

科学研究費助成事業 研究成果報告書

平成 26 年 5 月 20 日現在

機関番号：11301

研究種目：基盤研究(B)

研究期間：2011～2013

課題番号：23360050

研究課題名(和文)異種金属微細接合角部の電子流集中による原子集積と高度マイクロ・ナノ構造体の創製

研究課題名(英文) Accumulation of atoms due to a concentration of electron flow near the corner composed of dissimilar metal lines and its utilization for fabrication of various micro/nano structures

研究代表者

坂 真澄 (Saka, Masumi)

東北大学・工学(系)研究科(研究院)・教授

研究者番号：20158918

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 14,300,000円、(間接経費) 4,290,000円

研究成果の概要(和文)：電子流を駆動力とする原子移動、すなわちエレクトロマイグレーションを有効に利用したマイクロ・ナノ構造体の創製を扱い、効率よく原子を集積するために、異種金属接合角部にはじめて注目した。はじめに同部における原子集積の理論解析を行い、解析結果に基づき新しいサンプルを作製した。これを踏まえ、多くの原子を必要とする長いワイヤ、ワイヤアレイ、チューブ、等の高度マイクロ・ナノ金属構造体を創製した。さらに実現したマイクロ・ナノ構造体の力学的、電磁氣的、および熱的要素としてのポテンシャルを探り、効率的なマイクロ・ナノ構造体創製指針を策定した。

研究成果の概要(英文)：This study treated the fabrication of micro/nano structures utilizing electromigration where the atoms are moved by the electron flow. To accumulate atoms efficiently, we paid attention to the corner composed of dissimilar metal lines. First theoretical analysis on the accumulation of atoms at the corner was performed, and based on the analytical results, new samples for effectively fabricating various micro/nano structures were fabricated. Various micro/nano structures, e.g., longer wire, wire array, tube, etc. were realized by the new samples. Mechanical, electromagnetic and thermal properties of the micro/nano structures were also investigated. Finally the guidelines for effectively fabricating the micro/nano structures utilizing electromigration was pointed out.

研究分野：工学

科研費の分科・細目：機械工学・機械材料・材料力学

キーワード：マイクロ・ナノ構造体 エレクトロマイグレーション 異種金属接合角部 原子集積 ワイヤ アレイ
高機能断面 特性評価

1. 研究開始当初の背景

様々なマイクロ・ナノ材料が実現されてきており、いよいよ本格的にこれら微細材料を活用する段階となってきた。従来のナノ材料作製手法は化学反応を利用するものがほとんどであり、利用できる元素種類は拡大してきているものの、その組み合わせに制約がある。また偶発的な要素のある化学反応によっては、作製される材料の幾何学的形態を制御することが困難である場合が多い。加えて、所望の材料を得るには時として大量の廃液が生成されるが、このことはコストのみならず、環境問題配慮の観点からも好ましくない。

以上のような状況に鑑み、本申請代表者らはエレクトロマイグレーションなる、素材の化学的特性に依存しない原子の拡散現象を制御して金属マイクロ・ナノ材料を作製する斬新な手法を世界に先駆けて提案し、これまでに、金属ナノワイヤ、マイクロボール、チューブやコイルといった、様々な微細構造体を実現してきた。

これまでの研究成果を踏まえ、マイクロ・ナノ金属材料研究の次のステップとして重要になるのが、高効率創製手法の構築である。

2. 研究の目的

本研究は電子流を駆動力とする原子移動、すなわちエレクトロマイグレーションを有効に利用したマイクロ・ナノ構造体の創製を扱い、効率よく原子を集積するために、異種金属接合角部の特徴的構造（角部に存在する境界面）にはじめて注目する。電子流の集中を伴って同境界面を活用する方法を開拓し、これにより多くの原子を必要とする長いワイヤ、ワイヤアレイ、高機能断面を有し、かつ長いチューブ、等の高度マイクロ・ナノ金属構造体を創製するものである。また実現した高度マイクロ・ナノ構造体の力学的、電磁氣的、および熱的要素としてのポテンシャルを探ることを目的とする。

3. 研究の方法

本研究計画は5項目に大別される。(1) 異種金属接合角部における原子集積の理論解析では、異種金属接合角部の特徴的構造を利用して効率良く原子を集積するための理論を構築し、これに立脚して(2) 異種金属微細接合角部を有する新規サンプルを作製する。作製したサンプルを用いて(3) 長いワイヤ、ワイヤアレイ、高機能断面を有し、かつ長いチューブ、等の高度マイクロ・ナノ金属構造体の創製を実現する。(4) 高度マイクロ・ナノ構造体の特性利用では、作製したマイクロ・ナノ構造体の電磁氣的、力学的、熱的要素としてのポテンシャルを探り、最終的に(5) 効率的なマイクロ・ナノ構造体創製指針の策定と応用への提言を行う。

4. 研究成果

(1) 異種金属接合角部における原子集積の理論解析

異種金属接合角部での電子流集中、ジュール発熱による温度分布、そしてこれらの影響による原子流束とその発散（単位時間、単位体積当たりの原子の蓄積量あるいは損失量）を解析し、異種金属境界面での原子の集積を理論的に求めた。これにより異種金属接合の場合、材料の組合せにより、角部近傍領域での原子集積が制御可能であることを理論的に明らかにした。

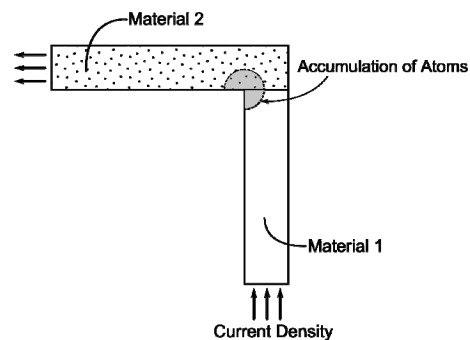


図1 異種金属接合角部近傍での原子集積

(2) 異種金属微細接合角部を有する新規サンプルの作製

マイクロ・ナノ材料の創製には、サンプル内に原子が集積しやすい箇所を設けることが得策である。ここでは異種金属微細接合の前段階として、単一元素金属からなるサンプルに急激な形状（幅）変化を導入し、原子集積へのその寄与について検討した。同サンプルにおける温度分布を評価して、電子流の場所による急激な変化と共に原子集積に寄与することを考察し、並行してサンプルを作製して、形状の急変部において原子の集積が起こることを実証した。ここに先端径がおよそ10 μm の極微小熱電対を自作して通電時の当該サンプルの温度分布を実測し、意図した温度分布が形成されていることを確認した。

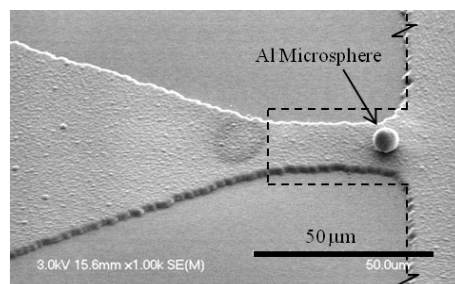


図2 急激な形状変化を有するサンプルによるマイクロ材料創製

(3) 金属微細ワイヤ/構造体アレイの実現

2本の微細ワイヤを同時創製することを基本に取上げ、直列回路型試験体が適する理由を通電中の電圧計測を踏まえた原子排出孔間の相互作用に関する考察より詳細に明らかにした。また微細ワイヤ、構造体アレイ

の実現において重要な原子排出孔の付与方法に関して、酸化ナノワイヤを当該孔の鋳型として用い、これを還元消失させる新規手法を考案した（特許出願）。この手法によれば、これまでの収束イオンビームを用いる手法よりも微小な孔を容易に作製でき、さらに微小孔のアレイ作製も可能である。

その他、エレクトロマイグレーションにより作製した Al 微細ワイヤの弾塑性特性を取得し、当該ワイヤの降伏応力がバルク材に比べて 20 倍高いことを実証した。また原子拡散現象を利用して酸化鉄ナノワイヤアレイを短時間に作製することにも成功している。

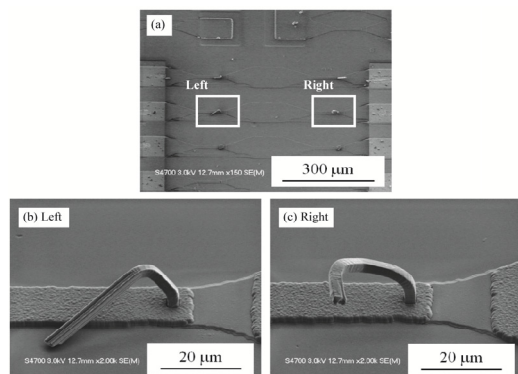


図3 直列回路型試験体による2本の微細ワイヤの同時創製

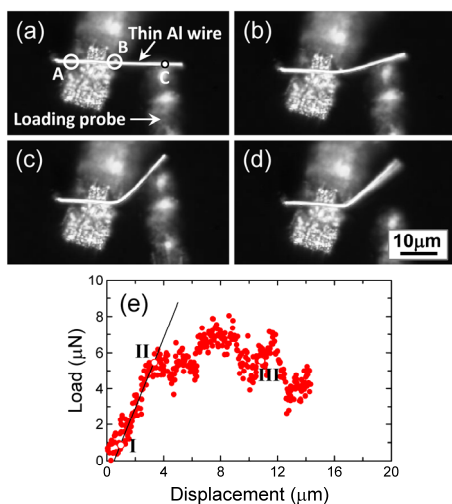


図4 Al マイクロワイヤの曲げ試験（バルクと比較して 20 倍程度高い降伏応力）

(4) 長い金属マイクロ・ナノワイヤの作製
エレクトロマイグレーションによる長い金属マイクロ・ナノワイヤ創製には、通電によるサンプル断線寿命が長いことが重要であり、これを実現するため従来のサンプル構造を発展させたサンプル構造を考案した。具体的には、保護膜を従来の絶縁体である TEOS 膜から導電性を有する膜に変えることで主の原子拡散源である金属配線が一部断線しても継続して通電が可能となるようにした。同時に、金属マイクロ・ナノワイヤ作製のための最適な電流密度と基板温度との関係を実験により検討した。

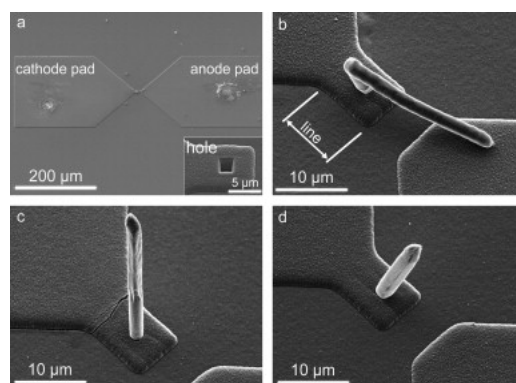


図5 導電性保護膜サンプルを用いて創製した金属マイクロワイヤの例

(5) 高機能断面を有するマイクロ構造体の作製

高機能性を追求した断面を有するマイクロ構造体作製のためのサンプルを作製した。具体的には、保護膜に原子排出孔を作製するにあたり、従来方法である集束イオンビーム装置を用いた手法のみならず、フォトリソグラフィーによってもこれが達成できることを実証した。フォトリソグラフィーを用いて高機能断面を有する排出孔を作製することは、マイクロ構造体の大量創製を見据えた製作時間の短縮につながる。これにより形状の異なる排出孔を複数作製し、実験に供した。

(6) 金属微細ワイヤ/構造体アレイの実現

10 本のアレイ構造を有する新規サンプルを作製した。ここに前述の導電性保護膜を用いることで、アレイ構造における断線の危険性が減るばかりでなく、サンプル製作工程の大幅短縮を実現した。また、酸化ナノワイヤアレイを鋳型とし、これを還元することにより、ナノスケールの原子排出孔アレイを提供する保護膜作製の基礎を確立した。

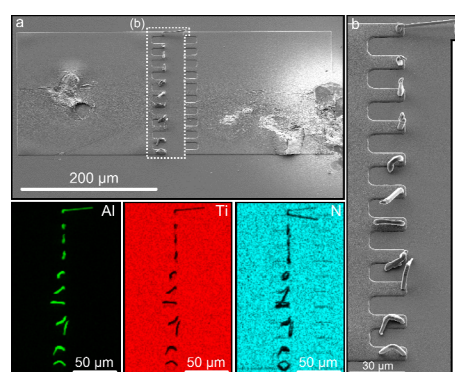


図6 アレイ構造サンプルを用いた 10 本の微細ワイヤの同時創製

(7) 電磁気的素子としての金属マイクロリング・コイルの作製

ジュール熱を用いた金属細線の省エネルギー熱処理法を提案し、当該手法により軟化させた銅マイクロ細線を塑性加工して、直径と線径の比がわずか 3 程度の金属マイクロコイルを作製することに成功した。さらに作製

したマイクロコイルを永久磁石上に配置して交流電流を付与し、当該構造体の電磁気的アクチュエーション機能を確認した。また作製した CuO ナノワイヤに Pt を被覆した後、この 2 層構造体を加熱してナノワイヤのみをクリープ流動させることにより、マイクロコイル構造を作製し、さらにその発生磁場を評価した。

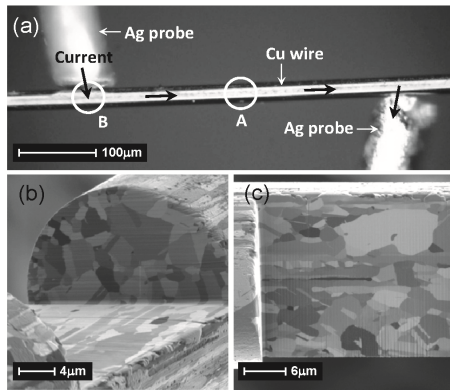


図 7 ジュール熱を用いた金属細線の熱処理（電気炉を使用した熱処理に比べて格段に省エネルギー）

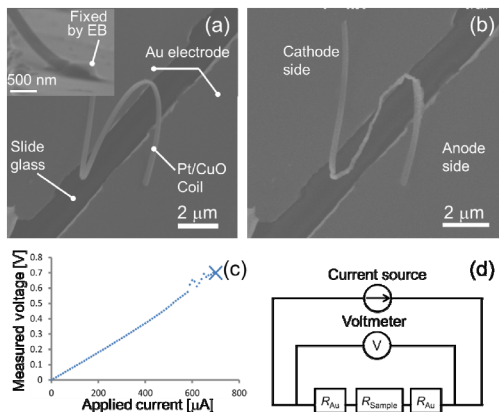


図 8 クリープ流動を利用したマイクロコイル構造の作製

(8) 力学的素子としてのマイクロ剛性機構の作製

金属 2 層ナノチューブを作製した。またその構造体の力学試験を実施して当該構造体がマイクロ剛性機構の要素として利用可能であることを確認した。

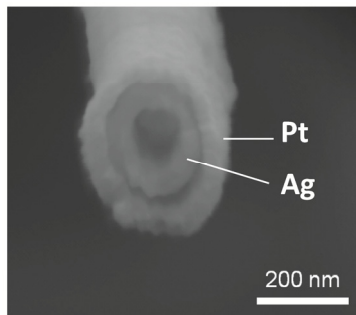


図 9 金属 2 層ナノチューブ

(9) 熱的素子としての微細熱交換器の実現
直径の異なる様々な元素の金属細線を大気中、および真空中でジュール熱により切断し、切断に要した電流値の比較より大気中では細線表面からの放熱が顕著に生じていることを明らかにした。

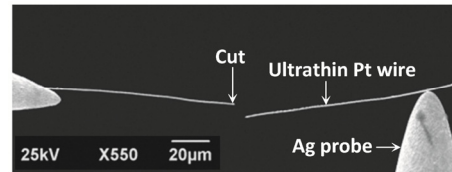


図 10 ジュール熱による金属細線の切断の一例（細線は中央で切断される）

(10) 効率的なマイクロ・ナノ構造体創製指針の策定と応用への提言

TiN や CrN といった導電性材料を保護膜として新たに使用することで、従来の半分以下となる作製工程の短縮に成功し、効率的な構造体創製に導電性保護膜の使用が推奨されることを示した。また導電性保護膜と新たに考案した楯状サンプル構造を用いることで 10 本以上のマイクロ構造体の創製に初めて成功し、導電性保護膜と楯状サンプル構造の融合が、効率的な構造体創製への応用に有効であることを示した。

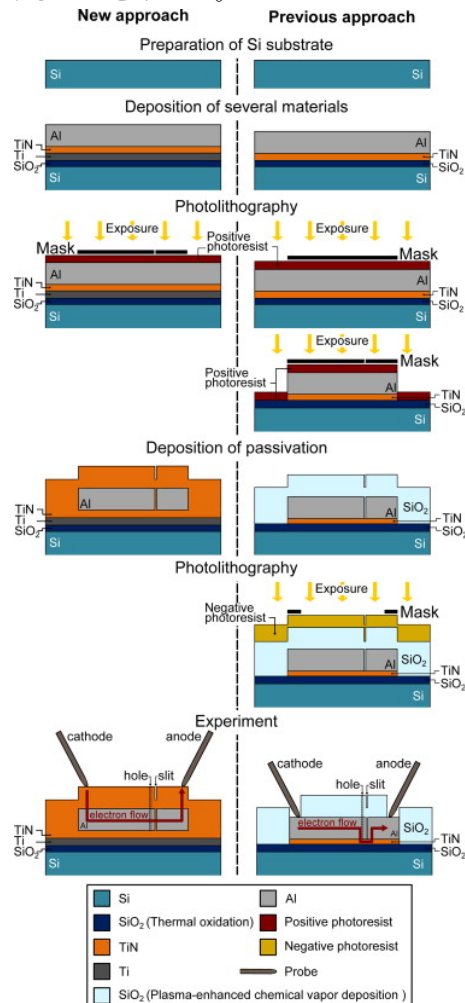


図 11 導電性保護膜を用いた新しいサンプルの考案（作製時間を従来の半分に短縮）

5. 主な発表論文等
(研究代表者、研究分担者及び連携研究者には下線)

[雑誌論文] (計 16 件)

1. X. Zhao, Y. Kimura, M. Saka, Analyzing Electromigration near a Right-Angled Corner Composed of Dissimilar Metals by Investigating the Effect of Material Combination on Atomic Flux Divergence, Japanese Journal of Applied Physics, 査読有, 2014, 印刷中.
2. Y. Toku, M. Muraoka, Electromagnetic Properties of Microcoils Fabricated from Self-Bending Coated Nanowires via Viscous Flow of Core Material, Nanoscience and Nanotechnology Letters, 査読有, 2014, 印刷中.
3. R. Zanma, M. Saka, Multiple Al Micro Materials Fabrication by Utilising Electromigration, International Journal of Materials and Structural Integrity, 査読有, 2014, 印刷中.
4. Y. Kimura, T. Sasaki, M. Saka, Use of CrN Passivation for Fabricating Al Micro-Materials by Electromigration, Advanced Materials Research, 査読有, Vol.909, 2014, 67-71.
DOI: 10.4028/www.scientific.net/AMR.909.67
5. Y. Kimura, M. Saka, Fabrication of Multiple Al Micro-Materials by Electromigration Using a Comb Pattern and a Conductive Passivation Film, Advanced Materials Research, 査読有, Vol.909, 2014, 36-40.
DOI: 10.4028/www.scientific.net/AMR.909.36
6. Y. Kimura, M. Saka, Simplified Processes Using Conductive Passivation Film for the Fabrication of Al Micro-Wires by Electromigration, Materials Letters, 査読有, Vol.116, 2014, 278-281.
DOI: 10.1016/j.matlet.2013.11.044
7. H. Tohmyoh, M. Ishihara, Local Modification of Micro Cu Wires with Current, Applied Physics Express, 査読有, Vol.6, 2013, 077302, 4 pages.
DOI: 10.7567/APEX.6.077302
8. F. M. Kamal, Y. Li, M. Saka, Fabrication of Al Microspheres by Electromigration Using a Metal Line with a Sudden Change in Geometrical Shape, Optoelectronics and Advanced Materials - Rapid Communications, 査読有, Vol.7, 2013, 314-318.
9. Y. Toku, K. Kobayashi, M. Muraoka, Repositioning Technique in Nanowire Manipulation by Oscillating Gripper, Micro & Nano Letters, 査読有, Vol.8, 2013, 63-65.
DOI: 10.1049/mnl.2012.0665
10. H. Tohmyoh, A. Watanabe, Fabrication of Single-Crystalline Iron Oxide Fe_3O_4 Nanowires from an Oxidized Fe Plate Subjected to Bending Stress, Journal of the Physical Society of Japan, 査読有, Vol.82, 2013, 044804, 4 pages.
DOI: 10.7566/JPSJ.82.044804
11. H. Tohmyoh, T. Tanaka, M. Fujimori, M. Saka, Joule Heat Welding of Thin Platinum and Tungsten Wires and the Thermoelectric Effects around Bi-Metal Junctions, Journal of Micro and Nano-Manufacturing, 査読有, Vol.1, 2013, 024501, 4 pages.
DOI: 10.1115/1.4024082
12. H. Tohmyoh, M. Fujimori, Microstructural and Electrical Characterization of Joule Heat Welds in Ultrathin Pt Wires, Physica E, 査読有, Vol.46, 2012, 33-37.
DOI: 10.1016/j.physe.2012.09.003
13. H. Tohmyoh, S. Fukui, Manipulation and Joule Heat Welding of Ag Nanowires Prepared by Atomic Migration, Journal of Nanoparticle Research, 査読有, Vol.14, 2012, 1116, 9 pages.
DOI: 10.1007/s11051-012-1116-x
14. H. Tohmyoh, M.A.S. Akanda, Y. Nobe, Mechanical Properties of Thin Al Wires Prepared by Electromigration, Journal of the Physical Society of Japan, 査読有, Vol.81, 2012, 094803, 4 pages.
DOI: 10.1143/JPSJ.81.094803
15. M. Saka, X. Zhao, Analysis of the Temperature Field Near a Corner Composed of Dissimilar Metals Subjected to a Current Flow, International Journal of Heat and Mass Transfer, 査読有, Vol.55, 2012, 6090-6096.
DOI: 10.1016/j.ijheatmasstransfer.2012.06.022
16. H. Tohmyoh, S. Ishikawa, M. Muraoka, Non-Contact Evaluation of the Electrical Conductivity of Thin Metallic Films by Eddy Current Microscopy, Surface and Interface Analysis, 査読有, Vol.44, 2012, 1294-1298.
DOI: 10.1002/sia.5005

[学会発表] (計 21 件)

1. 木村康裕, 坂真澄, 異種金属微細接合角部の電子流集中による原子集積とマイクロ材料創製, 日本機械学会東北支部第49期総会・講演会, 2014年3月14日, 東北大学(仙台市).
2. 佐々木崇紘, 木村康裕, 坂真澄, エレクトロマイグレーションによるAl微細材料創製に与える導電性保護膜の影響に関する研究, 日本機械学会東北学生会第44回学生員卒業研究発表講演会, 2014年3月11日, 山形大学(米沢市).
3. 徳悠葵, 村岡幹夫, 金属被覆ナノワイヤの通電による形態変化の観察, 日本機械学会M&P2013, 2013年11月9日, 首都大学東京(八王子市).
4. M. Saka (Plenary Lecture), On the Joule Heating Residue Vector in an Electro-Thermal Problem, ISPT2013, 2013年9月28日, Palgong Hotel (Daegu, Korea).

5. Y. Kimura, M. Saka, An Improved Approach for Fabrication of Al Micro Materials by Electromigration, Int. Symp. for the 70th Anniversary of the Tohoku Branch of the Chemical Society of Japan, 2013年9月28日, Tohoku University (Sendai).
 6. H. Tohmyoh, On the Joule Heat Cutting and Welding for Various Metallic Nanowires under Vacuum Environment, IVC-19 / ICN+T 2013 and partner conferences, 2013年9月12日, Palais des Congrès de Paris (Paris, France).
 7. 趙旭, 村岡幹夫, ファラノール, 固相還元法を用いたナノ多孔質膜の作製, 日本機械学会2013年度年次大会, 2013年9月10日, 岡山大学 (岡山市).
 8. 徳悠葵, 村岡幹夫, コア流動法により作製した金属被覆マイクロコイルの発生磁場評価, 日本機械学会2013年度年次大会, 2013年9月10日, 岡山大学 (岡山市).
 9. 青山美幸, 坂真澄, 異種金属微細接合部での原子の蓄積とはんだのEM評価への応用, 日本機械学会東北支部第48期総会・講演会, 2013年3月15日, 東北大学 (仙台市).
 10. 木村康裕, 坂真澄, 配線の低電気抵抗率化と高信頼化, 第27回エレクトロニクス実装学会春季講演大会, 2013年3月15日, 東北大学 (仙台市).
 11. 燈明泰成, アカンダ M.A. サラム, 野辺佑樹, 坂真澄, 単結晶 Al マイクロ細線のヤング率と降伏応力について, 日本機械学会第20回機械材料・材料加工技術講演会, 2012年12月2日, 大阪工業大学 (大阪市).
 12. 渡邊彬仁, 燈明泰成, 外部応力負荷による鉄平板からの単結晶鉄ナノワイヤの大量作製, 日本機械学会 M&M2012 材料力学カンファレンス, 2012年9月22日, 愛媛大学 (松山市).
 13. 村岡幹夫, 高木健次, 固相還元法による中空ナノ構造体の作製, 日本機械学会東北支部第48期秋季講演会, 2012年9月22日, 八戸工業高等専門学校 (八戸市).
 14. K. Takagi, M. Muraoka, Conditions of Heating Reduction in Fabrication of Nanotubes from Metal-Oxide Nanowires Coated with a Reducing Agent, ASMP2012, 2012年8月31日, Indian Institute of Technology Madras (Chennai, India).
 15. H. Tohmyoh, A. Watanabe, Fabrication of Single-Crystalline Fe Nanowires from Oxidized Fe Plate, ThinFilms2012, 2012年7月16日, Singapore Management University (Singapore).
 16. H. Tohmyoh, Joule Heat Welding of Ag Nanowires and Their Success Conditions in Comparison with Fracture Mechanics, APCFS-MM 2012, 2012年5月15日, BEXCO Haeundae Centum Hotel (Busan, Korea).
 17. 木村康裕, 趙旭, 坂真澄, 異種金属微細接合領域の角部近傍におけるエレクトロマイグレーションによる原子流束の発散に関する理論的研究, 日本機械学会東北学生会第42回卒業研究発表講演会, 2012年3月6日, 福島高専 (いわき市).
 18. 青山美幸, F. M. カマル, 燈明泰成, 坂真澄, ジュール熱により微小領域に形成される温度分布の評価, 日本機械学会東北学生会第42回卒業研究発表講演会, 2012年3月6日, 福島高専 (いわき市).
 19. R. Zanma, M. Saka, Multiple Al Micro Materials Fabrication by Utilizing Electromigration, EMAP2011, 2011年12月13日, Hotel Kyoto Garden Palace, (Kyoto).
 20. F. M. Kamal, M. Saka, An Approach Using Sudden Change in Geometrical Shape of a Sample for Fabricating Micro/Nano Metallic Materials Utilizing Electromigration, EMAP2011, 2011年12月13日, Hotel Kyoto Garden Palace (Kyoto).
 21. 残間諒, 坂真澄, エレクトロマイグレーションによるAl微細ワイヤの複数創製に関する研究, 日本機械学会東北支部第47期秋季講演会, 2011年9月22日, 山形大学工学部 (米沢市).
- [図書] (計1件)
1. M. Muraoka, Springer, Acoustic Scanning Probe Microscopy, Eds. D. Passeri, F. Marinello and E. Savo, (Chapter 7, Enhanced sensitivity of AFAM and UAFM by concentrated-mass cantilevers を執筆), 2013, 189-226.
- [産業財産権]
- 出願状況 (計1件)
- 名称: 中空ナノ構造体の製造方法
 発明者: 村岡幹夫
 権利者: 国立大学法人秋田大学
 種類: 特許
 番号: 特願 2012-055052
 出願年月日: 平成 24 年 3 月 12 日
 国内外の別: 国内
6. 研究組織
- (1) 研究代表者
 坂 真澄 (SAKA, Masumi)
 東北大学・大学院工学研究科・教授
 研究者番号: 20158918
 - (2) 研究分担者
 村岡 幹夫 (MURAOKA, Mikio)
 秋田大学・大学院工学資源学研究科・教授
 研究者番号: 50190872
- 燈明 泰成 (TOHMYOH, Hironori)
 東北大学・大学院工学研究科・准教授
 研究者番号: 50374955