

令和 5 年 5 月 30 日現在

機関番号：13901

研究種目：基盤研究(B)（一般）

研究期間：2020～2022

課題番号：20H02026

研究課題名（和文）電子流によるエレクトロファインインジェクション技術の深化と超長ワイヤ創製の実現

研究課題名（英文）Advance in electro-fine-injection for super-long metallic micro/nanowire growth by high density electron flow

研究代表者

木村 康裕（Kimura, Yasuhiro）

名古屋大学・工学研究科・助教

研究者番号：70803740

交付決定額（研究期間全体）：（直接経費） 13,800,000円

研究成果の概要（和文）：本研究では、マイクロ・ナノ径の金属ファインワイヤの創製を可能にするため、電子流による金属原子の拡散に起因した原子蓄積に伴う高圧力を利用したエレクトロファインインジェクションなる電子流駆動型金属微小射出機構の本格的実現を試みた。電子流駆動型金属微小射出機構の確立、射出機構によるワイヤの創製高速化、創製ワイヤの材料特性制御および評価、なる3項目の研究を総合することで、本技術の実現可能性を示唆する成果を得た。

研究成果の学術的意義や社会的意義

創製されたファインワイヤは良好な機械特性、特に高強度を示すことから、これまで化学センサ等の機能材料としての働きに限定されてきたファインワイヤの応用事例を機械材料分野にまで拡張させる成果である。また考案された原子拡散制御手法を発展させることは、ワイヤの射出速度の制御に資するのみならず、ワイヤの直径、長さおよびその幾何形状の制御をも可能にし、これまでにない新たなファインマテリアルを作り出す創製手法の基盤技術となることが期待される。

研究成果の概要（英文）：This work has attempted the electron-flow-driven metallic fine injection method due to high pressure induced by the accumulation of atoms during electromigration. The results show the suggestions of the feasibility of this technique through the following three studies: the establishment of electron-flow-driven metallic fine injection method, the acceleration of wire injection speed based on clarification of injection mechanism, and control and evaluation of material properties of injected wires.

研究分野：機械材料・材料力学

キーワード：機械材料・材料力学 原子拡散 エレクトロマイグレーション 金属ファインワイヤ

1. 研究開始当初の背景

近年、超スマート社会創生に向けた基盤技術の戦略的強化方策として、素材・ナノテクノロジー分野におけるファインマテリアルが注目を浴びている。マイクロ・ナノサイズの微細材料であるファインマテリアルに関する研究開発は著しく、その極細なスケールに由来した特異な物理的諸特性や比表面積の大きさを活かした応用例は多岐にわたる。機械材料としては、航空機などの輸送機における燃費性能向上などによる軽量化ニーズの高まりから、炭素をはじめとした非金属のファインマテリアルが強化樹脂に広く応用されはじめている。一方で、金属は熱伝導性や展延性・焼結性に富んだ加工性の高さに加え、体積強度比、環境負荷の少ないリサイクル性・補修性などの特徴を有しており、依然として金属が必要とされる用途は多い。マイクロ・ナノスケールにおいてもその真価を発揮することが期待されている。

金属ファインマテリアルの一つとして、ウイスカに代表される1次元金属ファインワイヤがある。金属ファインワイヤは、その極細さゆえ強度低下となる結晶欠陥が少ない単結晶を有し、「軽くて強い」という特徴からエネルギー・資源枯渇の問題を解決する新たな機械材料として期待されている。またその高弾性は、Alファインワイヤの降伏応力が、バルク材に比べて約20倍高いという研究報告[H. Tohmyoh, et al., *J. Phys. Soc. Jpn.*, 81 (2012) 094803]により明らかになっている。しかし金属ファインワイヤが発見され注目を浴び始めた1950年代から半世紀余りが経過した現在においても、その産業的利用技術開発は遅々としている。理由の一つは、ファインワイヤの特徴である単結晶構造を有したままのスケールアップ(超長化)が未達成であることに由来する。このシンプルな問いに対する解として、金属単結晶超長ファインワイヤを創製できれば、これを束ね、編み込み、成形することで、身の回りに多用される普遍的な次世代機械材料として活躍できる期待がある。しかし現在の機械材料としての利用は限定的で、高強度の起源たる結晶欠陥の少ない構造を有するという金属ファインワイヤ特有の特徴を活かしたままのスケールアップが困難との理由から、我々が生活するマクロな世界へ適用できているとは言えない

2. 研究の目的

本研究では、ファインワイヤの「超長化」と「単結晶化」実現のための新技術「エレクトロファインインジェクション法」の学術的深化と技術的發展による学理探求と実用化を目指す。極細な径とメートル級の長さを有した高強度・高伝導性が期待できる金属単結晶超長ファインワイヤ創製を実現するための金属微小射出機構の基盤技術開発に挑む。創製ワイヤの結晶性解析、および材料特性評価により材料情報を取得することで社会ニーズ提供へのきっかけを掴むことを試みる。

3. 研究の方法

本研究の核は、新規に考案した金属微小射出機構と超長化の実現である。エレクトロマイグレーション(以下、EM)と呼ばれる電子流による金属原子の拡散に起因した原子蓄積に伴う高圧力を利用することで、電子流印加だけで金属を極細孔から射出することができる。これにより、マイクロ・ナノ径とメートル級の長さを同時に有する単結晶超長ファインワイヤ創製の本格的実現を目指した。エレクトロファインインジェクションなる金属微小射出機構の原型は、若手研究における成果として見出されており、本研究では、若手研究での既得成果を飛躍的に発展させるべく、3か年計画として、(I) エレクトロファインインジェクション(電子流駆動型金属微小射出)機構の確立、(II) 射出機構によるワイヤの創製高速化、(III) 創製ワイヤの材料特性制御および評価、なる3項目の研究を総合することで、本技術の実現可能性を検討した。

4. 研究成果

(I) エレクトロファインインジェクション機構の確立

EMに伴う原子蓄積が金属原子射出の駆動力たる圧力増加を引き起こすには、射出機構が破損しない耐圧性と金属原子を漏らさない気密性を両立することが求められる。射出機構は、「ノズル部」と「先端部」に2分割されており、これらを耐圧性・気密性を確保しつつ如何に接合するかが重要となる。これを実現するために、「機械締結による耐圧機構の実現」および「高接着性を有する導電性接着剤による耐圧機構の実現」の2つを並行して試行し、その有効性を検証した。結果として、前者の機械締結による耐圧機構は、金属原子射出の前段階である微細孔への充填こそ成功したものの射出には至らなかった。理由としては、耐圧機構を実現するに必須な気密性が、サブミリスケールでの機械加工の精度が及ばず、保てなかったことに由来する。一方で後者の高接着性を有する導電性接着剤による耐圧機構の実現においては、継続研究課題(若手研究)において用いていたカーボンペーストから脱却し、耐熱性、高接着性を有する新たな導電性接着剤を用いることで、金属原子の射出に成功した(図1)。

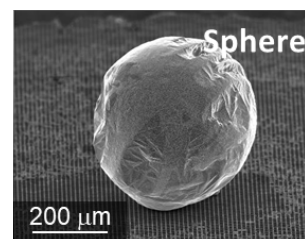


図1 射出によって形成された金属マイクロ球

(II) 射出機構によるワイヤの創製高速化
 (II-1) 射出機構の最適化のための原子濃度解析手法の確立

EM による金属原子の射出およびワイヤ創製を効率化するには、原子がどのように拡散・蓄積するかを示す原子濃度分布(静水圧に相当)の取得が不可欠である。有限要素解析汎(FEA)用ソフト COMSOL を用いて、マルチフィジックスな電熱・構造・拡散連成問題を同時に解くことで、印加する電流密度・温度に対して生じる原子濃度分布を取得することに成功した(図2)。射出機構の形状および金属結晶粒分布が原子濃度分布およびワイヤ幾何形状に大きく作用することを見だし、所望のワイヤを射出するための方策提案が可能になった。また原子拡散時の射出機構内における壁面との相互作用も調査し、適切な材料選定が射出速度に影響をもたらすことを示唆する成果を得た(文献①)。

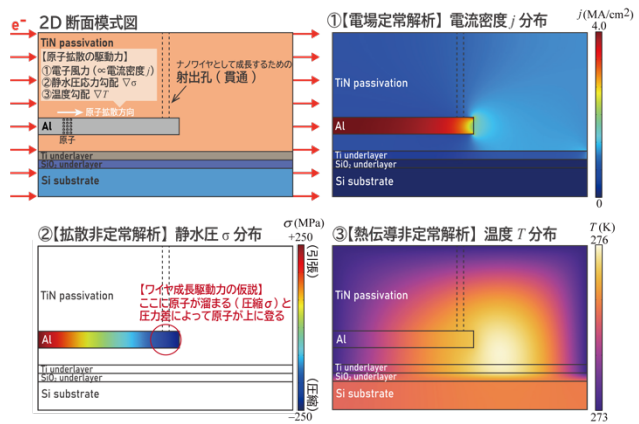


図2 マルチフィジックス FEA による 2次元解析結果

(II-2) 射出機構環境の改善と射出条件の最適化

EM は熱活性化過程のため、外部加熱による原子の拡散と射出の促進が可能である。本機構は複雑な立体形状を有するためセラミックヒータなどの平面加熱が難しい。そこで令和 2 年度に導入した赤外線集光装置による非接触加熱を用いて、原子拡散と射出の促進を試みた。様々な温度条件によって射出を試みたところ、実験を通じてワイヤと球体を区別する条件の存在が示唆された。これは射出時に材料が有する温度に由来すると考えられ、加熱・冷却問題の解析解を導くことで、ワイヤと球体を選択的に創製可能な射出条件を見出すことに成功した。加えて、電流印加時に生じる原子拡散現象としてはEMの他にサーモマイグレーション(TM)の存在も無視できない。EM による原子流束とTMによる原子流束の向きが一致するとは限らず、射出機構の形状、使用する射出条件によっては互いに打ち消しあい射出に反する結果をもたらすことがある。そこでEM と TM が拮抗し平衡状態になる電流密度をしいき j^*_{eq} と定義し、これを導出するための解析解を導いた(図3、文献②)。

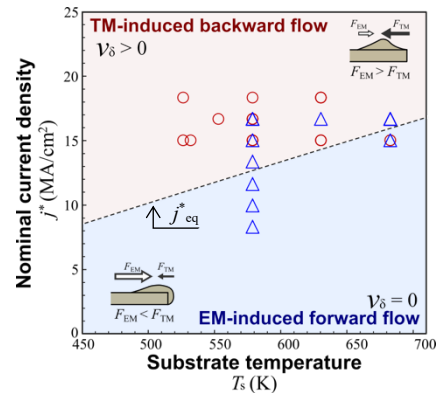


図3 電流密度 j^* -温度 T グラフ: 赤丸は TM が優位で青三角は EM が優位な状態を示す(文献②)

(III) 創製ワイヤの材料特性制御および評価

(III-1) 組織変化のための射出条件の究明

前項までで確立した射出条件制御手法を通じて、ワイヤの組織を変化させることを試みた。組織変化の射出条件として温度、電流密度、外環境による熱伝達率を挙げ、これらを適切に制御することによってワイヤ組織を変化させることに成功した。計画当初は単結晶化のみを狙って実験を実施していたが、多結晶ワイヤ、非晶質ワイヤの創製にも成功し、本射出機構により創製されるワイヤの結晶組織に多様性をもたらせる基礎を築いた(図4)。

(III-2) 創製ワイヤの機械的特性評価

透過型電子顕微鏡内におけるその場引張試験を実施し、破断強度とワイヤ変形挙動の相関を明らかにした。結果として創製した単結晶ワイヤは寸法効果によって 1.89 GPa の高い降伏応力を発現することを実験的に確認した。一方で、一度発生した微小欠陥を起点に破壊を引き起こす脆性破壊を示した。この破壊形態は他者による既存の報告と一致することから、創製したワイヤが高い品質であることを示した。

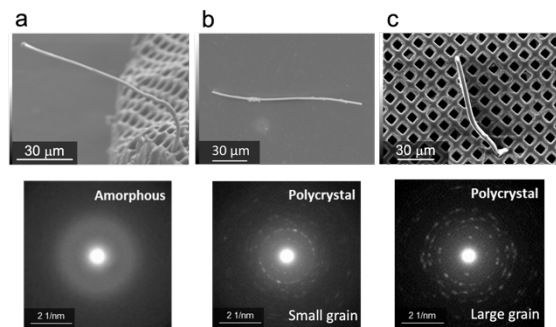


図4 創製したワイヤの走査型電子顕微鏡像と透過型電子顕微鏡による電子線回折像: (a)アモルファス、(b)多結晶およびアモルファス、(c)多結晶で構成されたワイヤ

<引用文献>

- ① Yasuhiro Kimura and Yang Ju, *Journal of Vacuum Science and Technology B*, Vol. 39 (2021) pp. 062803(1)-(7).
- ② Yasuhiro Kimura and Yang Ju, *AIP Advances*, Vol. 10 (2020), pp. 085125(1)-(9).

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計2件（うち査読付論文 2件/うち国際共著 0件/うちオープンアクセス 1件）

1. 著者名 Kimura Yasuhiro, Ju Yang	4. 巻 39
2. 論文標題 Intermetallic compound formation inhibiting electromigration-based micro/nanowire growth	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 Journal of Vacuum Science & Technology B	6. 最初と最後の頁 062803 ~ 062803
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1116/6.0001271	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 Yasuhiro Kimura, Yang Ju	4. 巻 10
2. 論文標題 Equilibrium current density balancing two atomic flows in coupled problems of electromigration and thermomigration in unpassivated gold film	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 AIP Advances	6. 最初と最後の頁 85125
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1063/5.0011417	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスとしている（また、その予定である）	国際共著 -

〔学会発表〕 計8件（うち招待講演 2件/うち国際学会 4件）

1. 発表者名 木村康裕
2. 発表標題 電子流による原子拡散に基づくマイクロ・ナノワイヤ創製法の開拓
3. 学会等名 日本応用物理学会 東海NFRW・若手チャプタージョイントワークショップ（招待講演）
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 白澤拓磨, 木村康裕, 徳悠葵, 巨陽
2. 発表標題 ナノスカイピング法を用いた相変化ナノワイヤの創製
3. 学会等名 日本機械学会 M&M2022 材料力学カンファレンス
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 磯井宙, 木村康裕, 徳悠葵, 巨陽
2. 発表標題 Ti-6Al-4Vにおける電流印加による転位挙動の動的観察
3. 学会等名 日本機械学会 M&M2022 材料力学カンファレンス
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 Yu Nobuoka, Yasuhiro Kimuram, Yuhki Toku, and Yang Ju
2. 発表標題 Fabrication of metallic nanogaps using grain boundary diffusion based on electromigration
3. 学会等名 2022 JSME-IIP/ASME-ISPS Joint Conference on Micromechatronics for Information and Precision Equipment (国際学会)
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 Sota Nakashima, Yasuhiro Kimuram, Yuhki Toku, and Yang Ju
2. 発表標題 An electromigration-based injection system manufactured by microfabrication
3. 学会等名 2022 JSME-IIP/ASME-ISPS Joint Conference on Micromechatronics for Information and Precision Equipment (国際学会)
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 Yuta Ito, Yasuhiro Kimura, Yuhki Toku, and Yang Ju
2. 発表標題 On Selective Fabrication of Metallic Micro/Nanomaterials in Electromigration-based Injection System
3. 学会等名 2021 5th International Conference on Nanomaterials and Biomaterials (国際学会)
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 木村康裕
2. 発表標題 高密度電子流による原子拡散に基づく金属マイクロ・ナノワイヤ創製
3. 学会等名 日本材料学会 東海支部 第1回イブニングセミナー（招待講演）
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 Yasuhiro Kimura, and Yang Ju
2. 発表標題 On growth technique of electromigration-based free-standing Al micro/nanowires
3. 学会等名 The 64th International Conference on Electron, Ion, and Photon Beam Technology and Nanofabrication (EIPBN) (国際学会)
4. 発表年 2021年

〔図書〕 計0件

〔出願〕 計0件

〔取得〕 計1件

産業財産権の名称 ナノワイヤ製造装置およびナノワイヤ製造方法	発明者 木村康裕，巨陽	権利者 同左
産業財産権の種類、番号 特許、特開2022-041761	取得年 2022年	国内・外国の別 国内

〔その他〕

名古屋大学大学院工学研究科 マイクロ・ナノ機械理工学専攻 材料強度・評価学研究グループ https://www.mech.nagoya-u.ac.jp/ju/
--

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
---------	---------------------------	-----------------------	----

7. 科研費を使用して開催した国際研究集会

〔国際研究集会〕 計0件

8 . 本研究に関連して実施した国際共同研究の実施状況

共同研究相手国	相手方研究機関
---------	---------