

**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23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	曽根 正人

1. 当該年度の研究目的

平成22年度2月から開始された本プロジェクトでは、M-SNP技術における基礎研究と応用研究を進め、本方法の完成を目的としている。平成23年度では、平成22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**（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 **小型 M-SNP 装置の製作**（平成22～23年度） 200mlスケールで超臨界洗浄と超臨界乾燥、M-SNP を連続で実行できる全自動型「小型 M-SNP 装置」を作成する。
- ③ **小型 M-SNP 装置による半導体配線実験**（平成23～25年度） 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性質変化を明らかにする。

2. 研究の実施状況

① **M-SNP 反応のめっき成長制御の研究**（平成22～25年度）

小型 M-SNP バッチ装置を用い、素反応の解析を行った。特に二酸化炭素の組成比や銅粉の添加量などを変化させ、最適な M-SNP 反応条件を模索した。この結果、二酸化炭素導入による銅シード層の溶解挙動を明らかにし、銅添加量の最適値を見出した。この結果を基に、直径60nm アスペクト比2のホールに M-SNP 法により銅を埋め込み、欠陥のない配線を電子顕微鏡により明らかにした。更にこの方法を直径70nmアスペクト比5のホールに応用し、無欠陥銅埋め込みに成功した。この結果を国際学会に発表し、6つの国際学会ポスター賞を受賞し、11件の学術論文により報告した。

② **小型 M-SNP 装置の製作**（平成22～23年度）

全自動型 M-SNP 装置を平成22年度に設計し、本年度製作した。この結果、シーケンサ制御により反応を制御でき、2重循環システムによりエマルジョンの安定化を図り、多重の安全装置を備えた装置が完成した。この装置は第一種高圧ガス製造装置に相当するため、神奈川県に申請し製造許可及び完成許可を受けた。（神奈川県指令工保第70004号）

③ **小型 M-SNP 装置による半導体配線実験**（平成23～25年度）

②で完成した装置により半導体配線をするため、平成23年度から継続して、現在超臨界二酸化炭素を含むエマルジョンの輸送特性の測定と、装置稼働のマニュアル化を進めている。

3. 研究発表等

<p>雑誌論文 計 11 件</p>	<p>(掲載済み一査読有り) 計 11 件</p> <ol style="list-style-type: none"> 1 Toshikazu Tasaki, Tso-Fu Mark Chang, Chiemi Ishiyama, Masato Sone, "Study on delamination mechanism of SU-8 micropillars on a Si-substrate under bend loading by Weibull analysis", Microelectronics Engineering, Elsevier, Vol. 88, pp. 2132-2134, Jun.2011 2 Tso-Fu Mark Chang, Masato Sone, "Function and Mechanism of Supercritical Carbon Dioxide Emulsified Electrolyte in Nickel Electroplating Reaction", Surface & Coating Technology, Vol. 205, pp. 3890-3899, 2011 3 Chiemi Ishiyama, Tso-Fu Mark Chang, Masato Sone, "Effects of Supercritical Carbon Dioxide Treatment on Bending Propertied of Micro-sized SU-8 Specimens", Microelectronics Engineering, Elsevier, Vol. 88, pp. 2272-2274, Jun.2011 4 Tso-Fu Mark Chang, Toshikazu Tasaki, Chiemi Ishiyama, Masato Sone, "Void-free nickel pattern electroplated with supercritical carbon dioxide emulsions", Microelectronics Engineering, Elsevier, Vol. 88, pp. 2225-2228, Jun. 2011 5 Nobuyuki Yoshida, Toshikazu Tasaki, Mark Chang, Akinobu Shibata, Chiemi Ishiyama, Masato Sone, "Pd-Ni-P metallic glass pattern with controllable microstructure fabricated by electroless alloy plating", Microelectronics Engineering, Elsevier, Vol. 88, pp. 2401-2404, Jun. 2011 6 Tso-Fu Mark Chang, Toshikazu Tasaki, Chiemi Ishiyama, Masato Sone, "Defect-Free Nickel Micro-pillars Fabricated at a High Current Density by Application of Supercritical Carbon Dioxide Emulsion", Industrial & Engineering Chemistry Research, ACS Publications, Vol. 50, No. 13, pp. 8080-8085, Jul.2011 7 Yuuki Karasawa, Akinobu Shibata, Masato Sone, Strengthening effect of twin boundaries in bcc crystal evaluated through a micro-bending test, MRS Proceedings, 1297, mrsf10-1297-p10-32, 2011 8 Takashi Nagoshi, Akinobu Shibata, Masato Sone, Mechanical Behavior on Micro-compression Test in Ultra-low Carbon Steel Produced by High Pressure Torsion, MRS Proceedings, 1297, mrsf10-1297-p10-33, 2011 9 Naofumi Naga, Rika Arai, Genzo Kikuchi, Akinori Toyota, Keiichi Noguchi, Masato Sone, Fukiko Shirae, Tomoka Gotoh, Hiromichi Kurosu. Crystalline structure of polyethylene containing vinylene units in the main chain, Polymer, Elsevier, Vol. 52, No. 21, pp. 4857-4866, Oct.2011 10 Fumihiro Wakai, Hirotaka Fukutome, Norihiro Kobayashi, Tomoyuki Misaki, Yutaka Shinoda, Takashi Akatsu, Masato Sone, Yakichi Higo. Direct observation of sintering mechanics of a single grain boundary, Acta Materialia, Vol. 60, pp. 507-516, Feb. 2012. 11 Hiroki Uchiyama, Tatsuro Endo, Masato Sone, "Direct Observation of Nodule Growth on Electroless Ni-P Deposition in Supercritical CO2 Emulsion", Journal of the Electrochemical Society, Electrochemical Society, Vol. 59, No. 2, pp. D114-D118, Jan. 2012. <p>(掲載済み一査読無し) 計 0 件</p> <p>(未掲載) 計 0 件</p>
<p>会議発表 計 21 件</p>	<p>専門家向け 計 20 件</p> <ol style="list-style-type: none"> 1 Tso-Fu Mark Chang, Chiemi Ishiyama, Masato Sone, "Electrochemical Study on Electroplating with Supercritical Carbon Dioxide Emulsion", 219th ECS Meeting in Montreal, Canada (May 1 - 6, 2011) 2 Takashi Nagoshi, Akinobu Shibata, Masato Sone, Yoshikazu Todaka, Uniform elongation of ultra-fine grained steels evaluated by micro-compression tests, MS&T 2011 meeting, in press, 2011/10 3 Yuuki Karasawa, Akinobu Shibata, Masato Sone, The mechanical properties of fully nanotwinned alloy with body-centered structure, E-MRS 2011 FALL MEETING, Walsaw, in press, 2011/9 4 Takashi Nagoshi, Akinobu Shibata, Masato Sone, Yoshikazu Todaka, The role of grain boundary character distribution on the mechanical behavior of ultra-fine grained ferrite, E-MRS 2011 FALL MEETING, Walsaw, in press, 2011/9 5 Nao Shinoda, Tetsuya Shimizu, Tso-Fu Mark Chang, Masato Sone, Filling of nanoscale holes with high aspect ratio by Cu electroplating using suspension of supercritical carbon dioxide

- in electrolyte with Cu particles, MNE2011 Fall Meeting, Belrin, in press, 2011/9
- 6 Taiki Uemura, Tso-Fu Mark Chang, Akinobu Shibata, Masato Sone, Fabrication method for single crystal Ni micro component by electrodeposition in additive free Watt's bath, MNE2011 Fall Meeting, Belrin, in press, 2011/9
- 7 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, MNE2011 Fall Meeting, Belrin, in press, 2011/9
- 8 Hirohito Imamura, Takashi Nagoshi, Masato Sone, Mechanical testing of electrodeposited Ni film parallel and vertical to crystal growth direction using micro-sized cantilever specimens, TACT2011, International Thin Film Conference, taipei, 2011/11
- 9 Tso Fu Mark Chang, Chiemi Ishiyama, Masato Sone, Effects of Pressure on Electroplating of Copper using Supercritical Carbon Dioxide, TACT2011, International Thin Film Conference, taipei, 2011/11
- 10 Mark Chang, Tetsuya Shimizu, CHIEMI ISHIYAMA, Masato Sone, Effects of Pressure on Electroplating of Copper using Supercritical Carbon Dioxide, TACT2011, International Thin Film Conference, taipei, 2011/11
- 11 Tetsuya Shimizu, Nao Shinoda, Tso-Fu Mark Chang, Akinobu Shibata, Masato Sone, Crystal growth on novel Cu electroplating using suspension of supercritical CO2 in electrolyte with Cu particles, TACT2011, International Thin Film Conference, taipei, 2011/11
- 12 Taiki Uemura, Tso-Fu Mark Chang, Akinobu Shibata, Masato Sone, Abnormal large grains epitaxially grown in electrodeposited Ni layer on Cu substrate, TACT2011, International Thin Film Conference, taipei, 2011/11
- 13 Nao Shinoda, Tetsuya Shimizu, Tso-Fu Mark Chang, Akinobu Shibata, Masato Sone, Novel Cu electroplating using suspension of supercritical carbon dioxide in copper-sulfate-based electrolyte with Cu particles, TACT2011, International Thin Film Conference, taipei, 2011/11
- 14 Nao Shinoda, Tetsuya Shimizu, Tso-Fu Mark Chang, Akinobu Shibata, Masato Sone. Cu electroplating reaction using suspension of supercritical carbon dioxide in electroplating solution with Cu particles, Taiwan Supercritical Fluid Association (TSCFA), pp. in press, Oct. 2011
- 15 Tso-Fu Mark Chang, Chiemi Ishiyama, Masato Sone. Application of Supercritical Carbon Dioxide Emulsion in Fabrication of Micro-Components for MEMS, Taiwan Supercritical Fluid Association (TSCFA), pp. in press, Oct. 2011
- 16 Masato Sone (Invitation lecture), "Application of Novel Cu electroplating using emulsion of supercritical carbon dioxide into integrated circuit technology", Industrial Technology Research Institute; ITRI, 10/27 2011
- 17 Masato Sone (Invitation lecture), "Metallization using Electrodeposition in Sc-CO2 Emulsion for Integrated Circuits and next generation MEMS", National Tsing Hua University, 10/27 2011
- 18 Tso-Fu Mark Chang, Chiemi Ishiyama, Masato Sone. Study of Supercritical CO2 Emulsion in Ni Electroplating and Application in Fabrication of Defect-Free Micromechanical Component with High Aspect Ratio, 2012 TMS Annual Meeting & Exhibition, Materials Processing Fundamentals, pp. in Press, Mar. 2012.
- 19 Tso-Fu Mark Chang, Chiemi Ishiyama, Masato Sone. Defect-free ultrathin nickel film fabricated by application of Sc-CO2 emulsion to control thickness of the diffusion layer, APCChE2012: 14th Asia Pacific Confederation of Chemical Engineering Congress, pp. in press, Feb. 2012.
- 20 曾根正人, 超臨界二酸化炭素を用いたマイクロマテリアル作成手法の開発, 第48回マイクロマテリアル部門委員会「マイクロマテリアルの製造プロセス」, Jan. 2012.

一般向け 計1件

- 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」10/1, 2011

様式19 別紙1

図書 計0件	
産業財産権 出願・取得状 況 計0件	(取得済み) 0件 (出願中) 0件
Webページ (URL)	http://www.ames.pi.titech.ac.jp/
国民との科 学・技術対話 の実施状況	<p>・高校生・一般向け公開講演会「二酸化炭素を利用してエレクトロデバイスを作成する」曾根正人(2011.10.1) 東京工業大学大岡山キャンパス・西2号館4階1号室(東工大主催、約55名参加):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。</p> <p>・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(2011.5.15) 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、東正樹教授、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>
新聞・一般雑 誌等掲載 計2件	<p>・文教ニュース(第2162号),P32に高校生・一般向け講演会「東工大が誇る若手研究者たち」が掲載</p> <p>・文教速報(第7654号),P16に「若手研究者が高校生らに講演」と掲載</p>
その他	

4. その他特記事項

実施状況報告書(平成23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	75,316,000	3,000,000	18,684,000	0
間接経費	29,100,000	22,594,800	900,000	5,605,200	0
合計	126,100,000	97,910,800	3,900,000	24,289,200	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	75,176,035	3,000,000	6,505	78,182,540	78,172,749	9,791	0
間接経費	22,552,811	900,000	0	23,452,811	23,452,811	0	0
合計	97,728,846	3,900,000	6,505	101,635,351	101,625,560	9,791	0

3. 当該年度の執行額内訳

(単位:円)

	金額	備考
物品費	68,101,012	実験装置、部品、試薬等
旅費	8,131,001	学会参加、情報収集、研究打合せ等
謝金・人件費等	1,239,699	事務員人件費、講演謝金
その他	701,037	学会参加費、実験機器修理等
直接経費計	78,172,749	
間接経費計	23,452,811	
合計	101,625,560	

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
電気化学測定システム	ZPLOT/CORR 1252S 1287S	1	4,989,600	4,989,600	2011/5/19	東京工業大学
シミュレーション用 ワークステーション	HPC5000-Z800- SIP	1	1,995,000	1,995,000	2011/8/11	東京工業大学
全自動圧力調整弁	BP-2080	1	714,000	714,000	2011/7/12	東京工業大学
ボックス炉	KBF442N1	1	662,025	662,025	2011/8/31	東京工業大学
小型M-SNP装置	アイテック社製	1	39,900,000	39,900,000	2012/3/16	東京工業大学
単結晶成長装置	東栄科学産業製	1	15,750,000	15,750,000	2012/3/16	東京工業大学