
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 Xu Yang, X. Yang, K. Kawai, K. Arima, K. Yamamura
2. 発表標題 Optimization of polishing parameters for obtaining smooth 4H-SiC (0001) surface by slurryless electrochemical mechanical polishing
3. 学会等名 The 22nd International Symposium on Advances in Abrasive Technology (ISAAT2019) (国際学会)
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 楊旭、楊曉喆、川合健太郎、有馬健太、山村和也
2. 発表標題 電気化学機械研磨による SiC の高能率スラリーレス加工法の開発(第4報) - 4H-SiC (0001) スライス面のスラリーレス電気化学機械研磨 -
3. 学会等名 2020年度精密工学会春季大会学術講演会
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 楊旭、楊曉喆、川合健太郎、有馬健太、山村和也
2. 発表標題 電気化学機械研磨による SiC の高能率スラリーレス加工法の開発(第5報) - 表面粗さを低減させる電位条件の基礎検討 -
3. 学会等名 2020年度精密工学会春季大会学術講演会
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 X. Yang, Y. Ohkubo, K. Endo, K. Yamamura
2. 発表標題 AFM observation of initial oxidation stage of 4H-SiC (0001) in electrochemical mechanical polishing
3. 学会等名 The 19th CIRP Conference on Electro Physical and Chemical Machining (国際学会)
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 X. Yang, K. Kawai, K. Arima, K. Yamamura
2. 発表標題 Preliminary study on the electrochemical mechanical polishing of 4H-SiC (0001) surface
3. 学会等名 The 14th China-Japan International Conference on Ultra-Precision Machining Process (国際学会)
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 楊旭, 川合健太郎, 有馬健太, 山村和也
2. 発表標題 固定砥粒を用いた4H-SiC (0001)表面の電気化学機械研磨
3. 学会等名 精密工学会2018年度関西地方定期学術講演会
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 楊旭, 川合健太郎, 有馬健太, 山村和也
2. 発表標題 電気化学機械研磨によるSiCの高効率ダメージフリー加工法の開発(第2報) - 酸化レートの変化による表面粗さの改善 -
3. 学会等名 2018年度精密工学会秋季大会学術講演会
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 X. Yang, X. Yang, K. Kawqai, K. Arima, K. Yamamura
2. 発表標題 Development of high-efficient and damage-free ultrasonic assisted electrochemical mechanical polishing for difficult-to-machine materials -Effects of mass concentration of electrolyte (NaCl) on the anode oxidation rate and the promotion performance of ultrasonic vibration-
3. 学会等名 2019年度精密工学会春季大会学術講演会
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 楊旭, 楊曉喆, 川合健太郎, 有馬健太, 山村和也
2. 発表標題 電気化学機械研磨による SiC の高能率スラリーレス加工法の開発(第 3 報) -酸化レートと研磨レートとのバランスが表面粗さに与える影響の調査-
3. 学会等名 2019年度精密工学会春季大会学術講演会
4. 発表年 2019年

〔図書〕 計0件

〔出願〕 計1件

産業財産権の名称 陽極酸化を援用した研磨方法	発明者 山村和也、楊旭	権利者 国立大学法人 大阪大学
産業財産権の種類、番号 特許、特願2019-144075	出願年 2019年	国内・外国の別 国内

〔取得〕 計0件

〔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
---------	---------------------------	-----------------------	----