

科学研究費助成事業 研究成果報告書

平成 28 年 6 月 15 日現在

機関番号：17102

研究種目：基盤研究(S)

研究期間：2012～2015

課題番号：24226005

研究課題名(和文)究極デバイスとしてのダイヤモンド基板の革新的超精密加工プロセスへのブレークスルー

研究課題名(英文) Breakthrough in the ultra-precision polishing process of diamond substrates as an ultimate device

研究代表者

土肥 俊郎 (DOI, Toshiro)

九州大学・産学連携センター・特任教授

研究者番号：30207675

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 165,600,000円

研究成果の概要(和文)：グリーンデバイス用ダイヤモンド、GaN、SiCなど超難加工材料の高効率加工技術の確立を目指し、基板に疑似ラジカル場を付与する前処理工程(1)、および世界初の“Plasma fusion CMP(プラズマ融合CMP)”工程(2)を提案した。

(1)フェムト秒レーザー照射によってアモルファス化・微細リップル構造化され、化学的安定している表面が酸化される相乗効果で研磨/CMPが促進されることを明らかにした。

(2)プラズマ融合CMPの2方式機種(A-type：基本型、B-type：挑戦型)を考案・試作した。本加工法で仕上げたダイヤモンド基板へのエピ成長を試みデバイス形成に適す表面であることを実証した。

研究成果の概要(英文)：In order to establish the high-efficient ultra-precision polishing process of super hard materials such as diamond, GaN, SiC and so on for green-device application, we have proposed two unique process technologies; 1) the pre-process under the addition of quasi-radical field, and 2) the Plasma fusion CMP technology which is quite unique and first in the world.

1) We have shown the following polishing mechanism. By femto-second laser radiation the ultra-thin crystal surface layer becomes amorphous and changes to the minute ripple structure. The surface structure change facilitates surface oxidation during CMP process and causes removal rate increase.

2) We have designed and made the two types of Plasma-fusion CMP machine which can realize the above polishing mechanism; basic type "A" and challenging type "B". Using those machines we have polished the diamond surface. The polished surface was proved to have quite suitable quality for epitaxial growth of semiconductor device application.

研究分野：超精密加工技術とその応用

キーワード：プラズマ融合CMP 加工効率 表面粗さ 難加工材料 フェムト秒レーザー CMP P-CVM 疑似ラジカル場

1. 研究開発当初の背景

近年、ワイドギャップ半導体の主役である炭化ケイ素 SiC と窒化ガリウム GaN は、他の半導体にはないすぐれた様々な特異な物性を有していることから脚光を浴びており、新奇のオプト・エレクトロニクスデバイスが続々と登場している。パワー半導体分野を例にして考えると、現在の Si 結晶基板でこれ以上の性能を求めることは物理的・理論的に限界になっている。そのため今後は、SiC や GaN 系といった次世代パワー・高周波デバイスの利用が徐々に増えることは間違いない(図 1 参照)。しかしながら、結晶の結合力が極めて強いということは、結晶成長や物性制御をはじめ加工プロセスを含めたデバイス化が極めて難しいことを意味するのである。

加工プロセスに焦点を当てると、これらに適用する結晶材料は、超精密無じょう乱鏡面の高品位、かつ所定の形状・寸法精度に効果的に仕上げる必要がある不可欠となるが、とくに究極的なデバイス用基板として注目されているダイヤモンド基板については、これまでの研磨の加工条件を改良しただけでは大量製造プロセス対応は不可能に近く、したがってコストダウンは全くできないことに等しく、何らかの新たな高能率・高品質の革新的加工技術へのブレークスルーを切望されているところであった。ここに本研究を行う理由がある。

2. 研究の目的

本研究では、SiC、GaN を包含した半導体ダイヤモンド基板を対象として、“疑似ラジカル場の形成法”の検討により超難加工材料でも容易に加工する状況を醸成する考え方を提案する。そして、これまで培ってきた独創的な密閉式研磨/CMP 法と、大気圧下で行うプラズマ加工/P-CVM (Plasma Chemical Vaporization Machining) 法の二者を効果的に融合させた“革新的プラズマ融合 CMP 加工法”とその装置化を提案する。併せて、準高圧の酸素環境下でプラズマ援用も視野に入れて、高品位面を高能率で

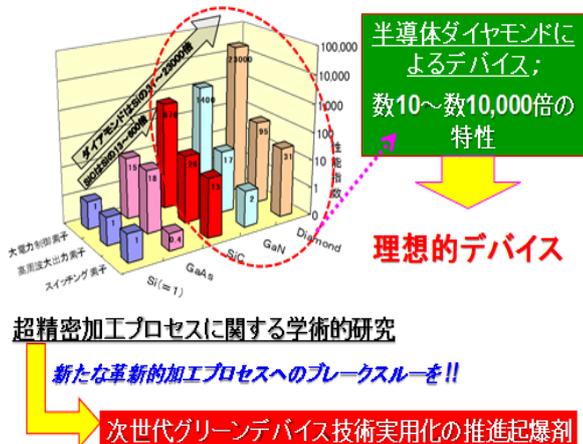


図1 本研究の背景 一次世代型デバイス基板のインパクトと超精密加工プロセスへの期待―

得られる加工プロセスの確立を目標とする。

以上により、次世代グリーンデバイス用の難加工材料基板の超精密加工の体系化を図り、低炭素化社会に向けたデバイスの早期実用化に貢献する。

3. 研究の方法

(1) 加工プロセスの設計

超難加工材料の超精密加工プロセス設計に当たり、下記の二つの加工工程(図 2 参照)を基本とした。

前加工工程の検討;加工対象基板の極表層に限定(数~100 原子層)してフェムト秒レーザによる超微小欠陥種を形成する。この疑似ラジカル場を形成することによって、機械的研磨あるいはCMPにて摩擦摩耗をとまなう化学反応とラジカル場(超微小欠陥種)を誘起させ、大気圧下での研磨/CMP を容易にしようとするものである。(図 3)

仕上げ加工工程の検討;高能率・高品位加工を可能とする革新的プラズマ融合 CMP 装置を試作・提案する。本試作装置の最もキーとなる加工箇所には、物理的作用を与える特殊パッドやスラリー/スラリーレスでラジカル場を形成させながら効果的 P-CVM 作用を誘発させる。酸素などのガス雰囲気下におけるCMP/P-CVM の高能率・高品位化の重畳効果も期待するものである。

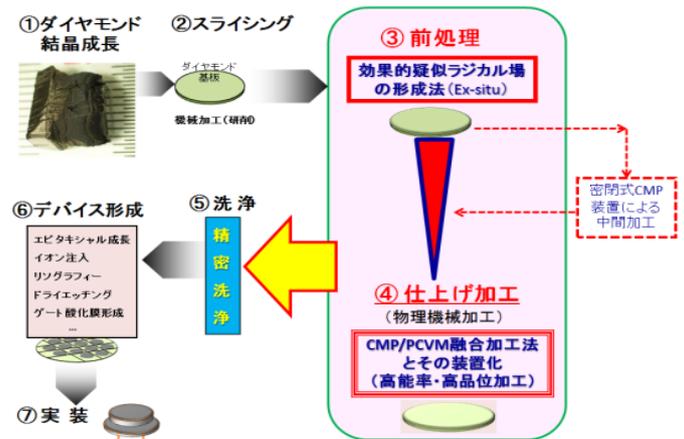


図 2 本研究における超難加工材料の超精密加工プロセスの骨子

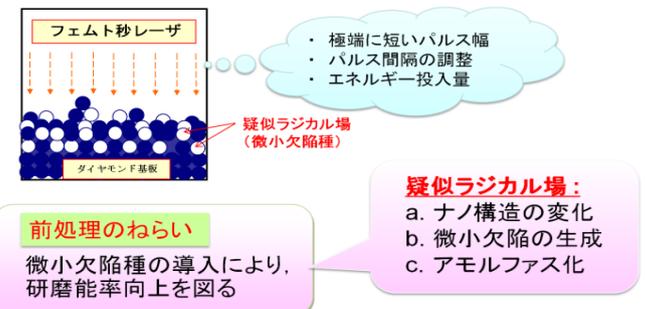


図 3 基板の前処理としての疑似ラジカル場の形成コンセプト

後者については、世界初の加工であり、“Plasma fusion CMP（プラズマ融合 CMP）”と呼称（商標登録出願中）し、特許出願（2件）をしている。

ここでは、基板の極表面層部に疑似ラジカル場を付与する前処理工程、CMP(Chemical Mechanical Polishing)、並びに P-CVM(Plasma Chemical Vaporization Machining)を融合した仕上げ工程を提案し各工程に関する研究成果を以下、要約する。

4. 研究成果

(1) 前処理としての疑似ラジカル場形成について、より高能率な利用法として SiC 基板の研磨前ラップ面にフェムト秒レーザ照射を施した部分について実際に研磨を行ったところ、アブレーションが発生した部分において、コロイダルシリカによる CMP 研磨における表面粗さの改善効果が観察された。これは、前処理面として、平坦化に必要な時間の短縮を意味している（図 4）。また、ダイヤモンド基板においては、アブレーションが起こっていないにもかかわらず、レーザ照射域に基板表面に光学的な変化が起こっていることが観察された。これは新しい発見であり、基板表面の粗さ変化・形状変化を伴っていないにも関わらず、基板結晶に何らかの変化が生じていることを示唆しており、この領域に CMP を付加することで材料除去率が改善できる。以上のことから、ダイヤモンド基板に対しても、先に述べた SiC 基板と同様の効果が現れており、後に続く研磨工程において同様に劇的な高能率化が期待できる。

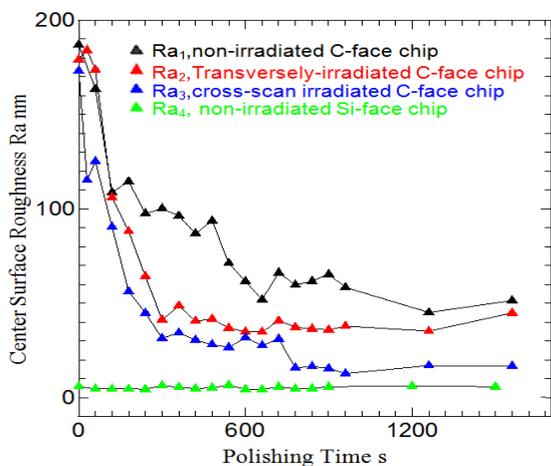


図 4 SiC の CMP 時間に対する表面粗さの推移

(2) Plasma fusion CMP の 2 方式の機種(A-type と B-type)を考案しその原理試作を行った。その装置運動機構などを確認後、SiC ならびに GaN 基板の基本的加工特性を把握した。当初の加工原理の妥当性・加工メカニズムを追究しながら、本プロジェクトの目標であるダイヤモンド基板の加工特性を把握し、さらに仕上げ加工を行ったダイヤモンド基板へのエピタキシャル成長を施し加工面の評価を行った。

①基本型プラズマ融合 CMP (A-type) 装置 (図 5) による加工特性：疑似ラジカル場（超微小欠陥種）の形成のための物理的機械加工と疑似ラジカル場を有する層を効率的にエッチングする P-CVM を交互

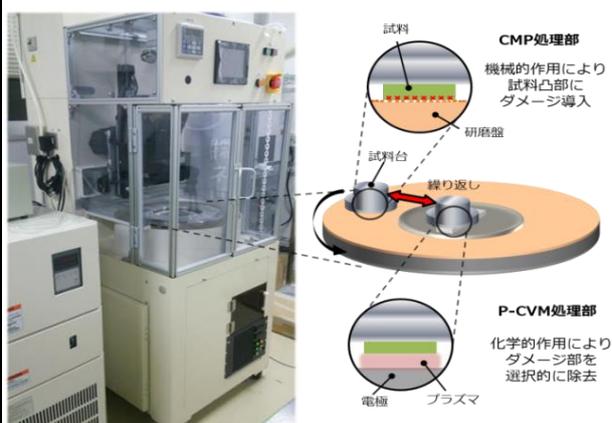


図 5 設計試作した革新的プラズマ融合 CMP 装置（基本型；A タイプ）の外観写真との中心部模式図

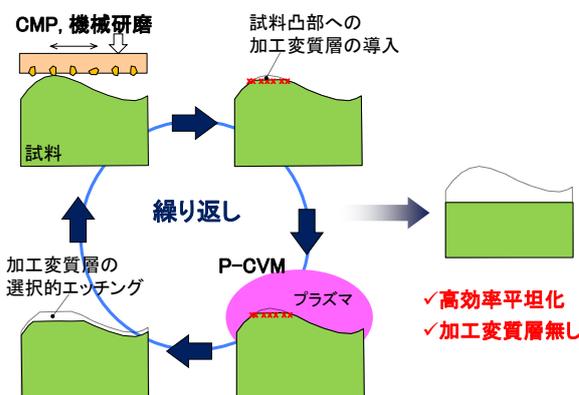


図 6 type-A プラズマ融合 CMP 装置による加工原理

に繰り返すことを加工原理とする加工法である。

P-CVM は化学的な等方性エッチングで結晶性を乱さず高能率加工が可能であるが、凹部でも等方的にエッチングが進行するので本質的に平坦化特性は期待できない。本提案加工では研磨によって凸部にのみ疑似ラジカル場を形成することで P-CVM 加工に凸部選択性を付与することを意図し、これまでに段差を高能率に平坦化できることを確認し、本融合加工原理（図 6）が平坦化加工法として機能することを実証した（図 7）。さらに、ダイヤモンドにおいても P-CVM 基礎実験装置を用いて検証した結果、SiC や GaN 同様に表面極近傍にて加工速度が約 2 倍になることを見出しており、ダイヤモンド基板に対しても本融合加工法が適用可能であることを実証できた。

②挑戦的プラズマ融合 CMP (B-type) 装置 (図 8) による加工特性：難加工材料である SiC、GaN を用いて検討し、以下の結果を得た。

SiC 基板ならびに GaN の Plasma fusion CMP では、従来の CMP と比較して加工レートが約 18 から数倍に上昇し、表面粗さも 1/2 の値に大きく改善できた。その中で GaN 基板の長時間加工を試みカソードルミネッセンス法により加工変質層を評価したところ、通常 CMP と比較して Plasma fusion CMP では、加工変質層の除去が 3 倍以上速いことが分かった。これらのことを踏まえて、ダイヤモンド基板のプラズ

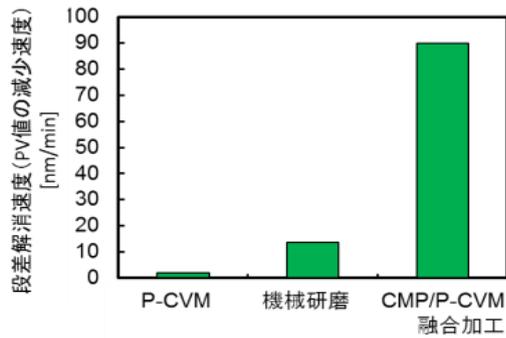


図7 Type-Aによる加工特性例 (段差解消速度の比較)

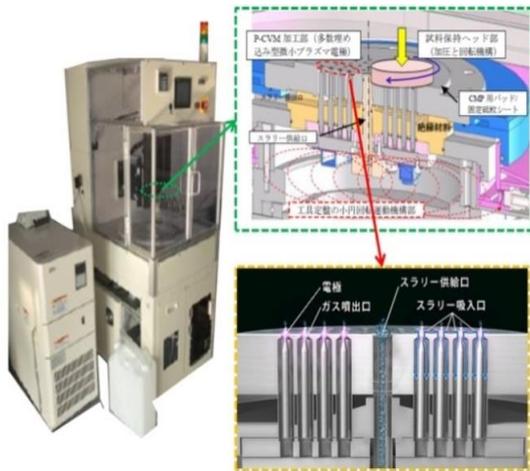
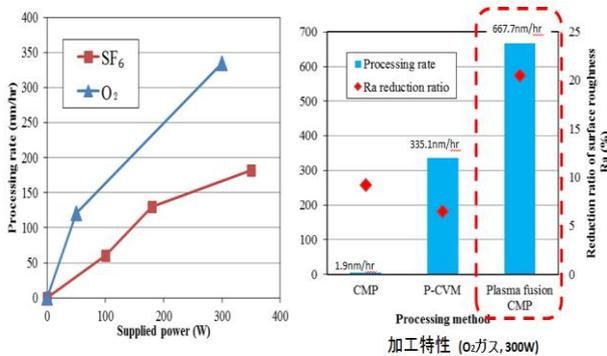


図8 設計試作したプラズマ融合 CMP 装置(B-type)の外観写真と工具・運動機構の模式図



・加工レート: CMP << P-CVM < Plasma Fusion CMP
 ・表面粗さ低減率: P-CVM << CMP < Plasma Fusion CMP
 Plasma Fusion CMP が最も優れる

図9 P-CVM、CMPならびにプラズマ融合CMPによるダイヤモンド基板の加工特性の比較例

マ融合 CMP に展開し加工レートと表面粗さは従来の特性を大幅に上廻ることを実証した (図9)。

(3) 構築した加工プロセスによるダイヤモンド基板加工面へのエピタキシャル成長とその評価

プラズマ融合 CMP 加工によって仕上げられたダイヤモンド基板は、加工起因の残留ダメージが存在せず、デバイス成長に適した表面を達成していることも確認することができた (図10)。

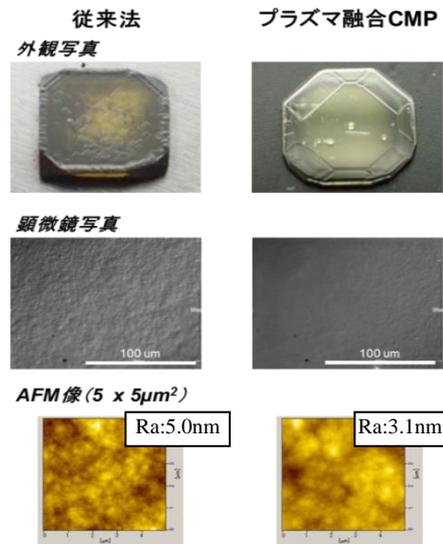


図10 本加工プロセスと従来法により仕上げたダイヤモンド基板にダイヤモンド薄膜をエピタキシャル成長の試み

今後は投入電力や反応ガス濃度などの条件最適化を図ることにより、更なる高能率化を図る必要があるが、プラズマ融合 CMP 加工では、CMP と P-CVM のシナジー効果を十分に発揮することが出来たことは大きな成果である。

5.主な発表論文等

① [雑誌論文(査読付き)] (計 12 件)

- High-efficiency planarization method combining mechanical polishing and atmospheric-pressure plasma etching for hard-to-machine semiconductor substrates, Y. Sano, K. Shiozawa, T. Doi, H. Aida, T. Miyashita, K. Yamauchi, Mechanical Engineering Journal, 3(1), (2016) 15-00527
- Consideration of Femtosecond Laser-induced Effect on Semiconductor Material SiC Substrate for CMP Processing, C. WANG, S. KUROKAWA, T. DOI, Y. SANO, H. AIDA, O. OHNISHI, M. UNEDA, K. OYAMA, T. HAYASHI, J. ZHANG, A. EIJI, Applied Mechanics and Materials, Vols. 799-800, pp. 458-462, (2015-10)
- Basic Study on Etching Selectivity of Plasma Chemical Vaporization Machining by Introducing Crystallographic Damage into Work Surface, Y. Sano, T. Doi, S. Kurokawa, H. Aida, O. Ohnishi, M. Uneda, Y. Okada, H. Nishikawa, K. Yamauchi, Key Engineering Materials Vol. 625 (2015) pp 550-553.
- Precise Mechanical Polishing of Brittle Materials with Free Diamond Abrasives Dispersed in micro-nano-bubble Water, H. AIDA, S.W. KIM, K. IKEJIRI, T. DOI, T. YAMAZAKI, K. SESHIMO, K. KOYAMA, H. TAKEDA, N. AOTA, Precision Engineering,

40, 81-86 (2015)

5. Approach to High Efficient CMP for Power Device Substrates, S. KUROKAWA, T. DOI, C. WANG, Y. SANO, H. AIDA, K. OYAMA and K. TAKAHASHI, ECS Transactions, Vol.60, Issue 1, pp.641-646 (2014-09)
6. Dependence of GaN Removal Rate of Plasma Chemical Vaporization Machining on Mechanically Introduced Damage, Y. Sano, T. Doi, S. Kurokawa, H. Aida, O. Ohnishi, M. Uneda, K. Shiozawa, Y. Okada, K. Yamauchi, Sensors and Materials, 26 (6) (2014) 429-434.
7. Surface Planarization of GaN-on-Sapphire Template by Chemical Mechanical Polishing for Subsequent GaN Homoepitaxy, H. AIDA, S.w. KIM, T. SUZUKI, K. KOYAMA, N. AOTA, T. DOI, T. YAMAZAKI, ECS Journal of Solid State Science & Technology, 3, 163-168 (2014).
8. Novel Chemical Mechanical Polishing/Plasma-Chemical Vaporization Machining (CMP/P-CVM) Combined Processing of Hard-to-process Crystal Based on Innovative Concepts, T. DOI, Y. SANO, S. KUROKAWA, H. AIDA, O. OHNISHI, M. UNEDA, K. OHYAMA, Sensors and Materials, 26, 403-416 (2014)

② [学会発表]

国際会議(査読付き)(計 21 件)

1. Plasma fusion chemical mechanical polishing of ultra-hard-to-process materials –Basic process characters for GaN substrate and prospective application toward diamond substrate-, K. Oyama, T. Doi, Y. Sano, S. Kurokawa, H. Aida, S. Kim, H. Nishizawa, C. Wong, T. Miyashita, 2015 JSME-IIP/ASME-ISPS Joint Conference on Micro mechatronics for Information and Precision Equipment, WeC-2-4, 14-17 June 2015, International Conference Center, Kobe, Japan.
2. Optimization of Machining Conditions of Basic-Type CMP/P-CVM Fusion Processing Using SiC Substrate, Y. Sano, K. Shiozawa, T. Doi, S. Kurokawa, H. Aida, K. Oyama, T. Miyashita, H. Sumizawa, K. Yamauchi, Proc. of ICPT 2015, pp. 302-305, September 30, 2015, Chandler, AZ, USA.
3. Effect of crystal orientation of diamond on its process properties in precise polishing, Y. Kimura, K. Oyama, H. Aida, S.-W. Kim, T. Doi, Y. Sano, S. Kurokawa, The 9th International Conference on New Diamonds and Nano Carbons, p.59, 24-28 May 2015, Shizuoka GRANSHIP, Japan
4. High efficiency surface planarization of single crystalline diamond by innovative plasma fusion chemical mechanical polishing, H. Aida, T. Doi, Y. Sano, S. Kurokawa, K. Oyama, S.-W. Kim, T. Miyashita, H. Nishizawa, The 9th International Conference on New Diamonds and Nano Carbons 2015, p.72, 24-28 May 2015, Shizuoka GRANSHIP, Japan.
5. High-efficiency planarization method for hard-to-machine semiconductor substrates combining mechanical polishing and atmospheric-pressure plasma etching, Y. Sano, K. Shiozawa, T. Doi, S. Kurokawa, H. Aida, T. Miyashita, K. Yamauchi, 2015 JSME-IIP/ASME-ISPS Joint Conference on Micromechatronics for Information and Precision Equipment, WeC-2-5, 14-17 June 2015, International Conference Center, Kobe, Japan.
6. Damage-induced increase of removal rate of atmospheric-pressure plasma etching of diamond substrate, Y. Sano, K. Shiozawa, T. Doi, S. Kurokawa, H. Aida, K. Oyama, T. Miyashita, H. Sumizawa, K. Yamauchi, The 9th International Conference on New Diamonds and Nano Carbons 2015, pp.68-69, 24-28 May 2015, Shizuoka GRANSHIP, Japan.
7. Innovation in chemical mechanical polishing (CMP): plasma fusion CMP for highly efficient processing of next-generation optoelectronics single crystals, Proc. of MIRAI 2015, H. Aida, T. Doi, Y. Sano, S. Kurokawa, S.-W. Kim, K. Oyama, T. Miyashita, M. Uneda, O. Ohnishi, C. Wang, pp. 80-84 (2015), 25-26 March 2015, Kaoshiung, Taiwan,
8. Study on a novel CMP/P-CVM fusion processing system (Type B) and its basic characteristics, K. OYAMA, T. DOI, Y. SANO, S. KUROKAWA, H. AIDA, T. MIYASHITA, S. Kim, Proc. of ICPT2014, pp.142-146, 19-21 November 2014, International Conference Center, Kobe, Japan
9. Development of Basic-Type CMP/P-CVM Fusion Processing System (Type A) and Its Fundamental Characteristics, K. Shiozawa, Y. Sano, T. Doi, S. Kurokawa, H. Aida, K. Oyama, T. Miyashita, H. Sumizawa, K. Yamauchi, Proc. of ICPT2014, pp.275-278, 19-21 November 2014, International Conference Center, Kobe, Japan
10. Proposal of a process with new concepts for hard-to-process crystals –Advanced high efficient precision processing for III-N semiconductors-, T. DOI, Y. SANO, S. KUROKAWA, H. AIDA, Workshop on Ultra-precision Processing for III-Nitride, 16-18 October 2013, Santa Barbara, USA, 【招待講演】
11. Removal Rate of Plasma Chemical Vaporization Machining of Intentionally Damaged Surface by Mechanical Action : K. Shiozawa, Y. Sano, T. Doi, S. Kurokawa, H. Aida, O. Ohnishi, M. Uneda, Y. Okada, K.

Yamauchi, Proc. of ICPE2014, pp.667-668, 22-25 July 2014, Ongakudo Hall, Kanazawa, Japan

12. Design and Prototype of Innovative CMP/P-CVM Fusion Processing Machine for Hard-to-Process Crystals and Its Processing Characteristics, T. DOI, Y. SANO, S. KUROKAWA, H. AIDA, K. Ohyama, S. KIM, O. OHNISHI, M. UNEDA, Workshop on Ultra-precision Processing for Wide band-gap Semiconductors, 22-23 August 2014, Bath, UK【招待講演】
13. Formation and Evaluation of Quasi-radical Site Induced by Femtosecond Laser on the Surface of Diamond, C. WANG, KUROKAWA, S. KOMAI, H. AIDA, K. OYAMA, K. TAKAHASHI, Y. SANO, K. TSUKAMOTO, T. DOI, Pro. of the 13th International Symposium on Aerospace Technology, pp. 49-51, 17-18 October 2013, Sacheon, Korea
14. Basic Study on Etching Selectivity of Plasma Chemical Vaporization Machining by Introducing Crystallographic Damage into Work Surface, Y. Sano, T. Doi, S. Kurokawa, H. Aida, O. Ohnishi, M. Ueda, Y. Okada, H. Nishikawa, K. Yamauchi, 5th International Conference of Asian Society for Precision Engineering and Nanotechnology (ASPEN2013), 1207(2013), Taiwan

国内会議 (計 40 件)

1. 革新的 CMP/P-CVM 融合加工装置の設計・試作 (第 12 報) - B-Type 装置によるダイヤモンド基板とその加工メカニズム, 西澤秀明, 土肥俊郎, 大山幸希, 會田英雄, 佐野泰久, 黒河周平, 金聖祐, 2016 年度精密工学会春季大会学術講演会, E84, 3 月 15~17 日 (2016), 東京理科大学, 千葉県野田市
2. 革新的 CMP/P-CVM 融合加工装置の設計・試作 (第 10 報) - 基本形装置(A 型)によるダイヤモンドの加工, 佐野泰久, 土肥俊郎, 黒河周平, 會田英雄, 大山幸希, 宮下忠一, 宮崎俊亘, 山内和人, 2016 年度精密工学会春季大会学術講演会, E82, 3 月 15~17 日 (2016), 東京理科大学, 千葉県野田市

③ [図書]

著書(計 3 件)

1. Handbook of Ceramics Grinding and Polishing(2E),(2015), T. Doi, I. D. Marinescu, E. Uhlmann, (Editors), Elsevier, 総 486 頁
2. Handbook of Ceramics Grinding and Polishing, Application to optoelectronics materials, Hideo AIDA, Elsevier, pp.449-469 (2014).
3. Advances in CMP Poliship Technologies, (2012), T. Doi, I. Marinescu, S. Kurokawa, (Editors), Elsevier, 総 317 頁

解説等 (計 16 件)

1. 高効率加工を目指す革新的プラズマ融合 CMP 技術と難加工材料への適用, 土肥俊郎, 會田英雄, 光技術コンタクト, 53, 3(2016)
2. 革新的プラズマ融合 CMP 加工技術とそのダイヤモンド基板加工への応用, 會田英雄, 土肥俊郎, 佐野泰久, 黒河周平, 大山幸希, 金聖祐, New Diamond, 32, pp.33-34 (2016).

④ [出願状況] (計 5 件)

1. 商標登録出願中(3 件); プラズマ融合 CMP, Plasma Fusion CMP, ロゴマーク, 土肥, 佐野, 黒河, 並木精密宝石, 不二越機械工業, 平成 28.3.22, 商願 2016-30997-30998-30999
2. 特許出願中(同名出願 2 件);加工方法および加工装置並びに該加工法又は該加工装置により加工された加工物, 土肥, 佐野, 黒河, 會田, 宮下, 大山, 特願 2014-034550-034551, 平成 26.2.25

⑤ その他 (HP、受賞、学位論文、ニュースレター等)

1. ホームページ;
<http://www.astec.kyushu-u.ac.jp/doi/>
2. 関連受賞; 日本機械学会「論文賞」、トライボロジー技術研究財団「岩木賞・大賞」、MIPE AWARD 2015、精密工学会「精密工学会賞」・「高城賞」・ベストポスタープレゼンテーション賞 2014、「ICPT Young Researcher Award」Doi Award、応物先端パワー半導体分科会研究奨励賞、表面科学会誌賞、九州大学総長表彰状, 2012, 2013, 2014 年
3. 学位論文; Chengwu Wang “Femtosecond Laser Processing on Hard-to-Process Materials and Its Application to CMP Process” (研究指導者: 黒河周平)
4. ニュースレター (計 5 件/各号 500 部発行)
No.1, No.2, No.3, No.4. No.5 (総集編)

6. 研究組織

(1) 研究代表者

土肥 俊郎(DOI, Toshiro)
九州大学・産学連携センター・特任教授
研究者番号: 30207675

(2) 研究分担者

・佐野 泰久(SANO, Yasuhisa)
大阪大学・大学院工学研究科・准教授
研究者番号: 40252598

・黒河 周平(KUROKAWA, Syuhei)
九州大学・大学院工学研究院・教授
研究者番号: 90243899

(3) 連携研究者

・大西 修(OHNISHI, Osamu)
宮崎大学・工学教育研究部・准教授
研究者番号: 50315107

・畝田 道雄(UNEDA, Michio)
金沢工業大学・工学部・教授
研究者番号: 00298324

(4) 研究協力者

會田 英雄(AIDA, Hideo)
並木精密宝石 (株) NJC 研究所・所長
(九州大学産学連携センター・特任教授/兼任)