

課題番号	GR037
------	-------

**先端研究助成基金助成金(最先端・次世代研究開発支援プログラム)  
実施状況報告書(平成24年度)**

本様式の内容は一般に公表されます

研究課題名	環境調和型ゼロエミッション次世代半導体配線形成方法の研究開発
研究機関・ 部局・職名	東京工業大学・精密工学研究所・准教授
氏名	曾根 正人

1. 当該年度の研究目的

本プロジェクトでは、M-SNP技術における基礎及び応用研究を進め、本方法の完成を目的としている。平成24年度では、平成22及び23年度の内容を含め、以下を目的とする。

- ① M-SNP 反応のめっき成長制御の研究および半導体配線実験(平成22～25年度) 小型 M-SNP バッチ装置を用い、素反応の解析、界面活性剤の探索、半導体配線実験を行う。
- ② 反応容器中の超臨界エマルション及び超臨界二酸化炭素の流体力学的な解析(平成24～25年度) 200mlスケールの全自動型「小型 M-SNP 装置」を用いて銅めっきを行うとともに、流体力学的パラメータを変化させ、めっき反応と流れとの相関を明らかにする。
- ③ 量子科学計算を用いた反応解析の研究 (平成24～25年度)めっきの素反応を解析するために、量子科学計算を用いた解析を試みる。

2. 研究の実施状況

- ① M-SNP 反応のめっき成長制御の研究および半導体配線実験(平成22～25年度)  
平成22年度から開始されたこの研究項目も33回の国際学会及び24報の学術論文による発表を行った。この結果をまとめると、M-SNP の結晶成長がボトムアップ成長していること、エマルションにおける二酸化炭素の分量により成長挙動が変化することなど、大きな成果が得られた。平成24年度は更にめっきにおける単結晶成長の新しいメカニズムの発見や無機材料の薄膜作成に成功した。
- ② 反応容器中の超臨界エマルション及び超臨界二酸化炭素の流体力学的な解析(平成24～25年度)  
平成24年度で完成した全自動型「小型 M-SNP 装置」によるめっき反応を行い、反応条件に対するめっき皮膜の研究を行っている。この結果、銅皮膜表面をより平滑にする条件を見出した。この結果を平成25年度の国際学会で発表するとともに、埋め込みめっきに応用する。更にこの結果と流体の流れとの相関を明らかにする。
- ③ 量子科学計算を用いた反応解析の研究(平成24～25年度)  
平成22年度にワークステーションを購入しめっきの素反応を解析するために、量子科学計算を用いた解析を試みている。めっきの電気化学的反応は複雑系であり極めて計算が難しいが、奈良女子大学の黒子教授と共同で濃厚溶液構造の解析及びその素反応解析を試みている。

3. 研究発表等

<p>雑誌論文 計 12 件</p>	<p>(掲載済み一査読有り) 計 11 件</p> <ol style="list-style-type: none"> <li>1. Chiemi Ishiyama, Toshikazu Tasaki, Tso-Fu Mark Chang, and Masato Sone, "Effects of Specimen Dimensions on Adhesive Shear Strength between a Microsized SU-8 Column and Silicon Substrate", Japan Journal of Applied Physics, Vol.51, No.6, P.06FL19, Jun-12.</li> <li>2. Nao Shinoda, Tetsuya Shimizu, Tso-Fu Mark Chang, Akinobu Shibata, Masato Sone. "Filling of nanoscale holes with high aspect ratio by Cu electroplating using suspension of supercritical carbon dioxide in electrolyte with Cu particles", Microelectronic Engineering, Elsevier, Vol. 97C, pp. 126-129, Aug-12.</li> <li>3. Hirohito Imamura, Takashi Nagoshi, Akari Yoshida, Tso-Fu Mark Chang, Susumu Onaka, Masato Sone. Evaluation of anisotropic structure in electrodeposited Ni film using micro-sized cantilever, Microelectronic Engineering., Elsevier, Vol. 100 No. C pp. 25-27, Oct-12.</li> <li>4. Hiromichi Kurosu, Saki Nakanishi, Saori Kimura, Sungmin Kang, Xiaodong Li, Masato Sone, "Solid-state <sup>13</sup>C NMR Study of Banana Liquid Crystals. 1. Two Different Alkyl Tail-Group Packing Environments in the B7 Phase", Journal of Molecular Structure, Elsevier, Vol. 1008, pp. 49-53, Nov-12.</li> <li>5. 曾根正人, 清水哲也, Tso-Fu Mark Chang. "超臨界ナノプレーティング法の開発と超微細配線への応用", 精密工学会誌, 精密工学会, Vol. 78, No. 12, Dec-12.</li> <li>6. Tso-Fu Mark Chang, Takashi Nagoshi, Chiemi Ishiyama, Tatsuo Sato, Masato Sone, "Intact Ultrathin Ni Films Fabricated by Electroplating with Supercritical CO<sub>2</sub> Emulsion", Applied Mechanics and Materials., No.284-287, pp.147-151, Jan-13</li> <li>7. Takashi Nagoshi, Tso-Fu Mark Chang, Tatsuo Sato, Masato Sone, "Micro-compression test of nanocrystalline Nickel deposited by supercritical carbon dioxide emulsion", Applied Mechanics and Materials., No.284-287, pp.163-167, Jan-13</li> <li>8. Tso-Fu Mark Chang, Tetsuya Shimizu, Chiemi Ishiyama, Masato Sone, "Effects of Pressure on Electroplating of Copper using Supercritical Carbon Dioxide Emulsified Electrolyte", Thin Solid Films., No.529, pp.25-28, Jan-13</li> <li>9. Nao Shinoda, Tetsuya Shimizu, Tso-Fu Mark Chang, Akinobu Shibata, Masato Sone, "Cu electroplating using suspension of supercritical carbon dioxide in copper-sulfate-based electrolyte with Cu particles", Thin Solid Films., No.529, pp.29-33, Jan-13</li> <li>10. Taiki Uemura, Tso-Fu Mark Chang, Akinobu Shibata, Masato Sone, "Abnormally large Ni grains epitaxially grown by electrodeposition on Cu substrate", Thin Solid Films., No.529, pp.385-388, Jan-13</li> <li>11. Hiromichi Kurosu, Yumi Endo, Saori Kimura, Tomoko Hashimoto, Motoi Harada, Eun-Woo Lee, Masato Sone, Junji Watanabe, Sungmin Kang, "Solid-state <sup>13</sup>C NMR study of banana liquid crystals 2 : Alkyl tail-group packing environments in the hexagonal columnar phase", Journal of Molecular Structure., No.1040, pp.117-121, Mar-13</li> </ol> <p>(掲載済み一査読無し) 計 0 件</p> <p>(未掲載) 計 1 件</p> <ol style="list-style-type: none"> <li>1. Tetsuya Shimizu, Nao Shinoda, Tso-Fu Mark Chang, Akinobu Shibata, Masato Sone, "Crystal growth on novel Cu electroplating using suspension of supercritical CO<sub>2</sub> in electrolyte with Cu particles", Surface &amp; Coating Technology., in press, Feb-13</li> </ol>
<p>会議発表 計 20 件</p>	<p>専門家向け 計 19 件</p> <ol style="list-style-type: none"> <li>1. Masato Sone. "Metallization method on polymeric materials by electroplating method using supercritical CO<sub>2</sub> toward application into bioelectronics" (Invited Lecture), Biosensors &amp; Bioelectronics-2012, International Conference and Exhibition on Biosensors &amp; Bioelectronics, OMICS Group, Vol. 2, no. 2, p. 61, May-12.</li> <li>2. 曾根正人, "超臨界二酸化炭素を用いた電気めっき方法における反応制御と装置開発" (招待講演), 反応工学会 CVD 反応分科会第 15 回シンポジウム, 化学工学会, May-12.</li> <li>3. 曾根正人, "超臨界二酸化炭素を利用したマイクロマテリアルの精密成形" (招待講演), センサ・マイクロマシンと応用システムシンポジウム「機能性材料と新機能デバイスの可能性」, Jul-12.</li> <li>4. Masahide Mutoh, Takashi Nagoshi, Tso-Fu Mark Chang, Masato Sone. "Effect of current density on mechanical properties of electrodeposited Cu film evaluated by micro-pillar compression test method", ISE2012, 63rd annual meeting of the International Society of Electrochemistry, Aug-12.</li> </ol>

	<p>5. Tso-Fu Mark Chang, Chiemi Ishiyama, Donald W. Kirk, Masato Sone. "Periodic-Plating-Characteristic of Electroplating with Supercritical Carbon CO2 Emulsion", ISE2012, 63rd annual meeting of the International Society of Electrochemistry, Aug-12.</p> <p>6. Tetsuya Shimizu, Yuma Ishimoto, Tso-Fu Mark Chang, Tatsuo Sato, Masato Sone. "Continuous flow reaction system for nanoscale wiring by Cu electroplating using suspension of supercritical CO2 in electrolyte with Cu particles", 38th International Conference on Micro and Nano Engineering, (MNE2012), Sep-12.</p> <p>7. Masahide Mutoh, Takashi Nagoshi, Tso-Fu Mark Chang, Masato Sone. "Micro compression test using non-tapered micro-pillars of electrodeposited Cu", 38th International Conference on Micro and Nano Engineering, (MNE2012), Sep-12.</p> <p>8. Hirohito Imamura, Takashi Nagoshi, Tso-Fu Mark Chang, Tatsuo Sato, Masato Sone. "Multidirectional strength of micro-sized cantilever composed of columnar grains in electrodeposited Ni, 38th International Conference on Micro and Nano Engineering", (MNE2012), Sep-12.</p> <p>9. Takashi Nagoshi, Tso-Fu Mark Chang, Tatsuo Sato, Masato Sone. "Evaluation of Mechanical properties of electroplated Nickel", 38th International Conference on Micro and Nano Engineering, (MNE2012), Sep-12.</p> <p>10. Tso-Fu Mark Chang, Chiemi Ishiyama, Tatsuo Sato, Masato Sone. "Quantitative Study on Removal of SU-8 Photoresist Patterns by Supercritical CO2 Emulsion", 38th International Conference on Micro and Nano Engineering, (MNE2012), Sep-12.</p> <p>11. Junpei Matsuzaki, Chiemi Ishiyama, Masato Sone, Yakichi Higo. "Effects of Chemical Components on the Bending Properties of Micro-sized Cantilevers in SU-8", 38th International Conference on Micro and Nano Engineering, (MNE2012), Sep-12.</p> <p>12. 曾根正人, "超臨界二酸化炭素を用いた電気めっき技術とその応用"(招待講演), 表面技術協会 めっき部会, Sep-12.</p> <p>13. Masato Sone, Tetsuya Shimizu, Nao Shinoda, Tso-Fu Mark Chang. "Application of Electrodeposition using Supercritical Carbon Dioxide Emulsion into Integrated Circuit Technology" (Invited Lecture), TSCFA2012, Oct-12.</p> <p>14. Masato Sone, (Invited Lecture), "Electrodeposition using Supercritical Carbon Dioxide Emulsion—Application into Integrated Circuit Technology &amp; Micro Electro Mechanical Systems—", National Taiwan University, Oct-12</p> <p>15. Takashi Nagoshi, Tso-Fu Mark Chang, Tatsuo Sato, Masato Sone. "Micro-compression test of nanocrystalline Nickel deposited by supercritical carbon dioxide emulsion", ICETI 2012, The 2nd International Conference on Engineering and Technological Innovation, Applied Mechanics and Materials, Nov-12.</p> <p>16. Tso-Fu Mark Chang, Takashi Nagoshi, Chiemi Ishiyama, Tatsuo Sato, Masato Sone. "Intact Ultrathin Ni Films Fabricated by Electroplating with Supercritical CO2 Emulsion", ICETI 2012, The 2nd International Conference on Engineering and Technological Innovation, Applied Mechanics and Materials, Nov-12.</p> <p>17. Takashi Nagoshi, Yuuki Karasawa, Akinobu Shibata, Tatsuo Sato, Masato Sone. "Deformation Behavior of Fully Nano-Twinned BCT Material in a Micro-Compression Test", MRS - Fall Meeting 2012, MRS Proceeding, Dec-12.</p> <p>18. Hirohito Imamura, Takashi Nagoshi, Tso-Fu Mark Chang, Tatsuo Sato, Masato Sone. "Deformation behavior of electrodeposited Ni film by using micro-compression test", MRS - Fall Meeting 2012, MRS Proceeding, Dec-12.</p> <p>19. 曾根正人, "超臨界二酸化炭素エマルションを用いた Cu 電気めっき法による微細埋込配線技術 (招待講演)", 日本機械学会 関東支部総会講演会, Mar-13</p> <p>一般向け 計1件</p> <p>1 曾根正人, 「二酸化炭素からエレクトロデバイスを作成する」, 高校生・一般向け講演会「東工大が誇る若手研究者たち」 2012年8月30日</p>
<p>図書 計3件</p>	<p>1. 曾根正人, "半導体・MEMSのための超臨界流体技術 (近藤英一監修)", コロナ社, Jun-12.</p> <p>2. 曾根正人, "環境調和型ゼロエミッション次世代半導体配線形成方法の研究開発", 化学工学, 化学工学学会, Vol. 76, No. 4, Apr-12</p> <p>3. Masato Sone, Hiroki Uchiyama, Tso-Fu Mark Chang, "Chapter 11: Crystal Growth by Electrodeposition with Supercritical Carbon Dioxide Emulsion", Advanced Topics on Crystal Growth., vol.11, 335-376, Feb-13</p>

様式19 別紙1

<p>産業財産権 出願・取得状 況  計0件</p>	<p>(取得済み) 計0件  (出願中) 計0件</p>
<p>Webページ (URL)</p>	<p><a href="http://www.ames.pi.titech.ac.jp/">http://www.ames.pi.titech.ac.jp/</a></p>
<p>国民との科 学・技術対話 の実施状況</p>	<p>「二酸化炭素を利用してエレクトロデバイスを作成する」 2012年8月30日 東京工業大学大岡山キャンパス(東工大蔵前会館 ロイヤルブルーホール) 高校生・一般向け公開講演会 参加者 37名:主に高校生を対象として最先端の科学・技術研究の取り組みをわかりやすく講演し活発な質疑 応答を行った。  東京工業大学すずかけ祭・研究大公開「触れてみよう!最先端の材料科学」曾根正人 2012年5月20日 東京工業大学すずかけ台キャンパス・R2棟第2セミナー室において、細田秀樹教授、稲邑朋也准教授と一緒 に、主に中学生、高校生を対象として最先端の科学・技術研究の取り組みをわかりやすく講演し活発な質疑 応答を行った。</p>
<p>新聞・一般雑 誌等掲載 計0件</p>	
<p>その他</p>	

4. その他特記事項

実施状況報告書(平成24年度) 助成金の執行状況

本様式の内容は一般に公表されず

1. 助成金の受領状況(累計)

(単位:円)

	①交付決定額	②既受領額 (前年度迄の 累計)	③当該年度受 領額	④(=①-②- ③)未受領額	既返還額(前 年度迄の累 計)
直接経費	97,000,000	78,316,000	11,884,000	6,800,000	0
間接経費	29,100,000	23,494,800	3,565,200	2,040,000	0
合計	126,100,000	101,810,800	15,449,200	8,840,000	0

2. 当該年度の収支状況

(単位:円)

	①前年度未執 行額	②当該年度受 領額	③当該年度受 取利息等額 (未収利息を 除く)	④(=①+②+ ③)当該年度 合計収入	⑤当該年度執 行額	⑥(=④-⑤) 当該年度未執 行額	当該年度返還 額
直接経費	9,791	11,884,000	1,610	11,895,401	11,802,160	93,241	0
間接経費	0	3,565,200	0	3,565,200	3,565,200	0	0
合計	9,791	15,449,200	1,610	15,460,601	15,367,360	93,241	0

3. 当該年度の執行額内訳

(単位:円)

	金額	備考
物品費	2,000,748	超臨界CO2送液ポンプ、チタン板、薬品等
旅費	7,069,656	国際会議(6回延17名)、招聘等
謝金・人件費等	1,441,786	非常勤人件費、講演謝金等
その他	1,289,970	学会参加費、論文掲載料等
直接経費計	11,802,160	
間接経費計	3,565,200	
合計	15,367,360	

4. 当該年度の主な購入物品(1品又は1組若しくは1式の価格が50万円以上のもの)

物品名	仕様・型・性能 等	数量	単価 (単位:円)	金額 (単位:円)	納入 年月日	設置研究機関 名
超臨界CO2送液ポンプ	PU-2080-CO2	1	882,000	882,000	2012/10/23	東京工業大学
				0		
				0		