

学位論文要旨

(Summary of the Doctoral Dissertation)

学位論文題目 (Dissertation Title)	真空構造材料アルミニウム合金の低ガス放出表面処理技術に関する研究
氏名(Name)	小川 直樹

20世紀の科学技術の急速な発展とその産業への利用とともに，真空技術は種々の産業・科学技術の基盤として進展してきた。最近，ナノテクノロジー技術の進展とともに，デバイスのさらなる微細化・高集積化の要請から，デバイス製造用真空装置には 10^{-6} Paオーダーの超高真空が必要である。また，大型放射光施設や大強度陽子加速施設などの先端学術装置では， 10^{-6} Paの超高真空から 10^{-10} Paの極高真空が必要である。このように，超高真空／極高真空を発生し安定に維持することの重要性が高まっている。

真空装置の圧力 p [Pa]は，装置に接続した真空ポンプの有効排気速度 S [m^3s^{-1}]，真空容器内表面からのガス放出量（全ガス放出速度と呼ぶ） Q [$\text{Pa m}^3\text{s}^{-1}$]とすると， $p = Q/S$ で表すことができる。ここで，ガス放出量 Q は，単位面積あたりのガス放出量を q [$\text{Pa m}^3\text{s}^{-1}\text{m}^{-2}$]，真空装置の内表面積を A [m^2]とすると， $Q = q \cdot A$ で表すことができる。この単位時間・単位面積あたりのガス放出量 q をガス放出速度という。真空装置の圧力 p を低減させるためには，真空ポンプの有効排気速度 S を大きくすることと，真空容器内表面からのガス放出速度 q を低減する必要がある。しかし，真空ポンプの排気速度を大きくするには物理的に限界があり，コスト面でも問題となる。したがって，真空装置材料からのガス放出速度 q を低減することが重要となる。

真空装置の主な構造材料はステンレス鋼またはアルミニウム合金であるが，重金属汚染を回避する必要性から，シリコン半導体デバイス製造用真空装置はアルミニウム合金で製造されている。アルミニウム合金は①硬度が68 Hvと低いことから表面研磨により平滑な表面を得ることが難しい，②融点が約 620°C と低く且つ線膨張係数が $23.8 \times 10^{-6} / \text{K}$ であることから熱変形し易い，③表面活性であり反応性が高く，特に水や水蒸気と反応し水和酸化物ができ易い，という性質を持つことから，低ガス放出化の手段に制約がある。したがって，従来のアルミニウム合金に関する低ガス放出化の研究は，水和酸化物の生成を抑制することを目的としたアルコール切削加工（EL加工），アルゴン＋酸素雰囲気中切削加工（EX加工），アルゴン＋酸素雰囲気中押出加工（EX押出）と，表面平滑化と水和酸化物の除去を目的とした化学研磨が行われているだけである。EL加工やEX加工を実行するには，シールド室や換気装置などが必要となり，これらを量産現場で実行することは困難である。

このような背景から，本研究では，低ガス放出となるアルミニウム合金の表面処理技術として，実用の装置製造工程における量産性を考慮した最適研削処理技術について注力して開発した。さらに，後工程の化学研磨も確立した。そして，最適研削処理及び最適研削+化学研磨処理したアルミニウム合金の表面分析及びガス放出速度評価した。表面分析より，これら表面処理したアルミニウム合金表面は平滑であり，その表面層の組成は薄い酸化アルミニウムであることがわかった。そして，これら表面処理したアルミニウム合金は従来処理したアルミニウム合金と比較して同等以上の良好なガス放出特性を示すことを明らかとした。

本論文は以下の構成からなる。

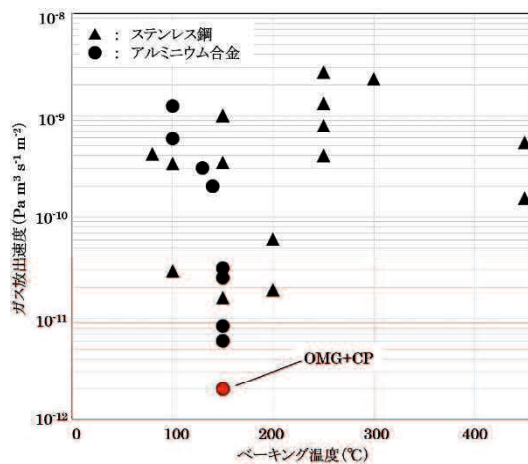
第1章の序論では、研究・開発に着手した背景を述べ、真空装置の排気過程、真空構造材料からのガス放出の原理について述べる。次に、主な真空構造材料であるステンレス鋼と研究対象であるアルミニウム合金のガス放出低減に関する既往の研究について述べる。最後に本研究の目的を述べる。

第2章では、本研究で開発したアルミニウム合金の表面処理である最適研削と化学研磨について述べる。ここでは、表面平滑化と水和酸化物の生成の抑制を目的に注力して開発した最適研削処理について詳述する。最適研削処理は、研削深さが深い荒加工と浅い仕上げ加工から構成されるが、形状最適化した切削チップを用い、冷却のための切削オイルを選択し、研削仕上げ加工の研削深さと研削速度について最適化したものである。

第3章では、通常研削、通常研削+化学研磨、最適研削、最適研削+化学研磨処理の4種類の表面処理したアルミニウム合金表面の表面形態および表面粗さについて、原子間力顕微鏡 (AFM)、共焦点レーザー顕微鏡 (CLSM) を用いて測定した結果について記述する。次に、これら試料の表面層の組成について、走査型X線光電子分光装置 (XPS) を用いた表面深さ方向分析結果について記述する。最適研削処理及び最適研削+化学研磨処理したアルミニウム合金は、表面粗さ R_a が数nmと平滑であり、そして表面酸化層が約10 nmであり且つその組成が酸化アルミニウムであることを明らかとした。

第4章では、測定手段の異なる2台のガス放出速度測定装置を用いて、4種類の表面処理したアルミニウム合金のベーキングを施さない場合の大気圧から真空排気後のガス放出速度とベーキング後に測定したガス放出速度の測定結果について述べ、従来のアルミニウム合金のガス放出速度と比較し議論する。最適研削+化学研磨処理したアルミニウム合金のベーキング後のガス放出速度は $2.6 \times 10^{-12} \text{ Pa m}^3 \text{ s}^{-1} \text{ m}^{-2}$ と非常に低く、従来のアルミニウム合金とステンレス鋼のガス放出速度の文献値と比較しても最も低い値であった (参照図1)。

第5章では、開発した表面処理を施したアルミニウム合金製真空装置 (半導体デバイス製造用真空搬送装置) の開発とその真空特性について述べ、実用装置への展開について記述する。最後に第6章では、本研究で得られた結論を記述する。



参照図1. 本研究の最適研削+化学研磨処理したアルミニウム合金のガス放出速度 (●) とステンレス鋼およびアルミニウム合金の従来データとの比較.

(様式 9 号)

学位論文審査の結果及び最終試験の結果報告書

山口大学大学院創成科学研究科

氏 名	小川 直樹
審査委員	主 査： 山本 節夫
	副 査： 浅田 裕法
	副 査： 赤井 光治
	副 査： 大原 渡
	副 査： 栗巢 普揮
論文題目	真空構造材料アルミニウム合金の低ガス放出表面処理技術に関する研究 (Research and Development of Low Outgassing Surface Finishing of Aluminum Alloys for Vacuum Structural Material)

【論文審査の結果及び最終試験の結果】

最近、デバイス製造用真空装置や大型放射光施設などの先端学術装置では、 10^{-6} Pa の超高真空から 10^{-10} Pa の極高真空に到達し安定に維持することの重要性が高まっている。真空装置の圧力 p [Pa] を低減させるためには、真空装置材料からのガス放出速度 q [$\text{Pa m}^3 \text{s}^{-1} \text{m}^{-2}$] を低減することが重要となる。

シリコン半導体デバイス製造用真空装置に適用されるアルミニウム合金は、主たる真空構造材料の一つである。この材料は、①硬度が低いことから表面研磨が難しい、②表面の反応性が高く、特に水蒸気と反応し水和酸化物ができ易い、という性質を持つことから、低ガス放出化の処理が困難であり、しかも量産現場で適応可能な決定的な方法は無かった。

このような背景の下、本研究は、装置・部品の多様性や装置製造の量産性に対応したアルミニウム合金用の汎用の低ガス放出な表面処理技術を開発したものである。この技術は最適研削処理と化学研磨工程から構成される。ここで、表面処理したアルミニウム合金のガス放出速度の目標値として、大気圧の真空排気から 10 h 後でガス放出速度： $1.0 \times 10^{-7} \text{ Pa m}^3 \text{ s}^{-1} \text{ m}^{-2}$ 以下、ベーキング後でガス放出速度： $1 \times 10^{-10} \text{ Pa m}^3 \text{ s}^{-1} \text{ m}^{-2}$ 以下とされた。

本研究では、最適研削 (OMG) 処理及び最適研削+化学研磨 (OMG+CP) 処理を施したアルミニウム合金と比較試料として通常研削 (MG) 処理及び通常研削+化学研磨 (MG+CP) 処理を施したアルミニウム合金の表面形態と表面酸化層の結合状態について分析された。原子間力顕微鏡による表面形態観察より、OMG 処理及び OMG+CP 処理を施したアルミニウム合金の表面は平滑であることが明らかにされた。X 線光電子分光分析より、その表面酸化層は欠陥が少なく、且つその組成は薄い酸化アルミニウムであることが明らかにされた。

次に、これら表面処理を施したアルミニウム合金のガス放出速度について評価装置も開発して評価された。4 種類の表面処理を施したアルミニウム合金の大気圧の真空排気から 10 h 後のガス放出速度は、 $\text{MG} \gg \text{OMG} \geq \text{MG+CP} > \text{OMG+CP}$ であった。4 種類の表面

(様式 9 号)

処理したアルミニウム合金の中で、目標値のガス放出速度 $1.0 \times 10^{-7} \text{ Pa m}^3 \text{ s}^{-1} \text{ m}^{-2}$ 以下を確実に達成した試料は **OMG+CP** 処理を施したものであり、その値は $7.3 \times 10^{-8} \text{ Pa m}^3 \text{ s}^{-1} \text{ m}^{-2}$ であった。この値は従来処理を施したアルミニウム合金のガス放出速度の中で最も低い値 $8.3 \times 10^{-8} \text{ Pa m}^3 \text{ s}^{-1} \text{ m}^{-2}$ と同等以下の低い値であった。**OMG** 及び **OMG+CP** 処理したアルミニウム合金のベーキング後のガス放出速度は、目標値の $1 \times 10^{-10} \text{ Pa m}^3 \text{ s}^{-1} \text{ m}^{-2}$ 以下を十分満たす $4 \times 10^{-12} \text{ Pa m}^3 \text{ s}^{-1} \text{ m}^{-2}$ 以下と非常に低く、従来処理を施したアルミニウム合金の最も低い値 $6 \times 10^{-12} \text{ Pa m}^3 \text{ s}^{-1} \text{ m}^{-2}$ と比較して同等以下の低いガス放出特性を示すことを明らかにされた。また、**OMG** 及び **OMG+CP** 処理を施したアルミニウム合金が低いガス放出速度を示す起源についても、表面分析の結果から考察されている。

さらに、本提案方法で表面処理を施したアルミニウム合金製真空装置（半導体デバイス製造用真空搬送装置）の開発とその良好な真空特性について述べられており、実用装置への展開状況についても記述されている。

公聴会では、真空科学技術分野及びデバイス製造装置開発分野の専門家から多数の質問があった。その主な質問内容は、開発した表面処理技術に関するもの、開発の表面処理を施したアルミニウム合金の低ガス放出化の起源に関するもの、そしてデバイス製造装置のパーティクル汚染及び重金属汚染に関するものであった。いずれの質問に対しても発表者からの的確な回答がなされた。

以上より本研究は独創性、信頼性、有効性、実用性ともに優れ、博士（工学）の論文に十分値するものと判断した。

論文内容及び審査会、公聴会での質問に対する応答などから、最終試験は合格とした。

なお、主要な関連論文の発表状況は下記のとおりである。（関連論文 計 3 編）

- 1) 小川直樹, 横山浩司, 寺岡秀展, 石井高志, 播間かな子, 後藤守良, 橋高怜治, “表面処理したアルミニウム合金のガス放出特性 - 開発した測定装置の性能評価とガス放出速度測定 -”, *Journal of the Vacuum Society of Japan*, Vol.60, No.11, pp.450-456, Dec. 2017.
- 2) Naoki OGAWA, Yuki YAMASHITA, Hiroki KURISU and Setsuo YAMAMOTO, “Outgassing Properties of Various Surface Finished Aluminum Alloy Measured by Extremely High Vacuum System, *Vacuum and Surface Science*, Vol. 64, No.9, pp.411-417, Sep. 2021.
- 3) Naoki OGAWA, Hiroki KURISU, Setsuo YAMAMOTO, “Surface Analysis of Surface Finished Aluminum Alloys with a Low Outgassing Property”, *Vacuum and Surface Science*, (in press)