平成25年度 戦略的基盤技術高度化支援事業

「グリーンイノベーションを加速する LED 向けサファイア基板の 革新的高効率加エシステムの開発」 成果報告書

平成26年3月

委託者 東北経済産業局

委託先 株式会社斉藤光学製作所

目 次

- 第1章 研究開発の概要
 - 1-1 研究開発の背景・研究目的及び目標
 - 1-2 研究体制
 - 1-3 成果概要
 - 1-4 当該研究開発の連絡窓口
- 第2章 研究内容及び成果
 - 2-1 ①研磨レートの向上と加エコスト削減を可能とする電界ラップ技術の開発
 - 2-1-1 ①-1 電界アタッチメント機構の開発
 - 2-1-2 ①-2 樹脂性パッドを採用した定盤による電界ラップ条件の最適化
 - 2-1-3 サブテーマ①研究成果
 - 2-2 ②LED デバイス向け理想表面を創出する電界高速 CMP 技術の開発
 - 2-2-1 ②-1 電界高速 CMP 技術の開発による研磨効率の向上
 - 2-2-2 ②-2 電界高速 CMP 用研磨砥粒の開発
 - 2-2-3 ②-3 単結晶サファイア CMP シミュレーション技術の開発
 - 2-2-4 サブテーマ②研究成果

第3章 全体総括

- 3-1 全体総括
- 3-2 事業終了後の方針

第1章 研究開発の概要

1-1 研究開発の背景・研究目的及び目標

省エネルギーに優れる LED 照明の普及促進の鍵は、品位の高度化とコスト低減である。現 在、LED 用基板は、単結晶サファイア基板に窒化ガリウム(GaN)をエピタキシャル成長させる 方式が最も多く採用されている。単結晶サファイアはビッカース硬度 HV2300(ダイヤモンド、炭 化ケイ素に次ぐ硬度)の硬脆材で、かつ化学的安定性に富むため、加工に長時間を要してい る。このため、低コスト化に対応するためには、取り数を増やす必要があり、基板サイズの大 口径化が必須であるが、加工技術が進展していない。本研究開発では、高い品位を維持し、6 インチサイズの大型基板の加工コストを抑えるためのラップ技術と CMP 技術を狙うものであ る。

ラップ技術には電界砥粒制御技術を適用し、加工効率と品位の向上を図るとともに,用いる副資材を見直し、コスト低減が得られる電界ラップ技術を開発する。

CMP 技術に於いては、電界高速 CMP 技術を導入して高速回転・低荷重研磨技術を開発し 迅速な表面仕上げ技術を可能にする。更に単結晶サファイア基板に有効なコロイダルシリカ スラリーを開発し研磨効率の向上を狙う。単結晶サファイアの研磨メカニズムを明らかにする ために単結晶サファイア専用の CMP シミュレーション技術を開発し、上記研磨技術の開発並 びに最適化を支援する。

これらにより、平成25年度には以下の要求事項を実現する。

- ・表面品位:表面粗さRa ≦0.2nm・反りBOW ≦40µm・平坦度 TTV≦30µm
- ・電界ラップエ程時間:従来比 30%減
- ・電界高速 CMP 時間:従来比 30%減
- ・ラップ定盤価格:従来の 1/50

ターゲット工程に係るトータル加工費 30%削減

1-2 研究体制

株式会社斉藤光学製作	 퇃所		
再委託	- サイチ工業株式会社		
再委託	↓ 秋田県産業技術センター		
再委託	- 一般財団法人ファインセラミックスセンター		
再委託	国立大学法人東北大学		
総括研究代表者(PL) 株式会社斉藤光学製作所 代表取締役 齊藤 伸英	副総括研究代表者(SL) 秋田県産業技術センター 素形材プロセス開発部長 赤上 陽一		

1-3 成果概要

本研究開発の目標を達成するために、以下の5項目の技術について研究開発を実施した。 1-3-① 研磨レートの向上と加工コスト削減を可能とする電界ラップ技術の開発

(株式会社斉藤光学製作所、サイチ工業株式会社、秋田県産業技術センター)

1-3-①-1 電界アタッチメント機構の開発

23 年度はラボ実験用電界アタッチメントを試作し、そこで得られた知見をベースに 24 年度 は大型装置向け電界アタッチメントを開発し、23 年度に導入したラップ、CMP の両装置を改 造後に導入した結果、ラップ装置の研磨除去量は23%向上した。一方、CMP 装置の研磨除 去量は21%向上したが、平坦性に課題が認められた。これを受けて 25 年度は、CMP 工程用 大型装置の電界アタッチメントの改造を行い、新たにセラミックス製のアタッチメントを開発す ることで、平坦度の指標である GBIR 値において 3.26 μm を達成し、昨年度の課題を解決し た。また、研究項目②-1において、電界印加により 31.9 %の研磨レート向上効果を確認した。 これより、電界高速 CMP に適した電界アタッチメント機構を確立した。

1-3-①-2 樹脂製パッドを採用した定盤による電界ラップ条件の最適化

ラップ工程に樹脂パッド及び電界砥粒制御技術を導入し、ダイヤモンド砥粒種、スラリー溶 媒、電界印加条件の最適化を実施し、スラリーを効率的に研磨界面に供給するため、スラリ 一流れに配慮した任意波形を与えることにより、研磨レート 17 µm/h を得た。また、その時の 試料平坦性は GBIR 3µm 以下、表面粗さは PV 16nm という優れた結果を得た。以上より、 研磨レートは従来技術比 47%向上、時間短縮効果として、32%短縮を実現し、目標である 30%を達成した。さらに表面粗さは従来技術比1/2以下を実現し、後工程である CMP 工程時 間の半減が期待される。また、本技術においては、ダイヤモンドの損耗が少ないことから、スラ リーの循環使用に適しており、低コスト化の可能性を得た。

本研究項目において従来技術と比して高い優位性を有する電界ラップ技術を開発し、研究 目標を達成した。

1-3-② LED デバイス向け理想表面を創出する電界高速 CMP 技術の開発

(株式会社斉藤光学製作所、サイチ工業株式会社、秋田県産業技術センター、 財団法人ファインセラミックスセンター、国立大学法人東北大学)

1-3-2-1 電界高速 CMP 技術の開発による研磨効率の向上

CMP 装置にナノバブル水にて希釈したスラリーを適用し、水素ナノバブル水希釈スラリー において、75%希釈時に3 µm/h、50%希釈時に2 µm/hの研磨レートが得られ、特に75% 希釈条件では、スラリーを原液使用した場合と同程度の加エレートを得た。これらより、スラリ ー使用量削減の可能性が得られた。

更に試作改造を施した電界アタッチメントを用い、CMP 工程における電界印加条件の最適 化に関する検討を実施した。電極形状として試料サイズよりも小径な電極を用いることで、電 印加時の研磨レートは 2.53 µm/h 無電界時と比較して 31.7%の研磨レート向上効果を確認 した。また、表面性状測定結果は GBIR 3.92 µm であり、LED 向けエピレディ基板としての 仕様を満足する良好な平坦性が得られた。本結果並びに研究項目①-2項におけるダメージ 層の半減効果により、CMP 工程必要除去量は従来の 50 %となることを併せると、従来技術 比 62 %の時間短縮が可能となり、本工程時間 30 %短縮目標を達成した。

1-3-2-2 電界高速 CMP 用研磨砥粒の開発

電界に対して高い応答性と、高いサファイア研磨特性を有する電界高速 CMP に最適な砥 粒の開発を目的として電解高速 CMP 用研磨砥粒の開発検討を行った。検討は、サファイア 研磨特性に優れた噴霧熱分解合成シリカ砥粒の最適化と、電界応答性を向上するための、 高誘電率材料との複合化について行った。その結果、噴霧熱分解合成シリカ砥粒への適切 な熱処理条件検討、スラリー溶媒への適切な添加剤の検討、および粒子径の最適化によっ て、市販のコロイダルシリカスラリーに匹敵する高い研磨特性が得られることが分かった。また、 外部印加電界に対して高い応答性と、サファイアとの高い CMP 特性の二つの特性を両立す るために、被覆型の微細構造を有する複合粒子に着目した。その結果、開発砥粒スラリーは 市販のコロイダルシリカスラリーに比べ、外部印加電界に対して高い応答性を示すことがわか った。開発した砥粒スラリーを用いて外部印加電界中でのサファイア研磨試験を行った結果、 従来のコロイダルシリカスラリーと比較して研磨速度に及ぼす電界効果が16%向上することが 分かった。

1-3-2-3 単結晶サファイア CMP シミュレーション技術の開発

原子レベルで良質な平坦性を実現する単結晶サファイア基板の研磨技術の開発を支援す るため、25年度は量子分子動力学法に基づくCMPシミュレータを開発し、α-Al₂O₂(0001)表面 のSiO,砥粒による研磨シミュレーションを行った。その結果、α-Al,O,(0001)表面とSiO,砥粒 間の化学反応によってAI-O結合が弱められ、さらに弱められたAI-O結合が水の化学反応に よって解離することで、単結晶サファイア基板の研磨が進行することを明らかにした。さらに、 電界の効果を考慮可能な量子分子動力学シミュレータを開発し、電界がα-Al₂O₂(0001)表面 のSiO。砥粒による研磨プロセスに与える影響を検討した。その結果、電界の印加には、SiO。 砥粒と化学反応しやすいように単結晶サファイア表面のO原子を露出させることで、SiO,砥粒 の単結晶サファイア表面に対する研磨性能を向上させる役割があることが示唆された。また、 我々が明らかにしたα-Al₂O₂(0001)表面の研磨メカニズムより、新規砥粒の設計指針として、 砥粒による押し込み過程において、よりAI−O結合を弱めるように、砥粒にサファイア基板に対 する高い化学反応活性を付与する工夫が重要であることを提案した。そこで、異種元素を添 加したSiO。砥粒の研磨性能について第一原理計算を用いて検討した。その結果、普通のSiO。 砥粒よりもN添加SiO,砥粒の方が、押し込み過程においてα-Al,O₃(0001)表面のAl-O結合を 大きく伸長させることが明らかにされた。つまり、N原子添加によってSiO。砥粒の化学的作用 が強まり、CMPプロセスが促進されることを提案した。

1-4 当該研究開発の連絡窓口

〇管理法人

株式会社斉藤光学製作所 (最寄り駅:JR 奥羽本線大曲駅) 〒019-1512 秋田県仙北郡美郷町本堂城回字若林 118-3 TEL:0187-85-3300 FAX:0187-85-3302 取締役管理部長 齊藤 高留

第2章 研究内容及び成果

2-1 ①:研磨レートの向上と加工コスト削減を可能とする

電界ラップ技術の開発

株式会社斉藤光学製作所

高橋辰雄、煙山康晴、伊賀美里、千葉翔悟

サイチエ業株式会社

松下大作、佐々木健二、照井伸太朗

秋田県産業技術センター

久住孝幸、佐藤安弘、中村竜太、池田洋、赤上陽一

(ア) プロジェクト全体における本研究部門の位置づけ

LED 向けサファイア基板の革新的高効率加エシステムの開発において、ラップエ程に電界砥 粒制御技術を応用した電界ラップ技術を開発し、本工程の研磨効率を向上させるとともに、安価 な樹脂パッドの導入による副資材コストの低減を図り、本工程の時間短縮、加工コスト低減を実 現する。本研究項目は①-1:電界アタッチメント機構の開発、①-2 樹脂製パッドを採用した 定盤による電界ラップ条件の最適化の二つの研究項目より構成される。

(イ) 目的と目標

単結晶サファイア基板加工におけるラップ工程は、一般的に錫・銅などの高価な定盤(定盤 径が40インチサイズでは300万円程度)を用い、さらにダイヤモンド砥粒による機械的な研磨を 行うため加工コストの低減は未着手な領域である。一方、試料に加工変質層が発生し易く、 後工程への負担が増大する可能性も有している。

そこで、砥粒配置制御技術である電界砥粒制御技術を本工程に適用した電界ラップ技術を開発する。これにより高価な金属製定盤をステンレス製定盤と樹脂製パッドの構成に代替し、加工変質層の発生を抑制するとともに、副資材のコスト低減を図り、ユーザーのリスクを解消する。本技術を実現するために、既存のラッピング装置へ適用可能な電界アタッチメント機構を開発し導入する。

これらより、副資材コスト(定盤コスト)を従来の 1/50 とし、技術を最適化することで最終 年度にはラップ工程時間 30%短縮を目指す。

2-1-1 ①-1:電界アタッチメント機構の開発

1) 大型電界アタッチメント機構

1)-1 これまでの構成と問題点

23 年度に開発したラボ実験用電界アタッチメントを図1に示す。本アタッチメントを用いて得られた知見を基に、24 年度はラップ・CMP 工程用大型装置向け電界アタッチメントを開発・導入した。図2~ 4に導入したラップ・CMP 工程用電界アタッチメント及び各種定盤を示す。

図2に示す電界アタッチメントの構成は、研磨定 盤部とプレッシャープレート、回転給電部と装置接 続部がそれぞれ接触するため、これらの箇所に絶



図 1 ラボ実験用電界アタッチメント

縁処理を施した。絶縁には材質特性の観点より、ガラスエポキシ樹脂を用いた。

図 3 に示すラップ工程定盤部は、23 年度に開発した電界集中用台座付き電極定盤を基に、 定盤部と作業範囲への絶縁を目的とした絶縁用ガラスエポキシ樹脂部を用いて構成した。

また、CMP 工程においては、使用するスラリーに化学的作用があるため、研磨定盤部の耐 食性に配慮する必要がある。また、本工程においては一般的にスラリーに水ベースのスラリー が用いられることから、電極周辺部の絶縁性を確保する必要性がある。これらの要求を満たす 材質として、ガラスエポキシ樹脂を採用した。ラボ実験用電界アタッチメントと同じく、内部に電 極を封入する構成とし、定盤上部に電極給電経路を確保した。



図 2 ラップ・CMP 工程用 電界アタッチメント



図 3 ラップエ程用 SUS 製定盤



図 4 CMP 工程用 樹脂製定盤

本アタッチメントを 23 年度に導入したラップ、CMP の両装置に改造、導入した結果、ラップ装置において研磨除去量で23%向上の結果を得た。また、CMP 装置においては研磨除去量で2 1%向上の結果を得た。しかし、CMP 工程においては、試料搭載プレートへの試料貼り付け時の昇温・冷却における熱変形によりワックスの貼りむらやはがれ、研磨中の高荷重印加における変形により加エレートのバラつき等が見られたことから、25 年度はこれらの課題を解決するために定盤の開発を行った。定盤部の構成は、電極封入台座部、ベースプレート部、台座保持用テンプレート部である。

1)-2 電極封入台座部

電極封入台座部は、試料を貼り付ける部位であるため、試料貼り付け時の昇温・冷却による 貼りむらやはがれと研磨中の高荷重による変形の2つの課題を解決する必要がある。

第一の課題については、昨年度の実験より、ガラスエポキシ樹脂製定盤部と研磨試料の熱 膨張率の差が原因で発生すると考えられた。このことから、試料を貼り付ける素材と貼り付け 試料であるサファイアが同等の熱膨張率である必要がある。また、高荷重印加による変形に関 しては、研磨時に与える荷重条件に耐える機械的剛性が必要となる。また、昨年度同様に耐 食性、及び絶縁性についても配慮する必要もある。これらの要求を満たす材質について検討を 行い、アルミナセラミックス(純度 99.5%)に着目した。

そこで、3 点曲げ試験を行い 24 年度に定盤材質に用いたガラスエポキシ樹脂との比較を行 った。図5にガラスエポキシ樹脂の試験結果を、図6にアルミナセラミックスの結果を示す。

試験結果より、ガラスエポキシ樹脂に比較してアルミナセラミックスは高温化においてもヤン グ率の低下が見られなかった。本結果より、昨年度の課題であった熱変形及び高荷重による 変形が抑制可能であると考えられる。



図 5 ガラスエポキシ樹脂結果

図 6 アルミナセラミックス結果

次に、電気絶縁性に関する実験を行った。実験条件は基礎的な電気特性評価並びに研磨 環境を想定した2水準の評価を行うため、乾燥状態の試料と12時間水に浸漬した試料の2種 を用いて比較を行った。0.5~2.3 kV/mm の電界を印加した。印加時間は 30、60、90 分とした。

実験結果は、乾燥状態並びに 12 時間水に浸漬後の試料のいずれにおいても、1.5 kV/mm

の条件で 90 分間絶縁破壊は確認でき なかった。本結果より、アルミナセラミッ クスは電界高速 CMP に使用可能である と考えられる。また、本 CMP 工程に用い られるスラリーの化学作用に対しても十 分な耐食性を有するものと考える。これ より、本材質を電極封入台座部素材とし て採用した。

電極封入台座部の構成を図7に示す。 凹状に加工したアルミナセラミックス内 部に銅電極を配置し、熱硬化式接着剤





を用いて電極を固定した。また、内部に気泡等が含まれることで、電界の分布等に影響を与え ることが想定されるため、熱硬化式接着剤を充填した後、真空脱泡を実施した。

1)-3 試作定盤部性能評価

次に開発した定盤部の 性能確認のため、研磨実 験を行った。図8に定盤 部を構成するベースプレ ート部を示す。

図9に台座 保持用テンプレート部を示 す。テンプレート部はベー スプレート部に固定され、



図 8 ベースプレート部



図9 台座保持用テンプレート部

そのはめ込み穴に、試作した電極封入台座を配置し加工を行う。

実験条件としては研磨試料には単結晶サファイア基板φ6 インチを用い、固形ワックスにて

電極封入台座部に貼り付け固定した。研 磨砥粒は、市販のコロイダルシリカ砥粒を 用い、原液を1way方式で供給した。パッド には不織布パッドを用い、下定盤回転数 を 35rpm に設定した。研磨時間は 60 分と した。

図 10 に従来のセラミックスプレートと本 定盤部の研磨レート比較実験結果を示す。 研磨レートは、既存セラミックス定盤と同 等の性能が得られることを確認した。



1)-4 CMP 用電界アタッチメント最適化

次に事業化に向けたコスト削減の観点から、電極封入台座部の設計検討を行った。1)-3 で 用いた電極封入台座部は、凹状に加工したアルミナセラミックス内部に銅電極を配置し、同セ ラミックスで封入する構造となっていた。しかし、セラミックスの凹状への加工は加工時間・コスト、 及び機械加工で発生する残留応力による耐久性の悪化等の課題が考えられる。そこで、これ らの課題を解決するため、平板積層構造の検討を行った。実験条件は試料並びに副資材条件 は前述の定盤部性能確認実験と同様とし、電界高速 CMP 技術導入を想定し、下定盤回転数 は 60 rpm、研磨荷重を 160 g/cm²と設定し実験を行った。

図 11 に研磨レート比較結果を示す。図 12 に試料平坦性評価結果を示す。図 11 より、試作電 界アタッチメントは既存のセラミックス定盤と同等の研磨性能を有することが確認できた。また、 平坦度についても平坦度指標である GBIR 値にて 3.26 μmという数値を得た。これは、一般的 な LED 向けサファイア基板の品質規格である GBIR 5 μm以内に収まる数値であり、電界高速 CMP 用アタッチメントに求められる機械的性能を満足するものである。本結果より、電界高速 CMP に適した電界アタッチメント機構を確立した。



図 11 研磨レート比較結果



図 12 試料表面性状

電界ラップ条件の最適化

1) 樹脂パッド寿命評価

電界ラップ技術の開発において、従来使用の金属製定盤を樹脂製パッドに代替する上で、その寿命は副資材のコストに大きな影響を与えることから、工業的に非常に重要なファクターとなる。 樹脂パッドの寿命特性を明らかにするために、寿命評価実験を行った。図 13 に本技術における 樹脂パッド貼り付けから交換までの寿命テストフロー図を示す。第一工程としてSUS製の定盤に 貼り付けを行い、その後、図 14に示すフェーシング機構を用い、パッド表面のフェーシング加工を 行う。フェーシング加工は、図 15 に示すように大溝加工、小溝加工に大別され、大溝加工は、ス ラリー流れと加工中に発生する加工屑の排出を良好にするとともに、試料とのマクロな接触面積 の最適化による加工精度向上を主な目的とする。小溝加工は、大溝加工後に形成されるパッド 凸部に対して、より細かな溝加工を施すことで、砥粒保持力の向上による加工レート向上を目的 とする。H23年度に実施した実験結果より、フェーシング加工により、加工レートが影響を受け向 上する場合があることを確認している。

前述のフェーシング加工を施した後、試料のラップ加工を繰り返し行うことで、小溝の目詰まり や摩耗が発生し、加工レートの低下並びに試料平坦性の悪化等が発生する。

ここで、再度小溝加工を行い、加工特性を初期の良好な状態に戻し、更に加工を繰り返す。こ れより、徐々に大溝深さは低減するため、下限値を下回った際に再度大溝加工を施す。このプロ セスを繰り返し、パッドの厚さが一定値を下回ったとき、廃棄される。貼り付け以降の工程につい ては、従来金属製定盤も同様のプロセスが適用される。



図 14 フェーシング加工図



上記使用フローにおいて、小溝加工後の加工特性低下までのラップ加工可能回数が明らかと なれば、それぞれの厚さより、寿命を導出することが可能となる。

これより、一定の加工条件の下、繰り返しラップ加工を実施し、高特性低下時の加工回数を、 寿命を示すパラメーターと定義し、従来金属製定盤と樹脂パッドで比較を行った。

その結果、加エレートは、加工時間 11 時間のポイントにおいて加エレートが低下する傾向が見られた。ここで、従来の金属製定盤の加工特性低下ポイントは 16 時間加工時であることから、

本条件において、樹脂製パッドは金属製定盤と比して 30%程度早く加工レートが低下する傾向 を示した。本実験においては、従来の金属製定盤と同条件にてフェーシング加工を行っているた め、本実験結果を基に、フェーシング条件の再検討を実施するとともに加工条件の最適化を図る ことで、長寿命化が可能であると考える。

2) 樹脂製パッドによる加エメカニズム検討

通常のラップ加工において、ラップ盤、ラップ工具と呼ばれる定盤は軟質の金属定盤が利用 される。この軟質金属定盤には、錫や銅が用いられており、この定盤にダイヤモンドスラリーを 滴下や噴霧後、修正リングと呼ばれる工具でダイヤモンド砥粒を定盤に埋め込む。そしてこの 埋め込まれた砥粒によって基板の形状創出作業を行う。

これに対し、電界ラップ技術では、定盤コスト低減の効果を狙って樹脂パッド定盤を利用する。 加工時間短縮の目標達成にあたって、定盤上の砥粒の振る舞いについて、より詳細な検討を 実施した。初めに、定盤上の砥粒突出量の評価手法について検討を行い、図 16 に示すような 静的な条件で押し込み試験を実施した。評価基板材料としては、従来技術を想定した銅片と、 これまで検討してきている樹脂パッドとした。ここに、平均粒径 2.51 µm のダイヤモンド砥粒と水 で 2wt%に分散させたスラリーを 600 µ L滴下し、サファイア基板上で 5 分間加圧した。これを流 水洗浄してブロー後、Zygo 社製 NewView6300 で観察した。



図 16 砥粒埋め込み試験用観察材料

解析は、Zygo 社製 MetroPro の AdvText モジュールで行った。測定データは、約 14μ m の波長のハイパスフィルターで、基板面の うねり成分を除去し、突起高さ0.4μm以上の 突起を抽出し、そのヒストグラムを出力した。 本手法を用いて複数回の測定を行い、突起 数1000個程度のヒストグラムから得られた平 均高さと荷重の関係を図17に示す。ここで、 電子顕微鏡にて砥粒観察を行った結果、粒 度分布計では、平均粒径 2.51μmとして得ら れるデータも、電子顕微鏡においては、長径 約3μm、短径約2μm 程度の楕円形状をし



図 17 砥粒埋め込み高さの荷重依存性

ていることがわった。すなわち、図 23 で得られた無負荷時の高さ 2µm の突起高さ分布は、楕 円形状砥粒の短径側が抽出されたものと考えられる。一方、これに負荷をかけていくと、銅定 盤上は突起高さが低くなっていくが、樹脂パッド上は初期と変わらず、2µm の突起高さとなって いる。

次に動的条件における評価実験を実施した。実験装置は、卓上研磨装置(定盤径 ϕ 180)とし、樹脂パッド、Cu 板(t=1mm)をそれぞれ貼り付け、電着ダイヤモンド砥石で形状修正後、2wt% ダイヤモンドスラリーを 1ml/min で滴下してサファイア基盤 ϕ 2 インチ×3枚を6 分間加工した。 その後、樹脂パッド、Cu 板を取り外し流水洗浄後、静的条件と同様の解析方法で評価・観察を 行った。 図 18 に、定盤形状修正後の表面観察結果を示す。銅は、いくつかの傷がみられるものの、 比較的平坦な表面が得られている。樹脂パッドは樹脂伸びといわれる、修正後の最表面にひ だ状のものが見られた。これらの基板に動的砥粒埋め込み試験を行った結果について図 19 に 示す。銅定盤上のダイヤモンドは、ダイヤモンドが破砕するほどの力を受け、それが、埋め込ま れているように見えた。樹脂パッド上のダイヤモンドは、破砕が少なく、砥粒径が初期砥粒のま ま残存している量が多い。これは、樹脂の柔らかさによりダイヤへのダメージが少ないものと考 えられ、砥粒が定盤上に埋め込まれる本来のラップ加工のイメージと比して、より遊離砥粒的 な振る舞いをしていると考えられる。すなわち、電界ラップ技術による電界印加理想条件として は、砥粒の流れや排出等に配慮する必要があると予想される。また、破砕が少ないことから、 循環利用についての検討も可能であると予想される。



図 18 定盤形状修正後の表面観察結果:銅定盤(左)、樹脂パッド定盤(右)



図 19 動的砥粒埋め込み実験観察結果:銅定盤(左)、樹脂パッド定盤(右)

3) 電界ラップに用いるダイヤモンド砥粒検討

3)-1 ダイヤモンド砥粒種の比較検討

本技術においては、絶縁性の溶媒にダイヤモンド砥粒を分散させたスラリーを用いて電界を印加し、砥粒の配置制御により加工の高効率化を実現する。ダイヤモンド砥粒は単結晶ダイヤモンドと多結晶ダイヤモンドに大別される。図 20a)に単結晶、b)に多結晶のそれぞれのダイヤモンドSEM 観察画像を示す。単結晶ダイヤモンドは表面が比較的平滑であり、対して多結晶ダイヤモンドは表面に凹凸を有する。



a)単結晶ダイヤモンド



b)多結晶ダイヤモンド

従来、ダイヤモンドラップ工程では一般的に多結晶ダイヤモンドが用いられている。これは、多結 晶ダイヤモンドの表面の凹凸形状が除去加工に適しており、加工レートが高いためである。

図 20 ダイヤモンド SEM 画像比較

ここで H23 年度の研究成果として、金属製の電界集中用台座付電界アタッチメントにて高い電 界効果が得られることを得ているが、本アタッチメントを使用するにあたり、砥粒の絶縁性が低い と放電が発生してしまうことが明らかとなっている。多結晶ダイヤモンドを使用した場合、製法上、 放電が発生するため、適用が困難であることが得られている。これより、H23年度のラボ実験においては単結晶ダイヤモンドを使用し、電界の効果を得ているが、加エレートは低かった。そこで、 単結晶ダイヤモンドに特殊な形状加工を施した砥粒を用いることとした。

3)-2 ダイヤモンド砥粒挙動観察実験

砥粒の電界効果を確認するため、電界印加時の挙動観察実験を行った。図 21 に挙動観察実 験の模式図並びに挙動観察結果を示す。ダイヤモンド砥粒をシリコーンオイルに分散させてスラ リーとし、このスラリーを 5ml 電極上に滴下し、更に上部に電極を配置した。電界はファンクション ジェネレータ(NF 回路製 WF1974)にて信号を発生させ、この信号を利得 1000 の高電圧アンプ (TREK 製 609E-6)にて昇圧し電極に供給した。信号観測には、デジタルオシロスコープ (Tektronix 製 TDS-2014B)を用いた。印加条件は挙動観察に対応可能な電界強度となるよう電 圧を設定し、印加周波数を 0.5、2Hz とした。砥粒の挙動観察には CCD カメラを用いた。

電界を印加することで、いずれの周波数に於いても砥粒は活発な挙動を示した。これより電界 印加により本ダイヤモンド砥粒において、砥粒配置制御が可能であることを確認した。0.5Hz に於 いては、砥粒が印加周波数に応じて渦流を形成する活発な往復挙動を示し、2Hz では砥粒が垂 直にクラスター状を形成した。これより、砥粒挙動の周波数依存性を確認した。



図 21 砥粒挙動観察実験結果

3)-3 砥粒径比較検討実験

次に、樹脂パッドに適した砥粒径について検討を行った。従来のダイヤモンドラップにおいて は、砥粒径に比例して、突出量が増加することから、研磨レートは増加し、表面粗さは悪化する。 本樹脂パッドにおいては、樹脂の沈み込みが発生するため、一定の粒径範囲においては、ダメ ージ層を増大させずに加エレートを向上させる効果が得られることを期待し、粒径を変え研磨比 較実験を実施した。砥粒には平均粒径 3µm、6µm の 2 種のダイヤモンド砥粒を用い、定盤回転 数 35rpm とし研磨実験を実施した。結果として小径砥粒の研磨レートに比して大径砥粒の研磨 レートは約7倍であった。一方、小径砥粒によって得られた試料の表面粗さは PV31nm 程度であ り、大径砥粒は PV81nm 程度であった。これより、ダイヤラップエ程の効率化は可能となるが、後 エ程負担を増大させることとなるため、本事業の開発目標と乖離する。また、コストの観点から 考えると、大径砥粒を使用し、本結果を得るためには、必要砥粒数の観点から 8 倍のコストを要 することとなる。

以上の結果より、平均粒径 3µm のダイヤモンド砥粒が電界ラップに適した砥粒であると結論 付けた。

4) 電界ラップ技術に最適なスラリー溶媒の検討

H24 年度の成果として、電界ラップ技術により、研磨レート無電界比 2.2 倍を得たが、スラリー 溶媒にシリコーンオイルを用いたことにより、水溶性切削液と比し研磨レートの絶対値が低いとい う課題を有していた。そこで、溶媒の最適化に関する検討を実施した。検討により、溶媒粘度条 件にマッチした流動条件を確立し、研磨界面へのスラリーの流入、排出の流れ性を最適化する 必要があることを見出した。 ここで、研磨加工中の遠心力を一定とした場合、従来の水溶性切削液とオイルベース溶媒で は、スラリーの飛散性並びに滞留性に差が生じると考えられる。ここで、本技術においては、遊離 砥粒型の加工が行われることを踏まえると、従来ラップ技術と比較して、スラリー流れが重要とな る。そこで、スラリー流動性に影響を与えるパラメーターとして、定盤回転数に着目した。遊離砥 粒加工において、定盤回転数が高速化することで、生じる遠心力は増大し、スラリーの流動性は 活性化する。これまで設定していた定盤の回転数は水溶性切削液を用いた従来の加工条件で あることから、オイル溶媒に最適な回転数を導出するため、定盤回転数を、35、40、50、60rpm と

し加工条件を実施した。図 22 に実験 結果を示す。本条件下においては 50rpm 時に急激に研磨レートが向上 し、7.3 µ m/h を得た。水溶性切削液 を用い、定盤回転数を35rpmとした場 合の研磨レート 7 µ m/h であることか ら、これを上回る研磨レートを確認し た。これより、本溶媒の本研磨装置に おける最適な回転数帯を明らかにし た。



5) 電界ラップ技術に最適な電界印加条件の検討

5)-1 最適周波数検討

シリコーンオイル中のダイヤモンド砥粒は周波数に応じた挙動を示し、電界ラップ技術において研磨レートは周波数依存性を有する。また定盤の回転スピードと砥粒が電界に応答する頻度のバランスポイントがあり、有効作用砥粒数が最も増加する周波数帯があると推察した。そこで研磨レートの周波数依存性を評価するため、研磨実験を実施した。結果として、特定の周波数において他の周波数と比して、飛躍的にレートが向上し、研磨レート 16.5µm/h を得た。

5)-2 最適印加波形検討

更なる研磨効率の向上を図り、既存技術と比して、高い優位性を有する電界ラップ技術を確立 するため、電界印加波形に関する検討を実施した。

電界ラップ技術は、研磨界面における砥粒の保持力向上により作用砥粒数を増加させることで、 研磨レートを向上させるメカニズムである。

本メカニズム並びにこれまでの実験より導き出した理想スラリーフローとして、現在採用している 1way のスラリー供給方式において、最も効率的に砥粒を作用させるためには、供給されたフレッ シュなスラリーが研磨界面に流入すると同時に電界を印加し、砥粒の保持、制御を行う。その後、 加工の進展に伴い、研磨界面における加工屑は増加し、加工が阻害される。そこで、砥粒並びに 加工屑の排出を促進し、新たにフレッシュなスラリーと代替する。

前述のスラリーフローを実現するために、特殊な任意波形を設定し、研 磨実験を実施した。実験条件として、 各条件はこれまでの実験より得られ た最適条件を採用した。

実験結果を図 23 に示す。設定した 任意波形においては、単純な繰り返 し矩形波を印加した場合と比して 3% 程度研磨レートが向上し、加エレート 17µm/h を得た。研磨レートの向上効 果としては、無電界比 47%向上であっ た。



図 23 最適印加波形検討実験結果

また、加工後の基板に対して、平坦性及び表面粗さ評価を実施した。平坦性評価には NIDEK 製料入射干渉法フラットネステスター FT900を用い、表面粗さの評価は、ZYGO 製 New Viewを 用いた。図 24に試料平坦性を、図 25 に表面粗さ評価結果をそれぞれ示す。平坦度は裏面基準 の厚さばらつきを示す指標である GBIR(Global. Backside Ideal Range)値において、概して 3 µ m 以下であった。これは、従来技術と同程度の平坦性である。また、表面粗さにおいては、従来技 術が PV35.8nm、Ra2.14nm であるのに対し、PV16nm、Ra1.48nm であり、PV 値においては昨年 度同様、従来技術の 1/2 以下となることを確認した。これらより、工程時間 32%短縮を実現し、本 研究項目における研究目標 30%短縮を達成するとともに、後工程である CMP 工程時間の半減に 寄与する電界ラップ技術を確立した。



図 24 平坦性評価結果

6)研究成果

最適砥粒並びにスラリー条件の指針を得るため、樹脂パッドの加工メカニズムについて検討を行い、本技術に用いる樹脂パッドは、その柔らかさにより砥粒であるダイヤへのダメージも少なく、 砥粒が定盤上に埋め込まれる本来のラップ加工のイメージと比較して、遊離砥粒的な振る舞い をしていることを確認した。これより、電界ラップ技術による電界印加理想条件としては、砥粒の 流れや転動、排出等に配慮する必要がある。また、破砕が少ないことから、通常ラップ工程では 行わない循環利用についての可能性が示唆された。

また、23 年度に導入したラップ装置を用いて、本技術に用いる最適なダイヤモンド砥粒とオイ ル溶媒について検討を行った。ダイヤモンド砥粒においては、平均粒径 3µm が適していることを 得た。また、スラリー溶媒に関する検討実験を実施し、オイルベース溶媒において、スラリーの流 動性に影響を与える粘度と回転数の関係性について知見を得た。これより、最適な回転数帯を 明らかにし、従来切削液を超える研磨レートが得られた。

さらに、電界印加最適条件を導出するため、周波数並びに印加波形について検討を行い、 特定の任意波形を印加することで、研磨レート 17µm/h を得た。また、その時の試料平坦性は GBIR3µm 以下、表面粗さは PV16nm であった。

これらより、研磨レートは従来技術比 47%向上、時間短縮効果として、32%短縮を実現し、目標 である 30%を達成した。さらに表面粗さが従来技術比1/2 以下を実現し、後工程である CMP 工 程時間の半減が期待される。また、本技術においては、ダイヤモンドの損耗が少ないことから、 スラリーの循環使用に適しており、低コスト化の可能性を得た。

以上の成果より、本研究項目において従来技術と比して高い優位性を有する電界ラップ技術 を開発し、研究目標を達成した。

図 25 表面粗さ 従来加工技術との比較

- 2-1-3 サブテーマ①研究成果
 - ①-1 電界アタッチメント機構の開発

23 年度はラボ実験用電界アタッチメントを試作し、そこで得られた知見をベースに 24 年度 は大型装置向け電界アタッチメントを開発し、23 年度に導入したラップ、CMP の両装置を改 造後に導入した結果、ラップ装置の研磨除去量は23%向上した。一方、CMP 装置の研磨除 去量は21%向上したが、平坦性に課題が認められた。これを受けて25 年度は、CMP 工程用 大型装置の電界アタッチメントの改造を行い、新たにセラミックス製のアタッチメントを開発す ることで、平坦度の指標である GBIR 値において 3.26 μm を達成し、昨年度の課題を解決し た。また、研究項目②-1において、電界印加により31.9 %の研磨レート向上効果を確認した。 これより、電界高速 CMP に適した電界アタッチメント機構を確立した。

①-2 樹脂製パッドを採用した定盤による電界ラップ条件の最適化

ラップ工程に樹脂パッド及び電界砥粒制御技術を導入し、ダイヤモンド砥粒種、スラリー溶 媒、電界印加条件の最適化を実施し、スラリーを効率的に研磨界面に供給するため、スラリ 一流れに配慮した任意波形を与えることにより、研磨レート 17 µm/h を得た。また、その時の 試料平坦性は GBIR 3µm 以下、表面粗さは PV 16nm という優れた結果を得た。以上より、 研磨レートは従来技術比 47%向上、時間短縮効果として、32%短縮を実現し、目標である 30%を達成した。さらに表面粗さは従来技術比1/2以下を実現し、後工程である CMP 工程時 間の半減が期待される。また、本技術においては、ダイヤモンドの損耗が少ないことから、スラ リーの循環使用に適しており、低コスト化の可能性を得た。

本研究項目において従来技術と比して高い優位性を有する電界ラップ技術を開発し、研究目標を達成した。

2-2 ②:LED デバイス向け理想表面を創出する

電界高速 CMP 技術の開発

株式会社斉藤光学製作所

高橋辰雄、煙山康晴、伊賀美里、千葉翔悟 サイチエ業株式会社

松下大作、佐々木健二、照井伸太朗

秋田県産業技術センター

久住孝幸、佐藤安弘、中村竜太、赤上陽一、池田洋

財団法人ファインセラミックスセンター

川原浩一、鈴木俊正

国立大学法人東北大学

尾澤伸樹

(ア) プロジェクト全体における本研究部門の位置づけ

LED 向けサファイア基板の革新的高効率加エシステムの開発において、CMP 工程に電界砥 粒制御技術を応用した電界高速 CMP 技術を開発し本工程の研磨効率を向上させるとともに、こ の技術に最適な化学特性を有する砥粒の開発を行う。また、これらの技術開発の方向付けのた めに、単結晶サファイアの研磨メカニズムを明らかにするためのシミュレーションを行って指針を 得る。本研究項目は②-1:電界高速 CMP 技術の開発よる研磨効率の向上、②-2:電界高速 CMP 用研磨砥粒の開発、②-3:単結晶サファイア CMP シミュレーション技術の三つの研究より 構成される。

(イ) 目的と目標

CMP 工程は研磨最終工程として試料の表面粗さをオングストロームオーダーに仕上げるこ とが求められる。従来はコロイダルシリカを用いて、化学的機械的研磨作用により高品位な試 料表面を得ている。しかし、本研磨法は研磨効率が低いという問題を有している。研磨効率は プレストンの経験則より、研磨荷重と定盤回転速度の積として知られるが、研磨荷重を増加さ せることによって、試料の表面品位は低下する。一方、定盤回転スピードの増加は、遠心力の 増大につながり、研磨スラリーが研磨領域より散逸し、研磨下におけるスラリーの配置分布が 偏在化するために表面品位が低下することが知られている。

これらの問題を解決するため、本研究では、電界により砥粒の飛散性を抑制し、低荷重・高速回転にて研磨を行うことにより、迅速且つ高品位な表面仕上げ方法として電界高速 CMP 技術を確立する。更に、砥粒の製造法である噴霧熱分解法を応用し、コロイダルシリカをベースとした最適な化学特性を有する電界高速 CMP 用の砥粒を開発する。また、新たな研磨技術の創出には、研磨メカニズムの把握が重要となることから単結晶サファイア CMP シミュレーション技術を開発し、CMP メカニズムを明らかにすることで、電界高速 CMP 技術の最適化並びに砥粒の開発の指針を得る。これらより、事業目標であるCMP工程時間 30%短縮を目指す。

2-2-1 <u>2-1:電界高速 CMP 技術の開発による研磨効率の向上</u>

1) スラリー溶媒最適化に向けたナノバブル検討

本研究では、この低い研磨効率改善のために、電界高速CMP技術の導入を検討している。こ の技術の導入によりCMP工程の加工時間を30%短縮することが最終年度の目標であるが、こ の目標の実現するために、砥粒の分散性の向上、化学作用の強化、電界効果の向上を目的と したスラリー溶媒の検討を実施した。具体的には、従来の単結晶サファイアCMPにおいては、一 般的にスラリー溶媒として水が用いられているが、この水をベースとし、ナノバブルを添加するこ とで研磨特性の向上を狙う。ここでマイクロバブル・ナノバブル発生装置は、大きく二つのタイプに 分けられる。すなわち、加圧溶解方式と気液二相流旋回方式である。本研究においては、双方 の発生方式を具備した機器を導入した。導入したナノバブル装置の模式図を図26に示す。図中、 上部側に配置されているポンプ群が加圧溶解方式、図中、下部に配置されているポンプ群が旋 回流方式で利用される。図27 に導入したナノバブル装置の概観、動作時の貯槽内の様子を示 す。左側の配管で上部に吸い込み、加圧溶解を行った後、右から放出されている様子がわかる。 また、貯槽内の水には発生動作時に同時に発生したマイクロバブルによって自濁していることが わかる。



図 26 導入ナノバブル装置模式図

装置外観 ナノバブル発生時貯槽内の様子 図 27 導入ナノバブル装置

1)-1 ナノバブル計測・評価

25年度は、定量的なマイクロバブル・ナノバブルを測定するにあたって、島津製作所製 SALD-7100 を用いた。この装置は、レーザー回折・散乱方式で、10nm~300µm の気泡の測定 をリアルタイムで行うことができる。

初めに、導入ナノバブル装置の生成方法の違いによるナノバブル測定を行った。導入気体は 大気とし、生成条件は 600を 10 分間運転することによって生成した。気液二層旋回流方式では、 ナノバブルを検出することができなかった。一方、加圧溶解方式では、平均粒径 97nm のナノバブ ルを確認できた。また、旋回流方式と加圧溶解方式を併用した場合、そのサイズは 55nm まで低 減した。以上のことから、本装置におけるナノバブルは、旋回流方式単独では能力が不足し、加 圧溶解方式によって溶解した気泡を旋回流方式で細分化させる装置であることが分かった。

次に、生成ナノバブルの寿命について検討した。この際、保存方法として、解放容器での保存 と、密閉容器での保存の2種類の方式を検討した。いずれも保存方法によらず、寿命は同程度 であった。また、生成方式での比較では、加圧溶解方式で90分経過後、ナノバブルは検出され なかったが、旋回流と加圧溶解方式の併用方式では、2時間後も存在を確認できた。したがって、 本装置でナノバブルを生成する際には2方式併用が望ましいといえる。 1)-2 導入装置におけるナノバブル水希釈スラリー適用検討

24年度は秋田県産業技術センターが有するラボベースの装置に、ナノバブル水にて希釈し たスラリーを適用し、電界によるレート向上効果の確認実験を実施した。その結果、市水で希 釈した場合は、9%のレート向上であったのに対し、ナノバブル水希釈したスラリーは 17%の向上 効果が得られ、ナノバブル水希釈の優位性が示された。

これを受けて、25年度は、本事業にて導入した研磨装置にナノバブル希釈スラリーを適用し、 大規模領域における検証実験を実施した。研磨スラリーには市販のコロイダルシリカスラリーを 用い、本スラリーを純水及びナノバブル水によってそれぞれ 75wt%、50wt%となるように秤量調 整した。ナノバブル水は、大気を導入気体とし、ナノバブル装置により純水に溶存させたものと、

市販水素ナノバブル水を用いた。研磨 条件としては、定盤回転数 35rpm とし、 研磨時間は一時間とした。 図 28 に研 磨実験結果を示す。

純水にて希釈したスラリーにおいて は、希釈率を高めるほど研磨レートは 低下し、75%希釈においては 2.35 μ m/h、50%希釈においては、1.6 μ m/h 程度であった。これは、希釈による砥 粒数の減少等に起因するものである



図 28 ナノバブル効果検証実験結果

と考える。一方、大気ナノバブル水により希釈したスラリーにおいては、同じく 75%、50%希釈時 にそれぞれ 2.4µm、1.75µmであり、純水希釈の場合と比較して、レート向上が見られた。更に、 水素ナノバブル水においては、75%希釈時に 3µm/h、50%希釈時に 2µm/h の研磨レートが得 られ、特に 75%希釈条件では、スラリーを原液使用した場合と同程度の加工レートが得られた。 これらより、生産レベルの大規模領域においても、ナノバブルによる研磨レート向上効果が得ら れることが確認でき、スラリー使用量削減の可能性が得られた。

2) 電界高速 CMP 実験

25年度に改造を施した電界アタッチメントを用 い、電界によるレート向上効果確認を目的とした 基礎研磨実験を実施した。実験条件としては、 研磨試料には単結晶サファイア基板 φ 6"、 t=1.3mmを用い、固形ワックスにて電極封入台 座部に貼り付けた。研磨スラリーは市販のコロイ ダルシリカスラリーを用い、1 ウェイ方式で供給し た。研磨パッドには不織布パッドを用い、下定盤 回転数は 35rpm と設定した。電界条件は 1.5kV/mm の電界強度にて印加し、無電界時と



の研磨レートの比較を行った。図 29 に実験結果を示す。無電界時の研磨レートは 1.97 μm/h、 電界印加時の研磨レートは 2.4 μm/hであり、電界印加により 21.8%の研磨レート向上効果を確 認した。

次に、低荷重高速回転条件下における電界効果の確認を目的とし、研磨実験を行った。試料、 副資材条件、及び電界印加条件は前述の電界効果確認研磨実験と同様とし、下定盤回転数を 60 rpm、スラリー供給量を 55 ml/min とし実験を行った。 実験結果として図 30 に研磨レートを示す。無 電界時の研磨レートは 1.92 µ m/h、電界印加時 の研磨レートは 2.35 µ m/h であり、高速回転時 においても 22.4%の研磨レートの向上を確認し た。本結果より、電界高速 CMP 条件における研 磨レート向上効果を確認した。一方、平坦性評 価結果は、GBIR 5.83 µm であり、無電界時の 平坦性と比較し、悪化する結果となった。これは、 電界の効果により研磨試料最外周部にスラリー が供給・保持され、その潤沢なスラリーにより外 図 30 電気 周部のレートが高まり、ふちだれが発生したためであると推察される。



図 30 電界高速 CMP 実験結果

上記結果より、事業目標達成を目指し、更なる研磨レートの向上及びふちだれ抑制のため、ス ラリーの効果的な配置制御を目指し、最適な電極サイズ並びに形状について検討を行った。

さらに研磨試料中心部までスラリーを引き込むことを目的とし、試料サイズよりも小径な電極を 用いて研磨実験を実施した。実験条件は上記電界高速 CMP 実験と同様とした。

実験結果として図31、図32に研磨レートと平坦性評価結果をそれぞれ示す。電界印加時の研磨レートは2.53 µm/hであり、無電界時のレートは1.92µm/hと31.7%の研磨レート向上効果を確認した。また、表面性状測定結果はGBIR3.92 µmであり、良好な平坦性が得られた。本結果並びに研究項目①-2項におけるダメージ層の半減効果により、CMP 工程必要除去量は従来の50%となることを併せると、従来技術比 62%の時間短縮が可能となり、本工程時間30%短縮目標を達成した。



図 31 電界高速 CMP 実験結果



図 32 表面性状測定結果

3)研究成果

また、CMP 装置にて、ナノバブル水にて希釈したスラリーを適用し、水素ナノバブル水希釈 スラリーにおいて、75%希釈時に 3μm/h、50%希釈時に 2μm/h の研磨レートが得られ、特に 75%希釈では、スラリーを原液使用した場合と同程度の加エレートが得られた。これらより、生 産レベルの大規模領域においても、ナノバブルによる研磨レートの向上効果が得られることを を確認でき、スラリー使用量削減の可能性を得た。

更に試作改造を施した電界アタッチメントを用い、CMP 工程における電界印加条件の最適 化に関する検討を実施した。電極形状として試料サイズよりも小径のφ145 mm 電極を用い ることで、電印加時の研磨レートは2.53 μm/h無電界時と比較して31.7%の研磨レート向上 効果を確認した。また、表面性状測定結果はGBIR3.92 μmであり、LED 向けエピレディ基板 としての仕様を満足する良好な平坦性が得られた。本結果並びに研究項目①-2項における ダメージ層の半減効果により、CMP 工程必要除去量は従来の 50%となることを併せると、従 来技術比 62%の時間短縮が可能となり、本工程時間 30%短縮目標を達成した。

2-2-2 <u>2-2:電界高速 CMP 用研磨砥粒の開発</u>

1) 噴霧熱分解法によるサファイア研磨用シリカ砥粒の合成と最適化

(一財)ファインセラミックスセンター(JFCC)が保有する噴霧熱分解装置(図 33)を用いて、サファイ ア研磨に最適なシリカ粒子合成のための原料溶液条件について検討した。



図 33 サファイア研磨用シリカ粒子合成に用いた噴霧熱分解装置の外観と模式図

本研究では、ケイ素源として金属アルコキシドおよびシリカゾルをベースに種々の出発原料溶液条件にて噴霧熱分解法によりシリカ粒子を合成した。その結果、いずれの合成条件においても図 34 に示したような球状のシリカ粒子を合成することが可能であった。図 34 の SEM 像からわかるように、合成条件によってシリカ粒子の粒子径や粒子径分布は異なっている。本研究では、シリカ粒子合成の再現性および合成速度の観点から、最適な出発原料溶液条件を決定した。



図 34 種々の出発原料溶液条件で噴霧熱分解合成したシリカ粒子の SEM 観察結果

上述の合成条件検討結果から得られた合成条件にて噴霧熱分解合成したシリカ砥粒を用い、分 散媒としてイオン交換水を用いてスラリー化した砥粒スラリーを用いてサファイア研磨試験を行った。 サファイア研磨試験は、スラリー濃度 5 wt%、不織布研磨パッド(FPK770, フジボウ愛媛製)を用いて 行い、研磨圧力 314g cm⁻²、定盤回転数 150 rpm、試料回転数 150 rpm(順方向)、スラリー供給速度 100mLmin⁻¹にて行った。研磨定盤は、上定盤が 150 mm Φ、下定盤が 300mm Φ で、上定盤と下定盤 は同じ方向に回転した。研磨には、2 インチのサファイア基板を用い、3 枚を同時に研磨機にセットし た。研磨時間は 30 min とし、研磨前後のサファイア試料の重量変化から研磨速度を見積もり、平均 値を求めてサファイア研磨速度とした。図 35 に用いた試験機および試験条件の概略図を示す。 図 36 は、噴霧熱分解合成シリカ粒子を用いたサファイア研磨試験の結果で、シリカ粒子へのカチオ ン添加、粒子の熱処理、分散媒への添加物添加が及ぼすサファイア研磨速度への影響を調べた結果である。図 36 からわかるように、噴霧熱分解合成シリカ粒子を用いて適切な条件でスラリー化する ことで、サファイア研磨特性は大きく変化し、最大で5倍程度の研磨速度の差が生じることがわかった。 以上のように、本研究結果から、シリカ砥粒の最適なスラリー化条件が得られた。



2)シリカ系複合砥粒の検討

電界高速 CMP に適した砥粒を開発する目的で、優れたサファイア研磨特性を有するシリカと、誘電率が大きな材料との複合化を検討した。表 1 は種々の材料の誘電率をまとめたものである。本研究では、噴霧熱分解法で複合化可能で、かつ比較的大きな誘電率を有する TiO₂に注目して TiO₂-SiO₂ 複合砥粒の可能性について検討を行った。なお、合成した TiO₂-SiO₂ 複合粒子の組成は、0~ 100mol%SiO₂で、表 2 に詳細を示す。

材料	誘電率	備考
SiO ₂	3.8	
Al_2O_3	9.4	
TiO ₂	48	アナターゼ型
H ₂ O	88	
TiO ₂	114	ルチル型
SrTiO ₃	332	常誘電体
BaTiO₃	1200	強誘電体

表1 種々の材料の誘電率のまとめ

表 2 噴霧熱分解合成法で合成した TiO₂−SiO₂複合粒 子の複合割合

試料名	TiO ₂ 含有量/mol%	SiO ₂ 含有量/mol%
TiO ₂	100	0
TS73	70	30
TS55	50	50
TS37	30	70
SiO ₂	0	100

図 37 は噴霧熱分解法で合成した TiO₂-50 mol%SiO₂ 複合粒子の断面 TEM 観察結果で、明視野像、 回折パターン、暗視野像を示したものである。明視野像の観察結果から、合成した TiO₂-SiO₂ 複合粒 子はほぼ中実粒子であることがわかる。また、回折パターンでは、微細な回折斑点からなるリング状 のパターンと、ハローパターンから構成されていることがわかり、TiO₂-SiO₂ 複合粒子は微細な結晶相 と非晶質相で形成されていることが分かった。図 37 に示した暗視野像は、微細な回折斑点から成る リング状パターンの一部に対物絞りを入れることによって結像したものである。暗視野像では微細な 結晶相が明るいコントラストとして観察されている。明るいコントラスは、結晶相の一次粒子の大きさ に対応する。

図 38 は TiO₂-SiO₂ 複合粒子の断面薄膜試料を用いて TEM/EDX 分析を行った結果である。図 38 から、合成した粒子中では Si および Ti は偏在しておらず、いずれも粒子中に均一に分布していること がわかる。以上の結果から、噴霧熱分解合成した TiO₂-SiO₂ 複合粒子は、結晶質 TiO₂ 相と、非晶質 SiO₂相が均一に分散した分散型複合粒子であることが明らかとなった。



図 37 TiO₂-SiO₂ 複合粒子の断面 TEM 観 察による明視野像、回折パターンおよび暗 視野像の観察結果

以上のように、噴霧熱分解法で、誘電率が比較 的大きな TiO₂とサファイア研磨特性に優れた SiO₂ を複合化した分散型複合粒子を合成することが可 能であることがわかった。そこで、種々の複合割合 を有する TiO₂-SiO₂ 複合粒子を用いたサファイア 研磨特性を評価した。ここでは、複合化割合によ る TiO₂-SiO₂ 複合粒子のサファイア研磨特性を比 較するために、電界を印加せずにサファイア研磨 を行った。また、研磨にはこれまでに得られた最適 な熱処理等を行った砥粒スラリーを用いた。

図 39 は、種々の複合割合の TiO₂-SiO₂ 複合粒 子を用いてサファイア研磨を行った場合の研磨速 度を、複合粒子中の SiO₂ の複合割合に対してプ ロットしたものである。図 39 から、サファイア研磨 速度は SiO₂ 複合割合の増加にともない研磨速度 が向上しており、SiO₂100%の砥粒の場合に最も高 い研磨速度が得られている。図 39 は、TiO₂-SiO₂ 複合粒子を用いたサファイア研磨速度は、 SiO₂100%、すなわちシリカ砥粒を用いたときに最も 高い研磨速度が得られていることがわかる。この ことは、複合粒子とすることで、研磨特性はシリカ 粒子よりも低下することを示している。

噴霧熱分解合成した TiO2-SiO2 複合粒子の微



図 38 噴霧熱分解合成した TiO₂-SiO₂ 複合粒子の断 面 TEM/EDX 分析結果



図 39 TiO₂-SiO₂ 複合粒子を用いたサファイア研磨 速度の複合割合依存性



図 40 複合砥粒の微細構造の模式図

細組織のキャラクタリゼーション結果から、ここで合成した TiO₂-SiO₂ 複合粒子は TiO₂相と SiO₂相が 微細に分散した分散型の複合粒子であることが明らかとなった。分散型複合粒子では研磨場におい てサファイアと接する材料が SiO₂ だけでなく、TiO₂ が接することになる。一方、TiO₂ 粒子のサファイア 研磨特性は低いことが分かった。このことが TiO₂-SiO₂ 分散型複合粒子を用いるとサファイア研磨速 度が低下する原因であると考えられる。ところで、複合粒子の複合形態は、噴霧熱分解合成 TiO₂-SiO₂ 複合粒子で認められたような分散型だけでなく、図 40 に示したように、いわゆるコア・シェル 構造を有する被覆型の複合形態がある。電界に対する高い応答性を有する材料と、優れたサファイ ア研磨特性を有する材料を用いた複合粒子を合成する場合、コアの部分に電界応答性に優れた材

料、シェルの部分にサファイア研磨特性に優れた材料を用いることで、優れた電界応答性およびサフ ァイア研磨特性を有する複合砥粒を実現することが可能であると考えられる。ただし、上述してきたよ うに噴霧熱分解合成法では、被覆型ではなく分散型の複合粒子が合成されることが分かった。そこで、 本研究ではコアとなる材料を噴霧熱分解法で合成し、その後ゾルゲル法を応用してシェルとなる材料 を被覆することを試みた。

3) 被覆型複合砥粒の合成とサファイア研磨特性

本研究では、コア材料には高い誘電率を有する常誘電体である SrTiO₃ を用いることとし、噴霧熱 分解法で合成した。その後、合成した SrTiO₃ 粒子を用いて、ゾルゲル法によって、被覆型複合砥粒 の合成を行った。





図 41 合成した SrTiO₃ 粒子および複合粒子の XRD 測定結果 図 42 SrTiO₃粒子および SiO₂被覆 SrTiO₃粒子の SEM 像

図 41 は噴霧熱分解法によって合成した SrTiO₃とSiO₂被覆 SrTiO₃粒子の XRD 測定の結果を示したものである。被覆前後で XRD パターンのピーク位置に大きな変化は確認できない。しかし、20-30°の低角側がブロードに膨らんでいることから SiO₂が被覆されていると考えられる。

図42に噴霧熱分解法で合成した SrTiO₃粒子、および SiO₂被覆 SrTiO₃粒子の SEM 像を示す。SiO₂ を被覆した粒子も、噴霧熱分解法で合成された球状の SrTiO₃粒子の形状を維持した球状粒子であ ることがわかる。SiO₂ 被覆した粒子の平均粒子径は約 1.5 μ m であり、SrTiO₃粒子よりも約 1.5 倍程 度大きい。また、粒子が二層になっている部分も観察された(図 42 中の矢印)。本研究で合成した SiO₂ 被覆 SrTiO₃粒子は、SrTiO₃粒子上に約 200 nm 程度 SiO₂を被覆するための合成条件で行った。 SEM 観察の結果、約 150 nm 程度被覆されていることから、予想した被覆量とほぼ同程度 SrTiO₃粒 子に被覆されていることがわかった。

なお、本研究で検討した、コア材料(SrTiO₃)にゾルゲル法によってシェル材料(SiO₂)を被覆する方法では、コア材料を他の材料に変えることが可能であるため、BaTiO₃や TiO₂ などへの応用も可能である。

合成した被覆型複合砥粒を用いて、研磨特性に ついて検討を行った。図 43 に合成した複合砥粒を 用いてサファイア研磨を行った場合の研磨速度を示 す。なお、図 43 には比較のために、SrTiO₃粒子のみ を用いた場合、および SiO₂粒子のみを用いた場合も 同時に示している。SrTiO₃粒子でサファイアを研磨 すると 0.03 μ m h⁻¹ 程度の研磨速度に対し、SiO₂ で 被覆した SrTiO₃粒子で研磨すると 0.52 μ m h⁻¹ の研 磨速度であり、約 17 倍増加した。この結果は、ゾル ゲル法にて SrTiO₃に SiO₂が適切に被覆されている こと、また複合粒子では研磨場において SiO₂とサフ



図 43 種々の砥粒の研磨速度

ァイア基板が接触することから CMP が発現していることを示しており、目的の微細構造を有する SiO₂ 被覆 SrTiO3 砥粒が合成されていたことを示している。

4) 被覆型複合砥粒の電界応答性観察

図 44 は、SiO₂ 砥粒と SiO₂ 被覆 SrTiO₃ 砥粒に空気 中で電界を印加した場合の電界応答性を観察した結 果である。SiO₂ 砥粒の電界に対する応答はほとんど認 められないのに対して、SiO₂ 被覆 SrTiO₃ 砥粒は、小さ い粒子だけでなく、比較的大きな粒子も電極間を移動 する様子が確認された。

次に、水溶媒を用いたスラリーでの外部印可電界 応答性観察実験を行った。その結果、空気中同様、



図 44 空気中での砥粒の電界応答性

SiO₂ 被覆 SrTiO₃ 砥粒の電界応答性が認められた。一方、誘電率が水よりわずかに大きい TiO₂(ルチル)粒子を用いた場合、TiO₂粒子は電極間を動く速度が SiO₂ 被覆 SrTiO₃ 砥粒に比べ遅く、誘電率の 差で電界の応答性が異なることが示唆された。すなわち、高い電界応答性を実現するためには、高 い誘電率を持つ材料をコア材料として用いることが有効であることが分かった。以上の結果から、電 界に対する高い応答性を有し、かつ SiO₂ と同程度のサファイア CMP 特性を持った複合粒子として、SiO₂ 被覆 SrTiO₃ 複合砥粒子を合成することができた。

5) 開発砥粒を用いた基礎研磨特性評価

市販コロイダルシリカスラリーと比較して、開発砥粒を用いた場合により大きな電界印可効果が得られるのかを調べるために、開発砥粒(SiO₂ 被覆 SrTiO₃)と市販のコロイダルシリカスラリーを用いて、 同じ研磨機を使用し、同じ条件下においてサファイア研磨特性を比較した。研磨試験には、開発した SiO₂ 被覆 SrTiO₃ 複合粒子を用いた5 wt%のスラリーを使用し、一部比較のために市販のコロイダルシ リカスラリーを用いた。研磨条件は、上定盤および下定盤の回転速度を 100 rpm(順方向)とし、研磨 圧力は 200 g cm⁻² とした。また、砥粒スラリーの供給速度は 5 mL min⁻¹ とした。

開発砥粒を用いたサファイア研磨における電界印加効果を調べた結果を図 45 に示す。開発砥粒 を用いた場合、電界を印加しながらサファイア研磨を行った場合、無電界と比較して、サファイア研磨 速度が約 27%増加することが分かった。一方、比較として行った市販コロイダルシリカスラリー (MS-2000)では、無電界と比較して電界印可条件下でサファイア研磨を行った場合、研磨速度は約 11%向上した。この研磨速度向上効果は、従来知られているように、溶媒に対して電界が作用し、研 磨場への砥粒スラリーの吸引・排出効果であると考えられる。したがって、開発砥粒(SiO₂ 被覆

SrTiO₃)を用いた砥粒スラリーを用いた電 界 CMP では、外部印可電界によるスラリ ーの吸引・排出効果に加えて、スラリー中 の砥粒に対して研磨場における砥粒の配 置制御が重畳することで高い電界印可効 果が得られたものと考えられる。その結果、 開発砥粒(SiO₂ 被覆 SrTiO₃)を用いた場合、 市販コロイダルシリカスラリー(MS-2000)を 用いた場合に得られる電界印加効果と比 較して 16%高い電界印可効果が得られた ものと考えられる。したがって、本研究で 開発した砥粒は、電界 CMP に適した高い 電界応答性と優れたサファイア研磨特性 を併せ持つことが示された。



図 45 開発砥粒および市販スラリーによるサファイア研磨速 度に及ぼす電解印加効果

4) 研究成果

電界に対して高い応答性と、高いサファイア研磨特性を有する電界高速 CMPに最適な砥粒 の開発を目的として電解高速 CMP 用研磨砥粒の開発検討を行った。検討は、サファイア研磨 特性に優れた噴霧熱分解合成シリカ砥粒の最適化と、電界応答性を向上するための、高誘電 率材料との複合化について行った。その結果、噴霧熱分解合成シリカ砥粒への適切な熱処理 条件検討、スラリー溶媒への適切な添加剤の検討、および粒子径の最適化によって、市販のコ ロイダルシリカスラリーに匹敵する高い研磨特性が得られることが分かった。また、外部印加電 界に対して高い応答性と、サファイアとの高い CMP 特性の二つの特性を両立するために、被覆 型の微細構造を有する複合粒子に着目した。その結果、開発砥粒スラリーは市販のコロイダル シリカスラリーに比べ、外部印加電界に対して高い応答性を示すことがわかった。開発した砥 粒スラリーを用いて外部印加電界中でのサファイア研磨試験を行った結果、従来のコロイダル シリカスラリーと比較して研磨速度に及ぼす電界効果が 16%向上することが分かった。

2-2-3 ②-3:単結晶サファイア CMP シミュレーション技術の開発

1)研究のねらい

パワー半導体材料・青色発光材料である窒化ガリウムの高品質化のためには、成長基板と なる単結晶サファイア(α-Al₂O₃)の原子レベルでの平坦化が必須である。そこで現在、サファイ ア基板の平坦化には、コロイダルシリカ(SiO₂)砥粒を水に溶かしたスラリーによる化学機械研 磨(CMP)技術が用いられている。しかし、コロイダルシリカによるサファイア基板の研磨加工に は長い時間がかかり、高コストの原因となっている。そこで、短い時間で平坦及び無欠陥なサフ ァイア基板を得るためには、研磨砥粒の性能を向上させる必要がある。そのため、サファイア基 板に対して高い研磨性能を有する新規砥粒を理論的に設計することが強く求められている。こ こで、コロイダルシリカより高い研磨性能を持つ砥粒を設計するためには、化学反応と機械的 研磨が複雑に絡み合ったシリカ砥粒によるサファイア基板の CMP プロセスを解明し、新規砥粒 の理論的な設計指針を決定する必要がある。そこで本研究項目では、量子分子動力学法、第 ー原理計算を融合した単結晶サファイア CMP シミュレータを開発し、シリカ砥粒によるサファイ ア基板の研磨プロセスを解明する。そして、得られた知見より理論的な設計指針を提案し、高 効率の研磨技術及び高い研磨性能を示す新規研磨砥粒の開発に貢献する。

2) Tight-binding 量子分子動力学法に基づくシリカ砥粒による単結晶サファイア表面の

研磨シミュレーション

東北大学久保研究室が開発した Tight-binding 量子分子動力学法計算コードを用いて、シリ カ砥粒による単結晶サファイア基板の CMP プロセスを解明可能な研磨シミュレータの開発し、 シリカ砥粒による単結晶サファイア表面の研磨プロセスにおける化学反応ダイナミクスを検討し た。ここで、平坦な単結晶サファイア基板よりも、ステップといった欠陥を含むサファイア基板の 方が研磨されやすいということが実験的にわかっている。そこで、α-Al₂O₃ 表面の CMP プロセ スにおいて表面形状の影響を考慮可能な研磨シミュレータを開発するため、平坦な表面モデル (図 46(a))及びステップを有する表面モデル(図 47(a))を用いて SiO₂ 砥粒による研磨シミュレーシ ョンを行った。ここでは、α-Al₂O₃ 表面は最安定面である(0001)面を用い、シリカ砥粒としてアモ ルファス構造の SiO₂ クラスターモデルを採用した。また、研磨は水環境で行われていることから サファイア基板及びシリカ砥粒表面上は水和されていると考え、α-Al₂O₃ 表面上の 3 配位の Al 原子に OH 基を終端させ、表面下部の O 原子上に OH 基と同数の H 原子を配置した。また、



図 46 水和した平坦な α-Al₂O₃(0001)面におけるアモルファスのシリカクラスターによる CMP シミュレーション [(a) 0.0 ps、(b) 55.0 ps]



図 47 水和したステップを有するα-Al₂O₃(0001)面におけるアモルファスのシリカクラスターによる CMP シミュレーション [(a) 0.0 ps、(b) 55.0 ps]



図 48 Tight-Binding 量子分子動力学による CMP シミュレーションで確認された SiO₂ 砥粒による ステップを有する α - Al₂O₃(0001)面の CMP プロセスの模式図

[(a) 0.0 ps, (b) 15.1 ps, (c) 16.0 ps, (d) 34.4 ps, (e) 42.6 ps, (f) 54.2 ps]

研磨プロセスを表すため SiO₂クラスターの上部の原子に一定の荷重 0.6 GPa を加えながら、表面水平方向に 25 m/s の速度で強制移動させた。平坦な α -Al₂O₃(0001)面の研磨シミュレーションの結果、SiO₂ 砥粒表面の OH 基と α -Al₂O₃(0001)面上の OH 基が反発することで砥粒が表面上を滑る様子が見られ、 α -Al₂O₃ は研磨されなかった(図 46(b))。次に、ステップを有する α -Al₂O₃(0001)面の SiO₂ 砥粒による研磨シミュレーションを行った結果、SiO₂ クラスターの Si 原子と α -Al₂O₃(0001)面のステップ部分に露出した O 原子で結合の生成し、さらに砥粒が移動すると、砥粒と結合した α -Al₂O₃(0001)面の AI 原子が表面から剥ぎ取られることで、AI 原子が α -Al₂O₃(0001)面から除去される様子が明らかにされた(図 47 (b))。以上の α -Al₂O₃(0001)面の研磨シミュレーションの結果より、平坦な α -Al₂O₃(0001)面よりも、ステップのある α -Al₂O₃(0001)面の方が研磨されやすいことを確認した。次に、シリカ砥粒によるサファイア基板の CMP プロセスの詳細なメカニズムを解明するために、研磨が起きたステップを有する α -Al₂O₃(0001)面の 研磨プロセスを検討した(**図 48**)。初期構造では、研磨シミュレーションにお

いて着目したステッ プ端の Al*原子は 4 配位となっている。 ここで、砥粒の押し 込みによって SiO₂ 砥粒がステップ面に 接近すると、砥粒の Si 原子とステップ面 に露出した0原子と 結合した。さらに、 砥粒に摩擦を加え ると、15.1 ps で、ス テップにおける AI-O-AI 結合が水 分子との化学反応 によって、AI-OH HO-AI の形に解離 した(図 48(b))。さら に同時に、着目した AI 原子と表面に露 出した O 原子間の AI-O 結合も解離し、 着目した AI 原子は 3 配位となった。さら に研磨が進んだ 16.0 ps では、サファ イ基板上の AI 原子



図 49 Tight-Binding 量子分子動力学による CMP シミュレーションで確認された(a) SiO₂砥粒とα-Al₂O₃(0001)面及び(b) α-Al₂O₃(0001)面と水分子間の 化学反応における Atomic Bond Population

と SiO₂ 砥粒の O 原子が反応することで、AI-O-Si 結合が生成し、着目した AI 原子は 4 配位と なった(図 48(c))。ここで図 94(c)では、着目した AI 原子を除いて、図 48(b)で示した原子よりも-つ奥に配列した原子を表示している。そして、再び水分子との化学反応によりバルク側の AI-O 結合が解離し、着目した AI 原子は 3 配位となった(図 48(d))。さらに、サファイア基板上の AI 原子に終端した OH 基と砥粒表面の OH 基が縮合して水分子を生成し、2 つ目の AI-O-Si 結合 が生成された(図 48(e))。最後に、水分子との化学反応によって、AI 原子とサファイア基板側の O 原子との AI-O 結合が解離した(図 48(f))。以上より、SiO₂砥粒及び水分子とサファイア基板間 の化学反応によって、AI 原子が砥粒と結合する形でα-AI₂O₃(0001)面から脱離するという、シリ カ砥粒によるサファイア基板の CMP プロセスを明らかにした。

次に、サファイア基板の研磨プロセスにおける AI-O 結合解離の化学反応ダイナミクスをより 詳細に調べるために、図 48(a)から(b)に示した研磨プロセスにおける Atomic bond population (ABP)を計算した(**図 49**)。図 47 で示した研磨シミュレーションにおいて、SiO₂ 砥粒が α -Al₂O₃(0001)面のステップ部分に近づいた 14.0 ps のときに 、O_a-Si 結合の ABP は増加した。 また同時に、AI^{*}-O_a、Al_a-O_a 結合の ABP は減少した(図 49(a))。これは、砥粒の Si 原子と α -Al₂O₃(0001)面の O_a 原子との相互作用によって、AI^{*}-O_a、Al_a-O_a 結合が弱まったことを示す。そ の後、AI^{*}-O_a、Al_a-O_a 結合の ABP は 15.1 ps で減少し、同時に H_a-O_a、Al_a-O_b 結合の ABP は増 加した(図 49(b))。以上の結果から、砥粒との化学反応により弱まった AI^{*}-O_a、Al_a-O_a 結合が水 分子との化学反応によって解離し、AI-O_aH_a、HO_b-Al_a結合が生成したことが示された。

この Tight-binding 量子分子動力学法に基づく単結晶サファイア表面の研磨シミュレーション より、α-Al₂O₃基板の CMP プロセスはシリカ砥粒との化学的作用によりα-Al₂O₃表面の Al-O 結合が弱まり、弱まった Al-O 結合が水分子との化学反応によって解離されることで進行するこ とが明らかにされた。つまり、高効率のサファイア基板の研磨プロセスのためには、AI-O 結合を より弱め、水分子による解離反応を促進するように、シリカ砥粒の化学反応性を向上させること が有効であると予測される。また、高精度に電子状態を描写できる第一原理計算を用いた、サ ファイア基板の研磨プロセスにおける化学反応の解析結果でも、砥粒の押し込みにより弱まっ た AI-O 結合を、水分子が解離する CMP プロセスを示している。このように、我々が開発した Tight-binding 量子分子動力学法に基づく単結晶サファイア基板の研磨シミュレータは、高精度 に化学反応ダイナミクスを解析可能な研磨シミュレーションが可能であることが示された。

3) Tight-binding 量子分子動力学法に基づく電界 CMP シミュレーション

電界を印加しながら化学機械研磨す る電界 CMP によって、シリカ砥粒による 単結晶サファイア基板の研磨速度を向 上させる試みが行われている。そこで本 研究では、電界がシリカ砥粒に α -Al₂O₃ 表面よる単結晶サファイア表面の研磨 性能に与える影響を明らかにするため、 開発した Tight-binding 量子分子動力学 法に基づく CMP シミュレータを電界の効 果を考慮できるように改良し、電界がα -Al,O3 表面の CMP プロセスに与える影 響をついて検討した。シミュレーションモ デルを図 50 に示す。ここでは、平坦なα -Al₂O₃ (0001)面を用い、SiO, クラスター の上部の原子に一定の荷重 0.6 GPa を 加えながら 50 m/s の速度で強制移動さ せた。また、図のように表面垂直方向に



図 50 電界下を印加した場合の平坦なα -Al₂O₃(0001)面におけるアモルファスの シリカクラスターによる CMP シミュレーションモデル

1.0 kV/mm の大きさの電界を加えた。次に、電界を加えたときの、α-Al₂O₃表面構造の変化を 解析した結果、表面第1層のAI原子層は正の電荷を持つため電界順方向に0.035 Å移動し、 表面第2層の0原子層は負の電荷を持つため電界逆方向に0.045 Å移動することを確認し た。また、表面第3原子層以降も同様に、0原子層は電界逆方向、AI原子層は順方向に移動 している。つまり表面からバルク側への電界を印加することで、0原子はバルク内部から表面 方向へ移動するが、AI原子はバルク内部から表面領域へ移動することが明らかになった。ここ で、我々が解明したSiO₂砥粒による単結晶サファイア表面のCMPメカニズムから、SiO₂砥粒に よるサファイアへの押し込み過程において、砥粒のSi原子と表面の0原子が反応することで AI-O結合が伸長し、またH₂Oの化学反応がAI-O結合を解離することを明らかにしている。本 研究で得られた電界によるサファイア表面の構造変化を、単結晶サファイア表面の研磨プロセ スに基づいて検討すると、電界の印加には、SiO₂砥粒と化学反応しやすいように単結晶サファ イア表面の0原子を露出させることで、SiO₂砥粒の単結晶サファイア表面に対する研磨性能が 向上すると考えられる。

4) 高い研磨性能を有する単結晶サファイア基板用研磨砥粒の理論的提案

原子レベルで良質な平坦性を実現する、単結晶サファイア基板に対して高い研磨性能を有 する新規砥粒を開発するため、我々はシリカ砥粒に元素を添加することでシリカ砥粒の化学反 応性を変化させることができると考え、第一原理計算を用いてα-Al₂O₃ 表面への元素を添加し た SiO₂ 砥粒の押し込み計算を行い、それら砥粒の単結晶サファイア基板に対する研磨性能を 検討した。図 51 に本計算に用いた普通の SiO₂ 砥粒、N 添加 SiO₂ 砥粒、Al 添加 SiO₂ 砥粒のク ラスターモデルを示す。そして、図 52 に示す α-Al₂O₃(0001) 面のステップ部 分へ SiO, 砥粒、N 添加 SiO, 砥粒、AI 添加 SiO, 砥粒を押し込み、構造最適 化計算を行った。SiO2砥粒を押し込ん だ距離に対する、ステップ部分の AI-O 結合長の変化を図 53 に示す。SiO, 砥 粒による押し込みの結果、押し込んだ 距離が 1.49 Åのときに図 50(b)に示 す結合長が 1.76 Åから 2.24 Åにま で伸長する様子が明らかにされた。一 方、N原子を添加した SiO, 砥粒による 押し込みの結果、押し込んだ距離が 1.31 Åのときに 1.76 Åから 2.27 Å にまで大きく伸長した。また、AI 原子を 添加した SiO, 砥粒による押し込みの 結果、押し込んだ距離が 1.61 Åのと きに 1.76 Åから 2.16 Åまで伸長した。 これらは、押し込み過程において SiO。 との化学反応によって AI-O 結合が弱 まり、AI-O 結合長が伸張したことを示 している。また、N 添加 SiO, 砥粒によ る押し込み過程では、SiO。砥粒と比較 して少ない押し込み量に対して、ほぼ 同じ長さまで AI-O 結合が伸長したが、 AI 添加 SiO, 砥粒による押し込み過程 では、SiO, 砥粒よりも AI-O 結合が伸 長しなかった。つまり、砥粒の押し込 みによる AI-O 結合長の変化の序列 は N 添加 SiO, 砥粒 > SiO, 砥粒 > AI 添加 SiO, 砥粒であり、単結晶サファイ ア基板への化学反応活性は N 添加



図 51 第一原理計算によるサファイア基板の研磨シミュレ ーションに用いた SiO₂ クラスターモデル [(a) SiO₂ 砥粒、 (b) N 添加 SiO₂ 砥粒、(c) AI 添加 SiO₂ 砥粒]



図 52 水和したステップ構造を有するα-Al₂O₃(0001)面の SiO₂クラスターによる 研磨シミュレーションモデル [(a) 側面図、(b)上面図]



図 53 α - Al₂O₃(0001)面 への SiO₂ クラスター、N 添加 SiO₂ クラス ター、Al 添加 SiO₂ クラスターの押し込みによる Al-O 結合長の変化

2-2-4 サブテーマ②研究成果

2-1 電界高速 CMP 技術の開発による研磨効率の向上

CMP 装置にナノバブル水にて希釈したスラリーを適用し、水素ナノバブル水希釈スラリー において、75 %希釈時に 3 µm/h の研磨レートが得られ、スラリーを原液使用した場合と同 程度の加工レートを得た。これらより、スラリー使用量削減の可能性が得られた。

更に試作改造を施した電界アタッチメントを用い、CMP 工程における電界印加条件の最適 化に関する検討を実施した。試料サイズよりも小径な電極を用いることで、電印加時の研磨 レートは 2.53 µm/h 無電界時と比較して 31.7%の研磨レート向上効果を確認した。また、表 面性状測定結果は GBIR 3.92 µmであり、LED 向けエピレディ基板としての仕様を満足する 良好な平坦性が得られた。本結果並びに研究項目①-2項におけるダメージ層の半減効果に より、CMP 工程必要除去量は従来の 50 %となることを併せると、従来技術比 62 %の時間短縮 が可能となり、本工程時間 30 %短縮目標を達成した。

②-2 電界高速 CMP 用研磨砥粒の開発

電界に対して高い応答性と、高いサファイア研磨特性を有する電界高速 CMP に最適な砥 粒の開発を目的として電解高速 CMP 用研磨砥粒の開発検討を行った。検討は、サファイア 研磨特性に優れた噴霧熱分解合成シリカ砥粒の最適化と、電界応答性を向上するための、 高誘電率材料との複合化について行った。その結果、噴霧熱分解合成シリカ砥粒への適切 な熱処理条件検討、スラリー溶媒への適切な添加剤の検討、および粒子径の最適化によっ て、市販のコロイダルシリカスラリーに匹敵する高い研磨特性が得られることが分かった。また、 外部印加電界に対して高い応答性と、サファイアとの高い CMP 特性の二つの特性を両立す るために、被覆型の微細構造を有する複合粒子に着目した。その結果、開発砥粒スラリーは 市販のコロイダルシリカスラリーに比べ、外部印加電界に対して高い応答性を示すことがわか った。開発した砥粒スラリーを用いて外部印加電界中でのサファイア研磨試験を行った結果、 従来のコロイダルシリカスラリーと比較して研磨速度に及ぼす電界効果が16%向上することが 分かった。

②-3 単結晶サファイア CMP シミュレーション技術の開発

原子レベルで良質な平坦性を実現する単結晶サファイア基板の研磨技術の開発を支援 するため、本年度は量子分子動力学法に基づくCMPシミュレータを開発し、α-Al₂O₃(0001) 表面のSiO,砥粒による研磨シミュレーションを行った。その結果、α-Al,O₃(0001)表面とSiO, 砥粒間の化学反応によってAl-O結合が弱められ、さらに弱められたAl-O結合が水の化学反 応によって解離することで、単結晶サファイア基板の研磨が進行することを明らかにした。さ らに、電界の効果を考慮可能な量子分子動力学シミュレータを開発し、電界がα-Al₂O₃(000 1)表面のSiO,砥粒による研磨プロセスに与える影響を検討した。その結果、電界の印加には、 SiO。砥粒と化学反応しやすいように単結晶サファイア表面のO原子を露出させることで、SiO。 砥粒の単結晶サファイア表面に対する研磨性能を向上させる役割があることが示唆された。 また、我々が明らかにしたα-ΑΙ,Ο。(0001)表面の研磨メカニズムより、新規砥粒の設計指針 として、砥粒による押し込み過程において、よりAl-O結合を弱めるように、砥粒にサファイア 基板に対する高い化学反応活性を付与するエ夫が重要であることを提案した。そこで、異種 元素を添加したSiO。砥粒の研磨性能について第一原理計算を用いて検討した。その結果、 普通のSiO,砥粒よりもN添加SiO,砥粒の方が、押し込み過程においてα-Al,O。(0001)表面の AI-O結合を大きく伸長させることが明らかにされた。つまり、N原子添加によってSiO,砥粒の 化学的作用が強まり、CMPプロセスが促進されることを提案した。

実験的に、NH₃分子の添加によって、コロイダルシリカスラリーの単結晶サファイア基板に 対する研磨性能が向上することが示されている。そこで、今後の課題として、東北大学で開 発した量子分子動力学法に基づく研磨シミュレータを活用して、NH₃が研磨性能を向上させるメカニズムを解明する。そして、得られたシミュレーション結果を上記②-1,2項の研究にフィードバックすることで、高効率の単結晶サファイア基板の平坦化を実現する研磨技術及び砥粒材料の開発に貢献する。

第3章 全体総括

3-1 全体総括

①-1 電界アタッチメント機構の開発

23 年度はラボ実験用電界アタッチメントを試作し、そこで得られた知見をベースに 24 年度 は大型装置向け電界アタッチメントを開発し、23 年度に導入したラップ、CMP の両装置を改 造後に導入した結果、ラップ装置の研磨除去量は23%向上した。一方、CMP 装置の研磨除 去量は21%向上したが、平坦性に課題が認められた。これを受けて 25 年度は、CMP 工程用 大型装置の電界アタッチメントの改造を行い、新たにセラミックス製のアタッチメントを開発す ることで、平坦度の指標である GBIR 値において 3.26 μm を達成し、昨年度の課題を解決し た。また、研究項目②-1において、電界印加により 31.9 %の研磨レート向上効果を確認した。 これより、電界高速 CMP に適した電界アタッチメント機構を確立した。

①-2 樹脂製パッドを採用した定盤による電界ラップ条件の最適化

ラップ工程に樹脂パッド及び電界砥粒制御技術を導入し、ダイヤモンド砥粒種、スラリー溶 媒、電界印加条件の最適化を実施し、スラリーを効率的に研磨界面に供給するため、スラリ 一流れに配慮した任意波形を与えることにより、研磨レート 17 µm/h を得た。また、その時の 試料平坦性は GBIR 3µm 以下、表面粗さは PV 16nm という優れた結果を得た。以上より、 研磨レートは従来技術比 47%向上、時間短縮効果として、32%短縮を実現し、目標である 30%を達成した。さらに表面粗さは従来技術比1/2以下を実現し、後工程である CMP 工程時 間の半減が期待される。また、本技術においては、ダイヤモンドの損耗が少ないことから、スラ リーの循環使用に適しており、低コスト化の可能性を得た。

本研究項目において従来技術と比して高い優位性を有する電界ラップ技術を開発し、研究 目標を達成した。

2-1 電界高速 CMP 技術の開発による研磨効率の向上

CMP 装置にナノバブル水にて希釈したスラリーを適用し、水素ナノバブル水希釈スラリー において、75%希釈時に3 µm/h、50%希釈時に2 µm/hの研磨レートが得られ、特に75% 希釈条件では、スラリーを原液使用した場合と同程度の加工レートを得た。これらより、スラリ 一使用量削減の可能性が得られた。

更に試作改造を施した電界アタッチメントを用い、CMP 工程における電界印加条件の最適 化に関する検討を実施した。電極形状として試料サイズよりも小径な電極を用いることで、電 印加時の研磨レートは 2.53 µm/h 無電界時と比較して 31.7%の研磨レート向上効果を確認 した。また、表面性状測定結果は GBIR 3.92 µm であり、LED 向けエピレディ基板としての 仕様を満足する良好な平坦性が得られた。本結果並びに研究項目①-2項におけるダメージ 層の半減効果により、CMP 工程必要除去量は従来の 50 %となることを併せると、従来技術 比 62 %の時間短縮が可能となり、本工程時間 30 %短縮目標を達成した。

②-2 電界高速 CMP 用研磨砥粒の開発

電界に対して高い応答性と、高いサファイア研磨特性を有する電界高速 CMP に最適な砥 粒の開発を目的として電解高速 CMP 用研磨砥粒の開発検討を行った。検討は、サファイア 研磨特性に優れた噴霧熱分解合成シリカ砥粒の最適化と、電界応答性を向上するための、 高誘電率材料との複合化について行った。その結果、噴霧熱分解合成シリカ砥粒への適切 な熱処理条件検討、スラリー溶媒への適切な添加剤の検討、および粒子径の最適化によっ て、市販のコロイダルシリカスラリーに匹敵する高い研磨特性が得られることが分かった。また、 外部印加電界に対して高い応答性と、サファイアとの高い CMP 特性の二つの特性を両立す るために、被覆型の微細構造を有する複合粒子に着目した。その結果、開発砥粒スラリーは 市販のコロイダルシリカスラリーに比べ、外部印加電界に対して高い応答性を示すことがわか った。開発した砥粒スラリーを用いて外部印加電界中でのサファイア研磨試験を行った結果、 従来のコロイダルシリカスラリーと比較して研磨速度に及ぼす電界効果が16%向上することが 分かった。

②-3 単結晶サファイア CMP シミュレーション技術の開発

原子レベルで良質な平坦性を実現する単結晶サファイア基板の研磨技術の開発を支援 するため、本年度は量子分子動力学法に基づくCMPシミュレータを開発し、 α -Al₂O₃(0001) 表面のSiO,砥粒による研磨シミュレーションを行った。その結果、 α -Al,O₃(0001)表面とSiO, 砥粒間の化学反応によってAl-O結合が弱められ、さらに弱められたAl-O結合が水の化学反 応によって解離することで、単結晶サファイア基板の研磨が進行することを明らかにした。さ らに、電界の効果を考慮可能な量子分子動力学シミュレータを開発し、電界がα-Al₂O₃(000) 1)表面のSiO。砥粒による研磨プロセスに与える影響を検討した。その結果、電界の印加には、 SiO。砥粒と化学反応しやすいように単結晶サファイア表面のO原子を露出させることで、SiO。 砥粒の単結晶サファイア表面に対する研磨性能を向上させる役割があることが示唆された。 また、我々が明らかにしたα-Al₂O₃(0001)表面の研磨メカニズムより、新規砥粒の設計指針 として、砥粒による押し込み過程において、よりAI-O結合を弱めるように、砥粒にサファイア 基板に対する高い化学反応活性を付与するエ夫が重要であることを提案した。そこで、異種 元素を添加したSiO。砥粒の研磨性能について第一原理計算を用いて検討した。その結果、 普通のSiO,砥粒よりもN添加SiO,砥粒の方が、押し込み過程においてα-Al,O₃(0001)表面の AI-O結合を大きく伸長させることが明らかにされた。つまり、N原子添加によってSiO,砥粒の 化学的作用が強まり、CMPプロセスが促進されることを提案した。

3-2 事業終了後の方針

今後は迅速な事業化を目指し、プロジェクトを進める。本研究成果の事業化については、 電界アタッチメント並びにそれを適用した研磨装置の上市、電界ラップ技術並びに電界 CMP 技術を用いた6インチ単結晶サファイア低コスト受託加工、電界高速 CMP 用砥粒のラ イセンス許諾による事業化の3つの展開を予定している。

1) 電界アタッチメント並びに装置の販売

本研究より、高い加工精度を実現可能なアタッチメント構成が得られた。今後、事業化を 目指すにあたり、実際の生産ベースにおける要求を満足する必要がある。これを実現する ため、安全性、耐久性、デザイン性、コスト等に配慮し、更に構成の検討を深める。また、 積極的に展示会出展等を行い、認知度を向上させ、顧客獲得を目指す。

2) 6 インチ単結晶サファイア低コスト受託加工

電界ラップ工程において、傷の定量評価、スラリー循環方式等の生産コスト低減に資す る条件の検証を行う。CMP 工程においては、開発した電界高速 CMP 用砥粒の最適加工 条件導出に向けた検討を進める。また、東北大学で開発した研磨シミュレータを活用し、し、 更なる高効率化を目指す。事業化当初は株式会社斉藤光学製作所が有する既存顧客へ の展開を図り、装置同様、学会、展示会等を活用し、新規顧客獲得を目指す。

3) 電界高速 CMP 用砥粒の特許化、ライセンス許諾

特許出願を行った知的財産の権利化を目指し、対応を進める。また、更なる、コスト低 減を可能とするため、スラリー循環式使用への適用を考慮し、砥粒寿命等について検証を 進める。これより、知財の価値を高め、研磨砥粒メーカーへ提案し、連携を図る。