

## 審査の結果の要旨

論文提出者氏名 吳 海洲

本論文は、「Development of new analytical techniques by synergistic combinations(相乗的組み合わせによる新しい分析方法の開発)」と題し、5章よりなる。

第一章は序論であり、本研究の背景及び目的の概要、本論文の枠組みに関してまとめている。分析方法の開発歴史から、分析の要求が次々に高まり、これらの要求に対して、解決の手法の一つとして、各試薬、装置、方法などを組み合わせることがなされてきた。しかし、一般的には組み合わせによりある分析上の問題を解決することが必ずしも適用対象の大幅な拡大や機能の大幅な改善にはつながっていない。これに対して、新しい機能が生じたり、性能が飛躍的に向上するような組み合わせを「synergistic combination(相乗的組み合わせ)」と名付け、その重要性を指摘している。

本論文では、従来分析が不可能またはきわめて困難な三つの分析について、相乗的組み合わせによる新たな方法を開発し、その有効性を実証している。

第二章は、HPLC/ETV(電気加熱気化)/ICP-MS の組み合わせによる高純度希土類元素試料中微量希土類元素の高感度分析について述べている。ICP-MS は高感度な同時多元素定量に用いられるため、検出方法として採用し、そこに HPLC を結合することにより、ICP-MS を用いて、高純度希土類中の微量希土類元素を分析する時に起こるピークの重なり、マトリクス妨害などの問題点を解決した。更に ICP-MS の試料導入法として、高感度でありかつ溶離液を除くことができる ETV を組み入れることにより、HPLC 導入時に生じた有機塩によるマトリクス妨害、分離後溶離液の濃度の低下などの負の効果を避けた。組み合わせ HPLC/ETV/ICP-MS のシステムを設計・試作して、評価実験を行った。この三つの要素を有機的に組み合わせ、相乗効果が生じ、検出下限は 0.07ng/g Gd、全ての高純度希土類試料中(7-8N)全ての微量希土類元素の分析ができることが示された。

第三章は、溶離液 HIBA/グリコール酸の組み合わせによる高純度希土類 Y 中の微量 Dy、高純度 Dy 中の微量 Y の分離について述べている。HIBA は良い希土類元素の分離特性と安定性をもつので、希土類元素の分離によく採用されている。しかし、Y-Dy の分離が不十分であることが問題となっていた。従来の改善手法として、希土類元素と錯体を形成する新しい試薬の合成がなされてきたが、それによる分離効果はさほど改善していない。ここに従来の考えと違い、二種類溶離液 HIBA/グリコール酸の組み合わせを導入して評価実験を行った。HIBA を

溶離液とした分離では Y は Dy の前に溶出したが、グリコール酸を溶離液とした分離では Y が Dy の後に溶出した。この Y の分離に異なる特性を持つ溶離液の組み合わせを調整することにより、Y と Dy の分離効果が顕著に改善されたと同時に、Gd と Eu 以外のすべての微量希土類の分離も十分にでき。これにより高純度 Y、Dy の試料中 Y、Dy の分離が実現した。この相乗的組み合わせの発想は他の難分離対象に関する課題にも重要な参考になると考えられる。

第四章は、FIB(収束イオンビーム)/AES(オージェ電子分光法)/TOF-SIMS の組み合わせによる電子材料ワイヤボンディング微小接合界面部の元素分布の解析について述べている。まず、ワイヤボンディングの製造プロセス、使用時の問題点及び分析の必要性に関してまとめている。次に現在用いられている分析法の問題点を挙げ、実現すべき機能は、接合界面に汚染や破壊を与えず、連続、精密に界面と平行な断面を削り出せる方法と、マッピング機能を持つ方法の組み合わせであることが指摘されている。この機能を実現するために、評価試験を行った。この組み合わせでは、まず、FIB は連続的かつ精密に汚染と損傷のない界面と平行な断面を削り出すことに用いる。次に、二次電子像から加工状況を判断して、分析の目的位置まで性格に加工する。最後に、削り出した断面に対してオージェ電子マッピング及び TOF-SIMS マッピングを行う。結果として、二次元 Al パッド接合部の Si、Al、Au のオージェマップが得られ、これらの手順を繰り返すことにより、三次元元素マップの取得が可能であることが示された。オージェ電子マッピングと同様に、TOF-SIMS の二次元マップを取得し、接合部外側の Al が酸化されていることが示された。さらに、断面の削り出しと TOF-SIMS マッピングを繰り返すことにより、従来実現できなかった接合部の TOF-SIMS による三次元 Al、Si の元素分布マッピングが初めて実現した。このマップから、詳細な元素の分布が得られ、接合部金属間化合物の生成メカニズムの解明に適用されることが期待された。

第五章においては結論を述べている。本研究では、複数の要素の相乗的組み合わせにより、従来実現不可能であった高純度希土類試料中微量希土類元素の分析、高純度 Y 中 Dy の分離、高純度 Y 中 Dy の分離及び電子材料ワイヤボンディング微小接合界面部の元素分布の解析を実現した。

以上本論文は新しいアイデアを基に新規性の高い相乗的組み合わせを設計・試作し、従来分析が不可能であった複雑な対象の分析を実現し、新しい分析方法の開発のため、評価試験を行ったものであり、応用化学、特に物質情報化学ならびに工業分析化学に対して貢献するところが大きい。よって、本論文は博士(工学)の学位請求論文として合格と認められる。