

Title	微細電極を用いる放電とそれによるマイクロ溶融現象の基礎的研究
Author(s)	尾崎, 公洋
Citation	大阪大学, 1994, 博士論文
Version Type	VoR
URL	https://doi.org/10.11501/3094177
rights	
Note	

Osaka University Knowledge Archive : OUKA

<https://ir.library.osaka-u.ac.jp/>

Osaka University

微細電極を用いる放電とそれによる
マイクロ溶融現象の基礎的研究

平成5年12月

尾崎公洋

目 次

第1章	緒 論.....	1
1. 1	研究の背景.....	1
1. 2	マイクロ溶融加工の可能性と研究目的.....	2
1. 3	本論文の構成.....	4
第2章	走査トンネル顕微鏡 (STM) の試作とその性能評価.....	7
2. 1	電極間電圧と電流密度の関係.....	7
2. 2	STM装置の試作.....	11
2. 3	実験材料.....	18
2. 4	蒸着表面の観察.....	19
2. 4. 1	銀基板上の金蒸着表面および金基板上の銀蒸着表面のSTM観察.....	19
2. 4. 2	蒸着表面の熱処理による変化.....	21
2. 5	試作STM装置の性能評価.....	22
2. 6	結言.....	24
第3章	走査トンネル顕微鏡による微小表面熱加工.....	26
3. 1	エネルギー密度と材料表面の相変化に関する予備的検討.....	26
3. 2	バイアス電圧とパワー密度.....	28
3. 3	実験方法.....	29
3. 4	実験結果.....	30
3. 4	結言.....	35
第4章	微細電極を用いたマイクロ放電現象とその特性.....	36
4. 1	実験方法.....	36
4. 2	直流電圧を加えたときの絶縁破壊.....	38
4. 2. 1	絶縁破壊時の電流の電圧依存性.....	38
4. 2. 2	電界増倍係数と電極先端曲率半径およびギャップ長の関係.....	41

4. 2. 3	絶縁破壊後の電流特性.....	48
4. 3	パルス電圧を加えたときの絶縁破壊.....	49
4. 3. 1	絶縁破壊時の電流および電圧波形.....	49
4. 3. 2	制限抵抗の影響.....	52
4. 3. 3	電界増倍係数と電界強度の関係.....	54
4. 4	マイクロ放電時の発光とその諸特性.....	57
4. 4. 1	絶縁破壊時の発光と電流の関係.....	57
4. 4. 2	放電エネルギーと発光強度の関係.....	60
4. 4. 3	分光法による発光現象の調査.....	62
4. 5	結言.....	64
第5章	マイクロ溶融現象とその応用.....	65
5. 1	直流電圧による溶融現象.....	65
5. 1. 1	電極極性による溶融状況の比較.....	65
5. 1. 2	絶縁破壊時の電流波形と溶融の関係.....	66
5. 2	パルス電圧による溶融現象.....	68
5. 2. 1	パルスエネルギーと溶融部の直径との関係.....	68
5. 2. 2	電極の消耗と試料溶融部の関係.....	73
5. 3	マイクロ溶融現象の応用.....	76
5. 3. 1	連続パルスによるマイクロビードの形成.....	76
5. 3. 2	サブミクロンサイズの加工.....	81
5. 4	結言.....	87
第6章	結 論.....	88
	謝辞.....	91
	参考文献.....	92
	本論文に関する発表論文.....	94

第1章 緒 論

1. 1 研究の背景

近年、微小な機械部品や構造物を作ることが注目されるようになってきた¹⁾。これらは最初、集積回路の高密度化を進展させたフォトリソグラフィを中心とした半導体技術の応用として研究が始まり、歪みセンサーや流体センサーなど薄膜センサーの製作プロセスへの応用が試みられている²⁾。その後、シンクロトロン放射光を光源としたリソグラフィ法を用いることによって、電子回路やセンサーやアクチュエータを内蔵したような3次元的な厚みをもつ部品を作ることが可能となり、マイクロマシンの開発や加工技術に関する研究に発展してきた。

マイクロマシンに確固とした定義はないが、寸法の小さい機械で、ミリメートルからサブミリメートル以下の機械構造物を指すものとしてよい。このような構造物をより高性能化し、高機能化しようとする、小さなところに高密度に部品を組み込む必要があり、従来の加工技術では実行不可能である。特に、ミリメートルサイズの構造物を作成するためには、マイクロメートルのレベルでの加工技術が必要となる。現在、微細加工を行なえるプロセッシングとして、フォトリソグラフィ、集束イオンビーム、レーザービーム、電子ビーム、放電加工などがあげられる。

フォトリソグラフィと集束イオンビーム法は、主にマイクロメートルレベルでの加工について研究されている。フォトリソグラフィは物理蒸着法を用いて、金属やシリコン、セラミックスなどをレジストパターンを基に積層するもので、堆積を繰り返すことで、複雑な構造物にすることができる。集束イオンビーム法では、 $0.1\mu\text{m}$ 以下に絞られたイオンビームを材料に照射する方法で、主として、高速イオンによる固体表面原子のスパッタリング作用を利用する除去加工法である³⁾。

レーザービームと電子ビームは、集束したビームエネルギーによる溶解や蒸発など熱加工現象を利用した加工で、加工精度はビームの集束性に支配される。現状では、電子ビームの場合、集束径 $100\mu\text{m}$ のビームを用いてビード幅 1mm 以下の溶接が行われている⁴⁾。レーザービームについては、エキシマレーザーを用いて $10\mu\text{m}$ 程度の穴開け加工などで実用化されてい

る。電子ビームでは、パワーを高めるようにするとビーム電流を高くする必要があり、空間電荷制限による集束限界がある。一方、レーザービームは回折現象によって決定される集光限界があり、当然、加工できる最小単位は集光限界によって支配される。

放電加工法は、細径ワイヤの電極と加工材との間でアーク放電を発生させて溶融・蒸発、除去を行うもので、現在、最小 $10\mu\text{m}$ の幅の溝加工が可能となっている⁵⁾。

以上のように、ミリメートルからサブミリメートルレベルでの加工には様々な方法があるが、マイクロメートルレベルになると集積回路の作成技術として適用されているフォトリソグラフィ以外は、まだ研究段階にあるといえる。また、これらの加工法は基本的には除去加工であり、マイクロメートルサイズの溶接や溶融現象に関する知見がほとんどない。

1. 2 マイクロ溶融加工の可能性と研究目的

本研究では、制御性や操作性に優れた放電エネルギーを利用して、微小サイズの溶接を達成することを目的とした。しかしながら、現在、広く行われている溶接に比べて、スケールを1000分の1にするためには、まず、溶接熱源・被加工材のハンドリングや加工現象の観察・監視方法を確立する必要があり、本研究では、走査電子顕微鏡（SEM）内で、実験を行うこととした。SEMによって比較的簡単にマイクロメートルの領域を観察でき、真空内で実験を行うため、材料の酸化などの汚染を防ぐことができる。このような真空中において、2つの電極に電圧を加えた場合に起こる現象について考える。

真空中で2つの電極間に電界を作用させるとき、2つの電極の空間を電流が流れる。この空間を流れる電流は、機構的に、トンネル電流と電界放出電流とに分けられる。トンネル電流と電界放出電流は、いずれも量子力学におけるトンネル効果によって説明できる⁶⁾。トンネル電流は、電極間隔が数ナノメートル以下の距離の時に、電極間のエネルギーの障壁を透過して流れるナノアンペアレベルの微小な電流である。一方、電界放出電流は、電極空間に作用する電界強度が高くなると、陰極前面のエネルギー障壁が薄くなり、電子が障壁を透過し放出される現象とされる。このとき

の電流値は、マイクロアンペアからミリアンペア程度である。この二つの現象の大きな違いは、トンネル電流を流すためには電極間距離を十分近づける必要があるのに対し、電界放出電流は距離が離れていてもその間の電界強度を約 10^9 V/m以上に高めると流れるということである。電極間隔が長くなると、電界放出を起こすためには高電圧が必要となり、そのため、放出された電子は、電子ビームとして高いエネルギーを持つことになる。

電極間の電界強度をさらに高めて電流を流すようにすると、絶縁破壊が起こり、放電が生じる。これまでに電極間距離が $1\mu\text{m}$ を超えるような領域で、真空放電の研究がされており、絶縁破壊後のアーク放電への移行により、母材表面が溶融することが明らかにされている⁷⁾。

以上に述べたように、電極と試料間に作用させる電界あるいは距離によって、高いエネルギーを持つ電界放出電流、あるいは、放電を発生させることができ、これらのエネルギーを利用して電極あるいは試料を溶融・蒸発させることができる。このエネルギーを微小な領域に集中させることができれば、マイクロメートルレベルでの溶融加工が可能となることが期待できる。さらに、これらのエネルギーは、電極と試料間の電圧や電流などによって制御が可能であるので、溶融および蒸発量を制御することが可能となる。

しかし、従来の真空放電現象において、その電極間隔は、 $1\mu\text{m}$ 以上であり、そのとき電極間に加えられる電圧は、数kV以上である。このような条件では、入熱が過大となり、目的とする微小な溶融部の形成は不可能である。そこで、これよりも低い電圧で絶縁破壊をおこし、微小な溶融部を形成させることを考えた。そのためには、電極間隔をサブミクロンのレベルにする必要があり、したがって、電極の位置合わせ精度は、ナノメートルレベルであることが要求される。そこで、走査トンネル顕微鏡（STM：Scanning Tunneling Microscope）に注目した。

1982年にBinnigとRohrer⁸⁾によって、発明されたSTMは、試料表面を原子のレベルで観察する顕微鏡として注目された。STMが開発されて以来、装置の改良と商品化が急速に進められ、様々な分野で利用されるに至っている。さらに、原子間力顕微鏡（AFM：Atomic Force

Microscope) など、材料表面の物理現象や化学現象を原子レベルで観察する、一連の走査プローブ顕微鏡が開発されてきている。現在では顕微鏡にとどまらず、試料表面を微細加工するツールとしてさまざまな可能性を指向した研究が進められている。たとえば、電極チップからの電流によって試料の表面を特殊な電気化学的に反応させて、ナノメートルレベルのエッチングを行う実験⁹⁾、あるいは、電極チップと試料間のバイアス電圧を制御して穴開けや蒸着などを使い分ける実験が行われ¹⁰⁾、1990年には特定の原子や分子を自由に動かすような段階¹¹⁾にまで、発展してきた。

S T Mの基本操作は、細径電極先端(チップ)と試料間に10ないし100mVの電圧を加え、チップ-試料間の距離を原子径程度(1nm以下)まで近づけると流れるトンネル電流を検出し、これが一定になるように圧電素子で制御しながら試料表面を走査する。この制御量を処理して、表面の凹凸や原子の像を観測しようとするものである。したがって、チップと試料間の位置合わせ精度は、原子レベルにおよび、この装置を微細加工装置として用いることで、再現性良く実験を行うことができる。さらに、先端の非常にとがった電極を使用するため、先端にエネルギーを集中させることができる。

以上のことから、本研究では、放電エネルギーを利用した微小溶接を行うために、現象のモニタリング装置としてS E Mを用い、真空中で再現性良くマイクロ放電を発生させるために、S T Mをもとにした微細加工装置を試作した。この装置を用いて、微細な電極と試料とのサブミクロンレベルのギャップ間における絶縁破壊とそれにとまなう放電現象について、その現象に支配的な因子を調べ、その微小領域の放電を利用して、マイクロメートルサイズの溶融加工を行うことを目的としている。

1. 3 本論文の構成

本研究は、以上のような状況をふまえ、マイクロメートルサイズの溶融加工を行うために、ナノメートルレベルの位置精度を持つS T Mに注目し、この装置を用いて、電極と試料間に電界を作用させたときに、電極と試料表面に発生する現象を、S E Mによるその場観察を併用して調査している。

本論文は6章から構成されており、各章の概要を以下に示す。

第1章は、緒論であり、研究の背景と現状を示し、本研究の必要性和目的を述べている。さらに、電極間に発生する現象の相違を定性的に述べている。また、STMを加工装置として使用した理由を述べている。

第2章では、試作したSTMの構成とその装置の性能を評価している。従来、間接的に知られていたAuとAgの蒸着表面の構造を試作装置で確認し、この確認を通して性能評価をおこなっている。また、微小な電極間に加えた電圧とその間を流れる電流との関係を理論的に計算している。ここで計算した結果を3章以下の検討に使用している。

第3章では、材料を溶融あるいは蒸発させるために必要なエネルギーに関して、それぞれの潜熱を考慮して、熱伝導論により予備検討を行っている。また、Pt電極とAu試料間に数Vの低いパルス電圧を印加することで、試料表面にナノメートルレベルの蒸着物を形成できることをSTMによって観察し、蒸着物の体積とパルス電圧およびパルス幅との関係を求め、考察を行っている。

第4章では、電極と試料間のマイクロメートル以下の微小なギャップにおける真空絶縁破壊とそれにともなうマイクロ放電について、直流絶縁破壊とパルス絶縁破壊の両方の現象を調べ、絶縁破壊に影響をおよぼす因子を取りあげ、その現象と基礎的な特性を検討している。直流絶縁破壊については、絶縁破壊前後の電流波形を調べることによって、微小空間の絶縁破壊がいかなる機構によって起こるかについて考察し、パルス絶縁破壊については、放電電流と電圧の関係を調べ、絶縁破壊後のマイクロ放電の形態および性質について議論している。また、放電時に発生する光についても考察を行っている。

第5章では、直流絶縁破壊およびパルス絶縁破壊にともなうマイクロ放電によるマイクロ溶融現象をSEMによってその場観察し、それぞれの溶融部の形状を比較し、パルス電圧の優位性について言及している。パルス絶縁破壊による溶融部に影響をおよぼす因子として電圧、電流、電極形状を取りあげ、これらの因子による溶融部の制御性を調べている。さらに、溶融現象の応用として、連続パルスを用いたマイクロビードの形成を試みている。

第6章は、結論であり、試作したSTMおよびマイクロ溶融加工現象について得られた結果を述べている。

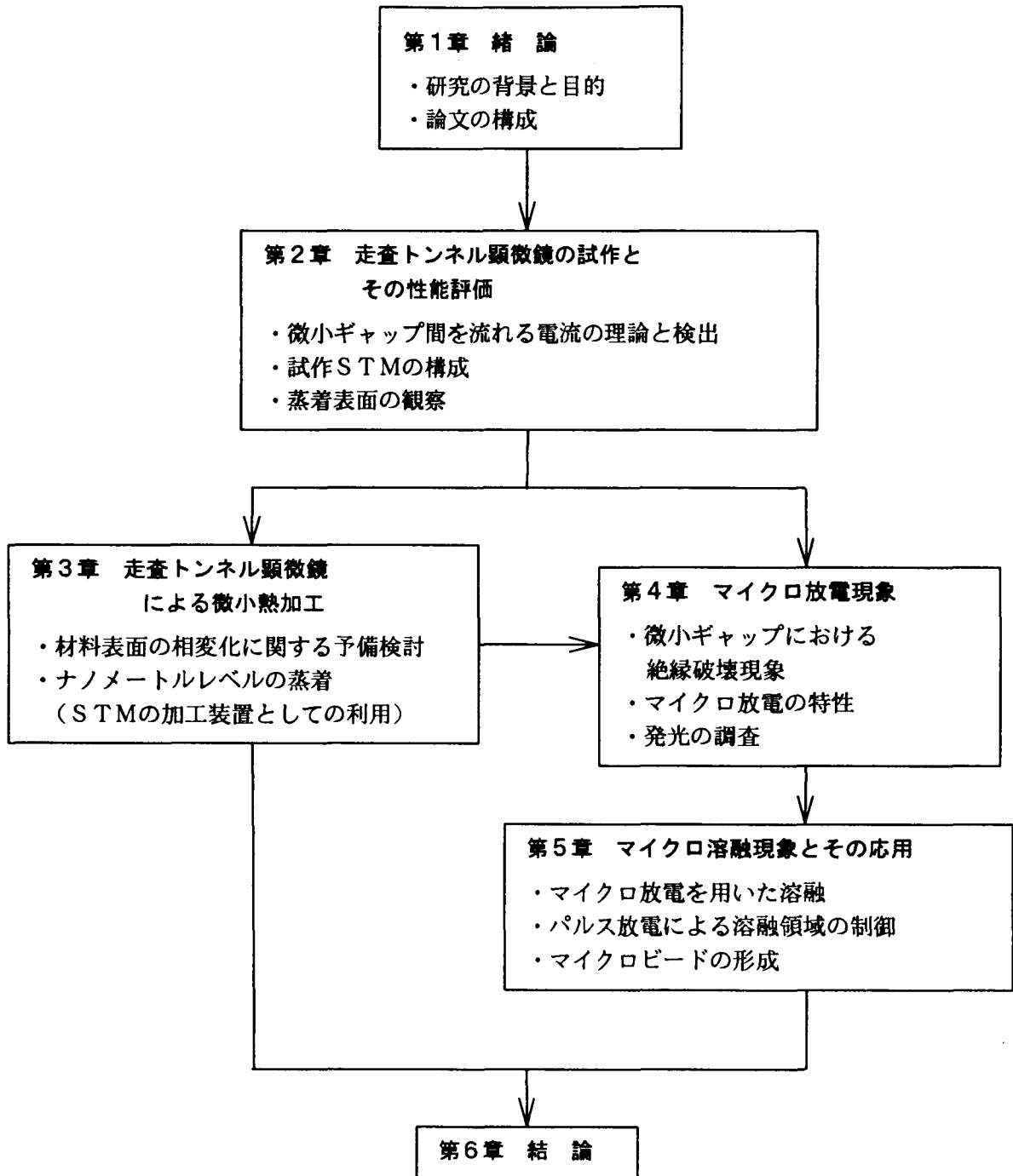


図1-1 論文の構成

第2章 走査トンネル顕微鏡 (STM) の試作とその性能評価

本章では、2つの電極間に加える電圧とそのとき電極間に流れる電流について、理論的に検討する。また、試作したSTMの構成を述べ、この試作装置を用いて、PVD成膜の中でもっとも基本的な蒸着膜の表面を計測、膜の成長形態を調べるとともに、試作した装置の性能を評価する。

2.1 電極間電圧と電流密度の関係

真空中におかれた2つの金属電極間に電位差を与えた場合、電極間を流れる電流について検討する。

金属内の自由電子が、金属表面から離れようとするとき、その電子は、金属表面に存在するポテンシャルの壁で反射され、金属内に戻される。1個の電子を解放するのに必要なポテンシャルエネルギーは、仕事関数と呼ばれる。すなわち、金属内の電子が平均として仕事関数以上のエネルギーを持ったとき、電子は、金属外に放出される。

一般に金属は、絶対零度において、フェルミレベルまで電子で満たされている。この電子に仕事関数を越えるエネルギーを持たせる最も簡単な方法は、金属を加熱することである。金属の温度が上昇すると、電子は、フェルミ-ディラック分布関数に従うエネルギー分布をとり、仕事関数以上のエネルギーをもつ電子が現れてくる。このようにして、加熱によって電子が放出される現象は熱電子放出と呼ばれる。

一方、2つの金属が、微小空間をはさみ対向している場合には、電子の放出に新たにトンネル効果と呼ばれる量子力学的効果が関与してくる。トンネル効果は、電子が波の性質を持つために、ポテンシャルの壁を透過する現象であると言える。このトンネル効果によって、真空中におかれた2つの電極間を流れる電流について、Simmons¹²⁾の考えに従い一次元モデルを用いて検討する。真空中におかれた2つの電極に電界が作用しているとき、これらの電極を一次元のエネルギー準位のモデルで表すと図2-1のようになる。フェルミレベル付近の電子は、どちらの電極からも、他方の電極へトンネルし、それぞれの電子の移動する量の差が電流として現れる。その結果、電極間を流れる電流の密度 J は、次式のように表される。

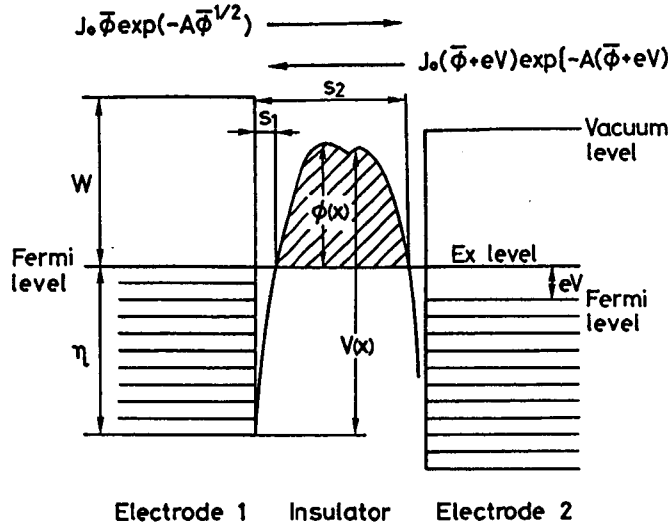


図2-1 微小なギャップを持つ2電極間のエネルギーレベルと電流の流れ

$$J = J_0 \left\{ \bar{\phi} \exp\left(-A \bar{\phi}^{\frac{1}{2}}\right) - (\bar{\phi} + eV) \exp\left[-A(\bar{\phi} + eV)^{\frac{1}{2}}\right] \right\}$$

$$J_0 = e/2\pi\hbar(\beta\Delta s)^2 \quad \dots (2-1)$$

$$A = (4\pi\beta\Delta s/h)(2m)^{\frac{1}{2}}$$

ただし、 ϕ : 2電極の平均仕事関数、 e : 素電荷、 V : 電極間電位差、
 h : プランク定数、 $\Delta s = s_2 - s_1$ 、
 s_1 および s_2 : フェルミレベルにおける障壁限界、
 m : 電子質量。

ここで、上式を電極間電位差 V の大きさによって、以下のようなになる。

(i) $V \approx 0$ のとき

$$\begin{cases} \Delta s = s, \\ \bar{\phi} = \phi_0 \end{cases} \text{ となり}$$

$$J = \frac{\sqrt{2m\phi_0}}{s} \left(\frac{e}{h}\right)^2 V \times \exp\left[-\left(\frac{4\pi s}{h}\right)\sqrt{2m\phi_0}\right] \quad \dots (2-2)$$

(ii) $V < \phi_0/e$ のとき

$$\begin{cases} \Delta s = s, \\ \bar{\phi} = \phi - eV/2 \end{cases} \text{ となり}$$

$$J = \frac{e}{2\pi(\beta s)^2} \left\{ \left(\phi - \frac{eV}{2}\right) \exp\left[-\frac{4\pi\beta s}{h} \sqrt{2m\left(\phi - \frac{eV}{2}\right)}\right] - \left(\phi + \frac{eV}{2}\right) \exp\left[-\frac{4\pi\beta s}{h} \sqrt{2m\left(\phi + \frac{eV}{2}\right)}\right] \right\}$$

... (2-3)

(iii) $V > \phi_0/e$ のとき

$$\begin{cases} \Delta s = s\phi_0/eV, \\ \bar{\phi} = \phi_0/2 \end{cases} \quad \text{となり}$$

$$J = \frac{2.2e^3F^2}{8\pi\hbar\phi_0} \left\{ \exp\left[-\frac{8\pi}{2.96\hbar eF} \sqrt{2m\phi_0^3}\right] - \left(1 + \frac{2eV}{\phi_0}\right) \times \exp\left[-\frac{8\pi}{2.96\hbar eF} \sqrt{2m\phi_0^3} \left(1 + \frac{2eV}{\phi_0}\right)\right] \right\} \quad \dots (2-4)$$

ただし, ϕ_0 : 電極間の障壁を矩形としたときの仕事関数(eV),

e : 素電荷(1.6×10^{-19} C), h : プランク定数(6.63×10^{-34} Js),

s : 電極間距離(m), V : 電極間電圧(V),

m : 電子質量(9.1×10^{-31} kg)

(2-2)式から, トンネル電流密度は, 電極間の距離に対して, 指数関数的に変化することがわかる. (2-4)式において, 電圧がさらに高くなる ($V > (\eta + \phi_0)/e$) と, 第2項は省略できて,

$$J = \frac{2.2e^3F^2}{8\pi\hbar\phi_0} \exp\left[-\frac{8\pi}{2.96\hbar eF} \sqrt{2m\phi_0^3}\right] \quad \dots (2-5)$$

のように簡略化できる. この式は, 電界放出によって流れる電流密度を表したFowler-Nordheim式

$$J = \frac{1.54 \times 10^{-6}}{\phi} E^2 \exp\left(-\frac{6.8 \times 10^9 \phi^{3/2} \theta(y)}{E}\right) \quad \dots (2-6)$$

$$y \approx 3.8 \times 10^{-4} \sqrt{E}/\phi$$

$$\theta(y) \approx 0.956 - 1.06y^2$$

と, 指数関数の前に掛けられている係数が異なっている以外は, 同じ形の式となっている. すなわち, 電圧が高くなるとトンネル電流は, 電界放出電流に移行することがわかる. 電界放出電流においては, (2-6)のFowler-Nordheim式の方が一般に広く用いられており, 実験的に調べられているので, (2-5)よりも正確である. そこで, 本研究では, トンネル電流の条件においては, (2-2), (2-3)式を用い, 電界放出となる条件域では, (2-6)式を用いて計算した.

以上の式から, 電極間電圧と電流密度の関係を求めると, 図2-2のようになる. トンネル電流値は, 電極間電圧値の増加とともに徐々に増大し, 電圧が仕事関数をこえると電界放出電流域に移行し, 電流密度は, 電圧の増加とともに急激に上昇することがわかる. また, 先に述べたように,

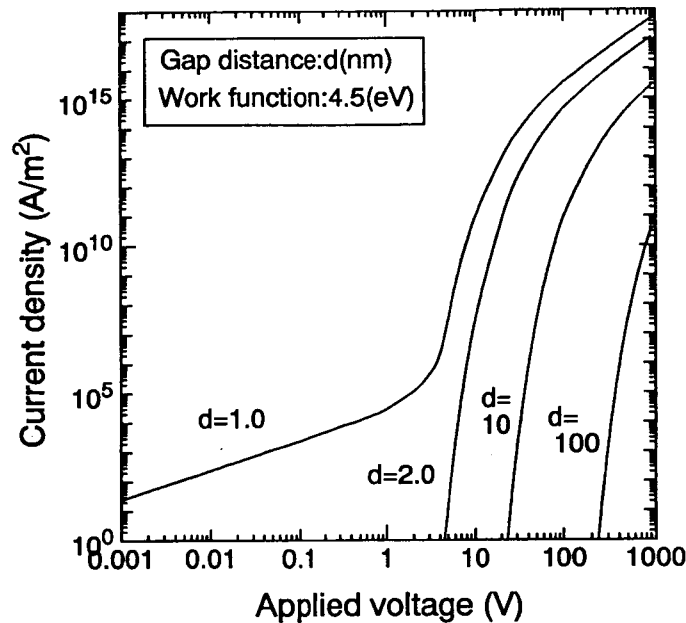


図 2-2 トンネル電流と電圧の関係

電極間の距離が長くなると、低電圧において流れるトンネル電流は、急激に減少する。それに対して、高電圧において流れる電界放出電流は、陰極前面の電界強度に大きく依存するため、電極間距離に対して、トンネル電流ほど鋭敏な影響を受けないことがわかる。

電極表面付近の電界強度は、その電極の形状によって影響を受ける。そこで、電界増倍係数 β を電界強度 E に乗ずることで、電極の形状による電界強度の増加を表わすこととする。完全に平面であるような電極を作り出すことは事実上不可能であるので、実際に電界放出電流を考える場合、常に形状効果を考慮する必要がある。

電界放出電流 I は、電流の流れる実効面積を S_e として、(2-6)式を用いて、次のように書くことができる（ただし、 $\theta \approx 1$ ）。

$$I = S_e \times \frac{1.54 \times 10^{-6}}{\phi} (\beta E)^2 \exp\left(-\frac{6.8 \times 10^9 \phi^{3/2}}{\beta E}\right) \quad \dots (2-7)$$

当然であるが、電極が完全に平面であれば、 β は 1 となる。さらにこの式は、次のように変形することができる。

$$\log(I/E^2) = -\frac{2.97 \times 10^9 \phi^{\frac{3}{2}}}{\beta} \times \frac{1}{E} + \log\left(\frac{1.54 \times 10^{-6} S_e \beta^2}{\phi}\right) \quad \dots (2-8)$$

あるいは,

$$\log(I/V^2) = -\frac{2.97 \times 10^9 \phi^{\frac{3}{2}} d}{\beta} \times \frac{1}{V} + \log\left(\frac{1.54 \times 10^{-6} S_e \beta^2}{\phi d^2}\right) \quad \dots (2-8)'$$

この式に従って、横軸を $1/E$ もしくは $1/V$ 、縦軸を I/E^2 の対数もしくは I/V^2 の対数として電界放出電流を表すと、図2-3のような直線が得られる。この直線は、Fowler-Nordheimプロット（以下FNプロットと略す）と呼ばれ、電界放出電流であることの判別指標とされる。

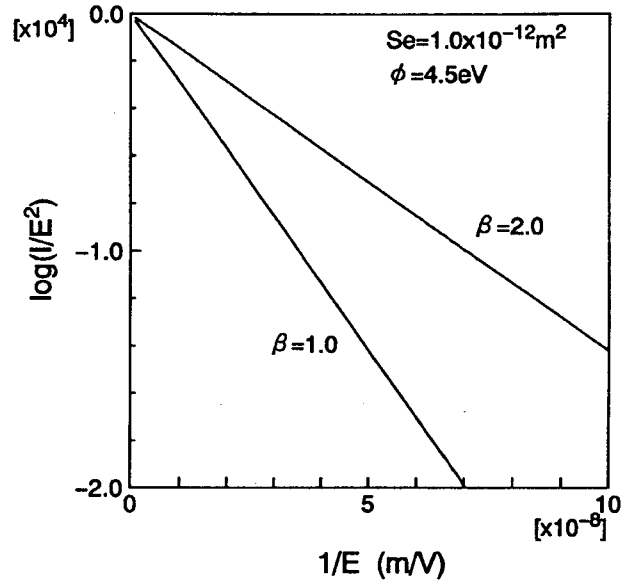


図2-3 FNプロットの一例

2.2 STM装置の試作

G.BinnigとR.Rohrerによって開発されたSTM¹³⁾は、トンネル現象を利用した顕微鏡である。今、一方の電極を図2-4のように先端曲率半径の小さな探針とし、他方の電極を試料とする。この探針と試料間に電圧を印加し、探針を試料に数ナノメートルまで近づけると、トンネル電流が流れる。このトンネル電流を一定に保つように探針と試料間の距離を制御する。トンネル電流は、電極間の距離に対し非常に

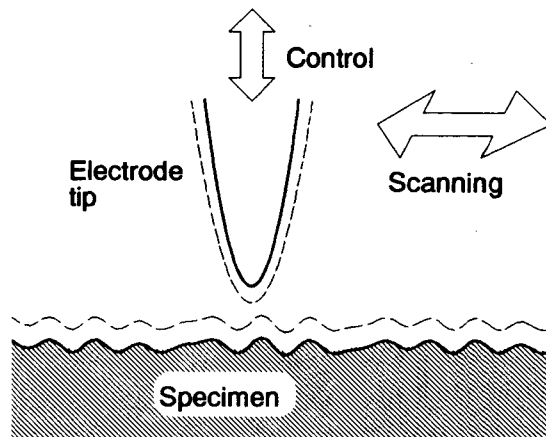


図2-4 STMの原理

敏感に反応し，探針と試料間の距離が0.1nm変化すると，電流値が1桁変化するため，トンネル電流を一定に保つように走査することによって原子レベルの凹凸の変化をとらえることができるのである。

試作したSTMの概略を図2-5に示す。探針および試料の駆動部，探針および試料間距離を制御するための制御回路と画像表示部，探針と試料間に電圧を加えるための電源部，から構成されている。

本装置の駆動系は，インチワーム，圧電素子トライポッド，トンネルギャップ長制御用圧電素子から構成されている。探針は，トンネルギャッ

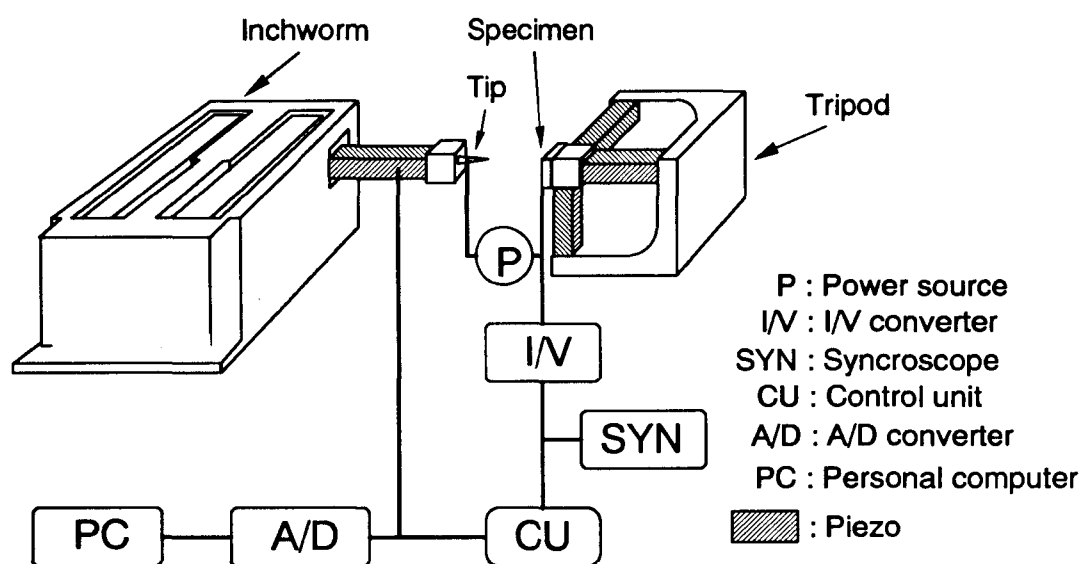


図2-5 試作したSTM装置の構成

プ長制御用圧電素子に取り付け，試料は，圧電素子トライポッドに取り付ける。トンネルギャップ長制御用圧電素子は，インチワームに取り付けられている。

インチワームは，電極と試料の距離を粗調整するための近接機構であり，圧電素子で構成しているため電氣的なパルス信号で移動量を制御できる。本研究で作成したインチワームの原理を図2-6に示す。インチワームは，2つのクランプと1つの移動子からなり，この移動子はガイドに沿って移動する。この移動子を，図の矢印の方向に動かすことを想定し，そのときの圧電素子に与える電圧のタイミングとその時の移動子の動きを

表す。まず、クランプAを開放し、移動子を伸ばす、伸ばした状態で、クランプAで移動子を固定する。次にクランプBを開放し、移動子を縮め、クランプBで移動子を固定させる。これを1サイクルとして繰り返しパルスを与えることで、移動子が前進し、また、クランプAとクランプBに与える信号を入れ換えることで、後退させることができる。本研究で試作したインチワームは、1パルスあたり、約 $2\mu\text{m}$ ピッチで移動し、最大ストロークは 10mm である。

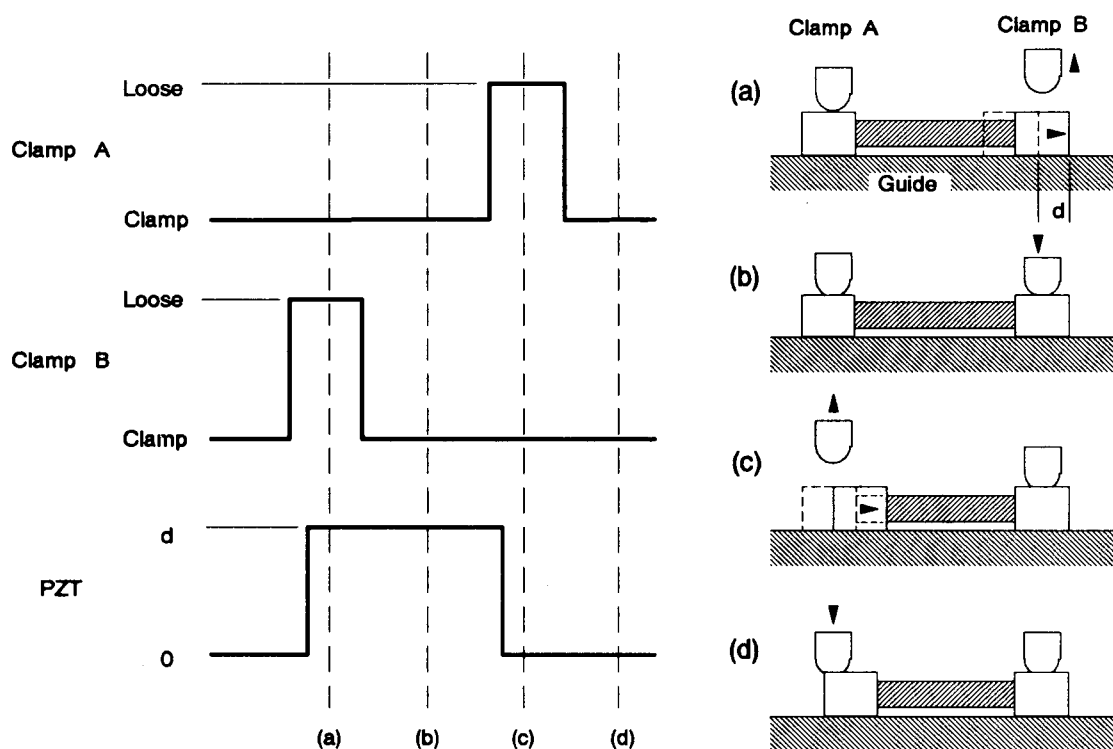


図2-6 インチワームの原理

圧電素子トライポッドは、3本の圧電素子をX-Y-Zの3方向にトライポッド状に組み込んだものであり、3方向にナノメートルの精度で、最大 $15\mu\text{m}$ 移動させることができる。このトライポッドによって、X-Y方向の走査、Z方向すなわち探針と試料間のギャップ長の微調整を行う。

制御用圧電素子は、探針と試料間のギャップ長の制御を行うために使用し、ギャップ間を 0.1nm の精度で制御できる。実験に用いた圧電素子は

すべて同じものを使用しており、この圧電素子の電圧と変位量の関係を図2-7に示す。このように圧電素子の変位は、印加電圧に比例せず、電圧の増加時と減少時に変位の差が現れるヒステリシス曲線が得られる。このヒステリシスは、印加電圧を変化させたときの最大値と最小値の差に依存し、印加電圧0-150Vの時で最大 $4.5\mu\text{m}$ に達し、変位の約23%になり、図2-7の電圧条件では、13%程度である。このことから、圧電素子に印加する電圧の振幅が小さくなり、その変位量が少なくなるに従い、ヒステリシスの割合は少なくなり、その影響はほとんど無くなると予想できる。本研究では、 $1\mu\text{m}$ 以上の距離は、SEMによって確認できるため、それ以下の距離の測定の際に圧電素子の電圧をモニターする。従って、圧電素子の電圧と変位の関係を比例関係とみなし、電圧に対する変位量を 120nm/V とする。

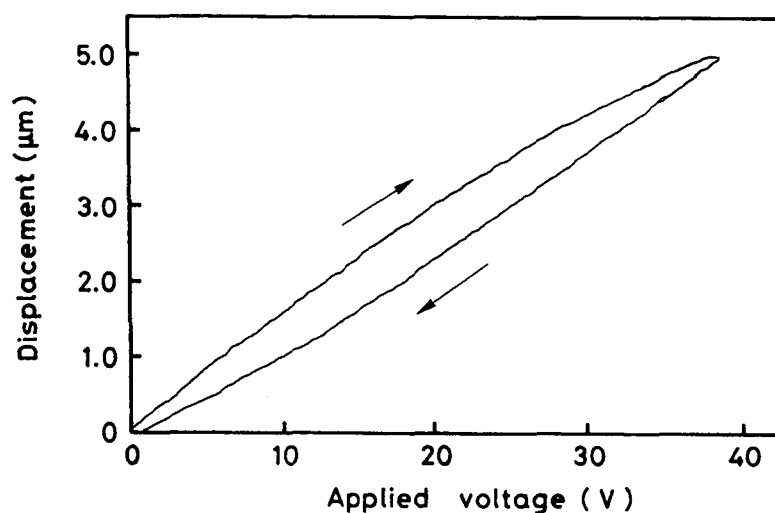


図2-7 圧電素子の電圧-変位曲線

探針としては、市販のPt-Irの探針(Nanotips, DI社製)を使用した。その先端のSEM像を図2-8に示す。この市販の探針は、機械加工によって作成されており、先端形状は、探針ごとに異なっており、場合によっては、先端がつぶれてSTMに使用できないものもある。一般には、タングステンの探針が広く用いられている。これは、タングステンは、電解研磨で簡単に加工することができ、従来から、FIM(Field Ion Microscope), FETEM/SEM(Field Emission TEM/SEM: 電界放出型透過

／走査電子顕微鏡)などの顕微鏡で使用されており、先端を良くそろった一定の形状 (well-defined) にする技術があるためである。しかし、タングステンは、大気中で酸化するため、使用の際には、加熱処理等によって先端をクリーニングする必要がある。試作した装置にはそのような処理機能がないため、大気中で比較的安定で、保管のしやすい白金探針を使用した。



図 2-8 電極先端部のSEM写真 (Pt-Ir:市販品)

トンネル電流を一定に制御するためのフィードバック機構として、一般的なアナログPI (比例および積分回路による) 制御法を採用した。制御回路の概略を図2-9に示す。プリアンプとして高増幅率のI/Vコンバータ (LI-76, NF回路設計ブロック社製) を使用して、トンネル電流を 10^8V/A の増幅率で電圧信号に増幅し、その電圧信号を計装用アンプ

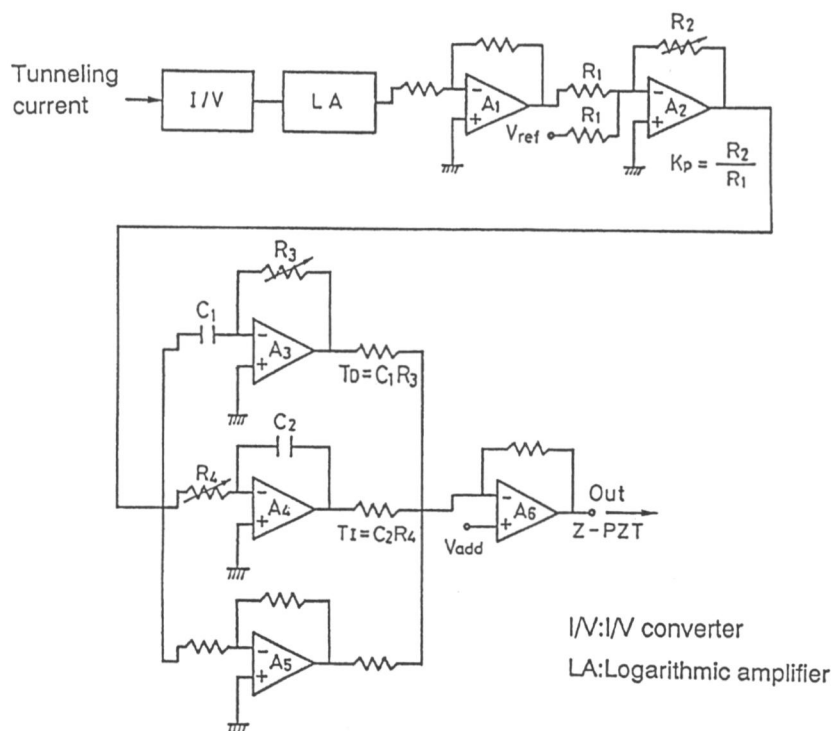


図 2-9 トンネルギャップ長の制御回路

(AD524BD)でさらに10倍の信号に増幅する。すなわち、トンネル電流1nAに対して、1Vの電圧信号となる。この電圧信号を対数アンプ(TP4362)に入力する。トンネル電流は、(2-2)式からわかるように、電極間のギャップ長に対して、指数関数的に変化するため、対数アンプを用いることによって、トンネル電流の信号を線形化し、アナログ制御を行いやすくしている。線形化されたトンネル電流の信号は、制御回路に入力され、出力された制御信号が圧電素子に印加される。

本装置によって、Niを試料とした場合の、制御されたトンネル電流の電流波形を図2-10に示す。制御変数は、試料材料によって調整する必要があるが、最適に調整した場合、ノイズ振幅を設定電流の17%に押さえ

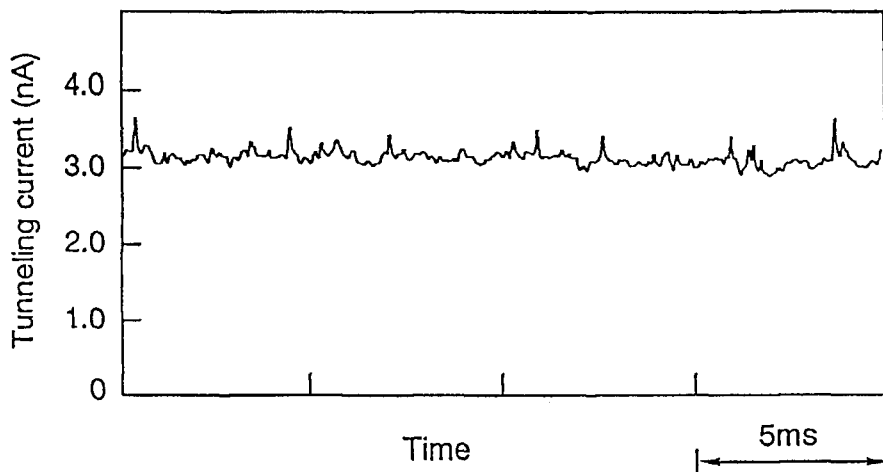


図2-10 制御されたトンネル電流波形

ることができた。

電源は、目的に応じて交換する。STM観察には、1V以下の電圧を安定に出力できる定電圧電源を用いた。この電源をパルス電源、高圧直流電源、高圧パルス電源にすることで、微細加工実験が可能となる。

この装置を、SEM内(真空度 10^{-8} Pa)に設置することによって、試料表面に対する電極の位置をマイクロメートルレベルで確認した後、STM観察することが可能となった。図2-11にSEMフランジに取り付けた装置の外観を示す。STMは、原子レベルの精度で表面を観察するため、外部の振動に対して非常に敏感である。そこで、防振のために、STMを

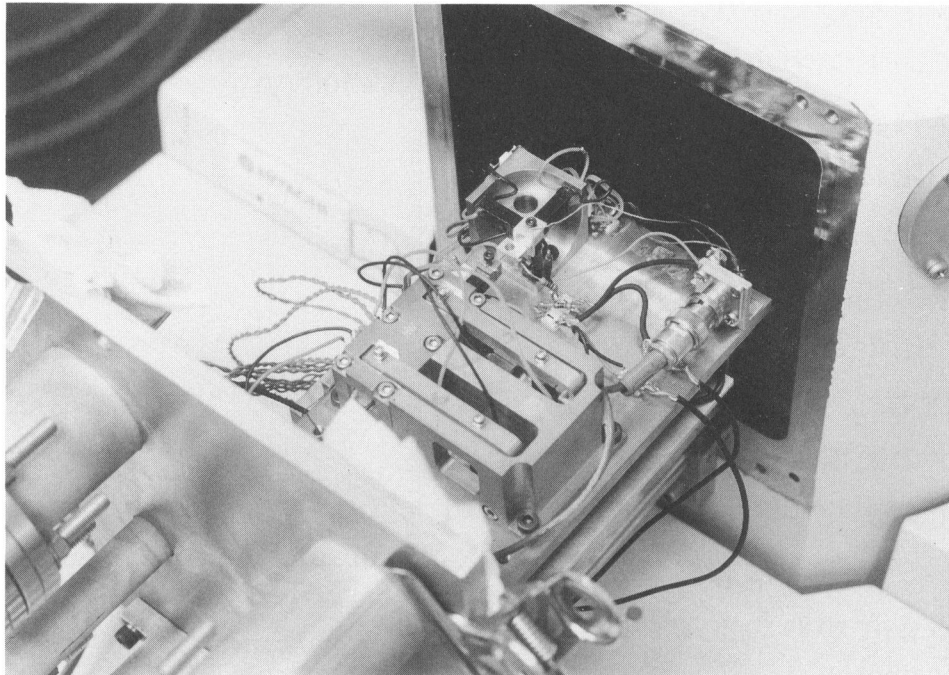


図2-11 SEMに取り付けられた試作STM装置の概観

SEMのX-Yステージに防振機構を介して固定した。この防振構造体は、微小な振動を除くため、バイトンと黄銅を交互に挟んだ2層のサンドイッチ構造を持つ台を、SEMのX-Yステージからバネによって浮かし、比較的大きな振動を除く構造としている。

この装置によって得られた、印加電圧50mVにおけるトンネル電流とギャップ長の関係の実験結果を図2-12に、印加電圧100Vにおける電界放出電流とギャップ長の関係の実験結果を図2-13に示す。試料はどち

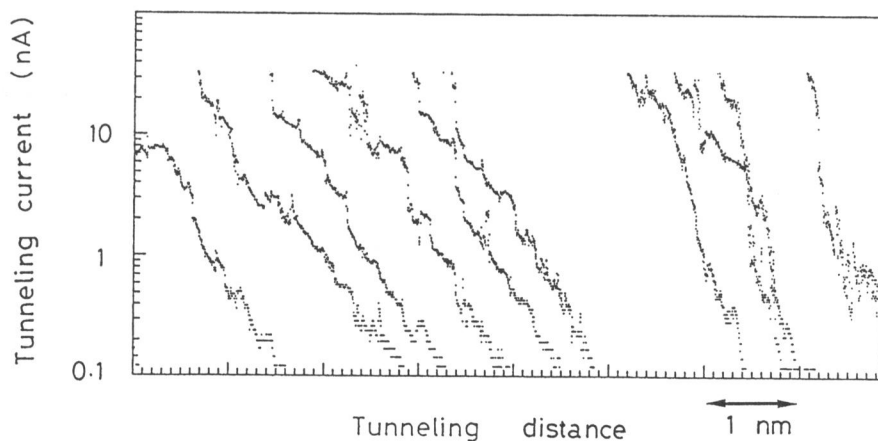


図2-12 トンネル電流とトンネルギャップの関係

らも金を用いており，電極として，トンネル電流の測定には白金を，電界放出電流の測定にはタングステンを用いた．また，距離は，どちらも相対距離を表している．図のように，トンネル電流は，数オングストロームの距離の変化に対して2桁の変化を示し，距離に対しひじょうに敏感に変化することがわかる．また，電界放出電流は，トンネル電流ほどではないが電極間距離に従って電流が変化する．

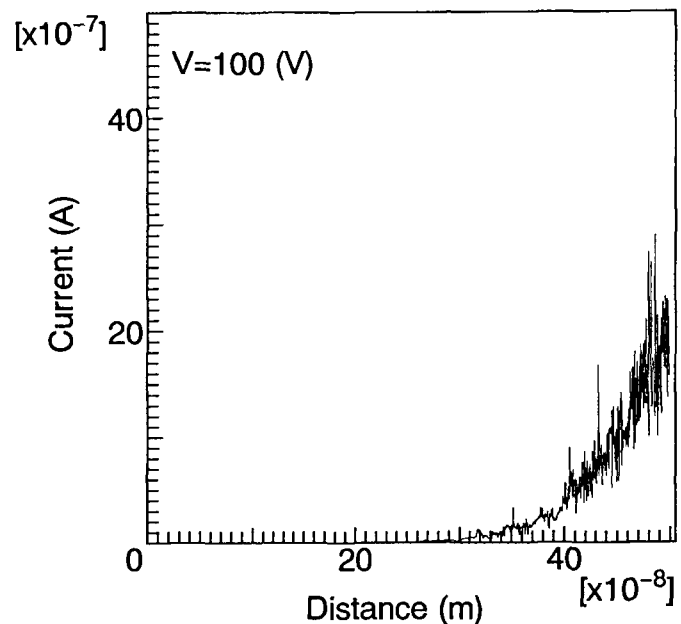


図2-13 電界放出電流とギャップ長の関係

2. 3 実験材料

試料として，99.95%の金板と99.99%の銀板をそれぞれバフ研磨によって鏡面仕上げした後，表面の加工歪みを少なくするために，真空度 1×10^{-5} Pa 中で773K，6時間アニールした．その後，蒸着装置に試料をセットし，基板温度を室温として，金板には銀，銀板には金をそれぞれ蒸着した．このとき，いずれの蒸着の場合にも，蒸着源からの距離を同じにし，蒸着量もほぼ同じにした．また，蒸着膜の厚さを測定するために，マスクングした試料を用い，STM観察用試料と同時に蒸着した．そのマスクをした試料の蒸着膜の厚さをトランスキー型多重干渉装置(日本光学製；光学顕微鏡に設置することで，光の干渉を利用して，試料表面の高さ方向の変化を最小10nmの精度で測定できる)¹⁴⁾によって測定した結果，約20nmであった．以上のようにして作成した試料をSTMにセットし，SEM内でSTM観察を行った．

2. 4 蒸着表面の観察

2. 4. 1 銀基板上的の金蒸着表面および金基板上的の銀蒸着表面 のSTM観察

蒸着表面の成長は、Volmer-Weber型(VW型)成長様式、Frank-van der Merwe型(FW型)成長様式、Stranski-Krastanov型(SK型)成長様式の3つに分類される¹⁵⁾。それぞれの成長過程を示す模式図を図2-14に示す。VW型は、基板表面上のある位置に安定核を形成し、その核が3次

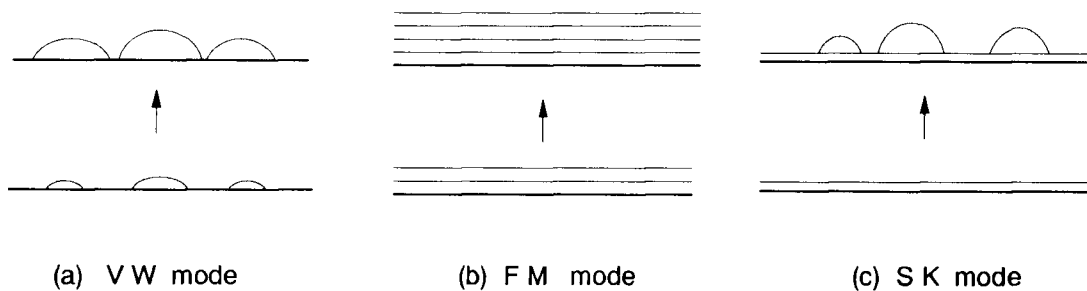


図2-14 蒸着膜の成長過程の基本様式

元的な島状に成長する。FW型は、安定核から2次的に層状に成長する。また、SK型は、最初層状に成長し、その後3次的に成長していくものである。

Palmbergら¹⁶⁾は、金の上に銀を蒸着したときには、層状成長(FW型)をし、銀の上に金を蒸着したときには、島状成長(VW型)することを、オージェ分光法によって調べた。この現象は、LewisとAnderson¹⁷⁾に従って、図2-15に示す液滴の“ぬれ”のような状態を考えると、予測をすることができる。図中の γ_s は、基板の表面エネルギー、 γ_c は、凝縮した物質の表面エネルギー、 γ_i は、これらの間の界面エネルギーである。この図における接触角 θ は、Youngの式として次のように与えられる：

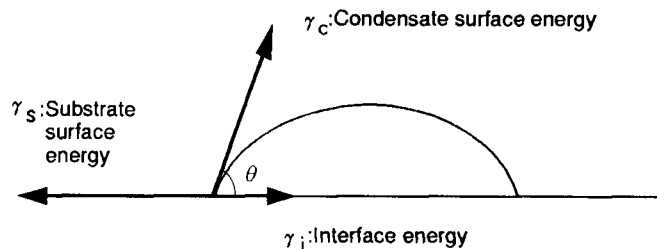


図2-15 表面エネルギーの球面モデル

$$\cos\theta = \frac{\gamma_s - \gamma_i}{\gamma_c} \quad \dots (2-9)$$

今、これらの材料として、金と銀について考える。金と銀は、どちらもfccの結晶構造を持ち、それぞれの原子半径が同じであることから、両者の間の界面エネルギー γ_i は、それぞれの表面エネルギーに比べて無視できるほど小さいと考えられる($\gamma_i \approx 0$)。したがって、接触角 θ は、基板と蒸着物質の表面エネルギーの大小関係で定まる。文献¹⁷⁾によると、金と銀の表面エネルギーは、それぞれ $1.39(\text{J}/\text{m}^2)$ 、 $1.12(\text{J}/\text{m}^2)$ である。したがって、銀基板に金を蒸着すると、(2-9)式が成立し、接触角 $\theta = 36^\circ$ なる島状の成長となることが予測できる。一方、金基板に銀を蒸着すると、(2-9)式の右辺が1より大きくなるために(2-9)式が成立しなくなる。この場合、蒸着物質は球状粒子として凝集しないので、層状の成長を示すことが推測できる。この成長形態を、実際の蒸着表面をSTMで観察することによって調べた。図2-16(a)に銀板に金を蒸着した(以下Au on Agと表

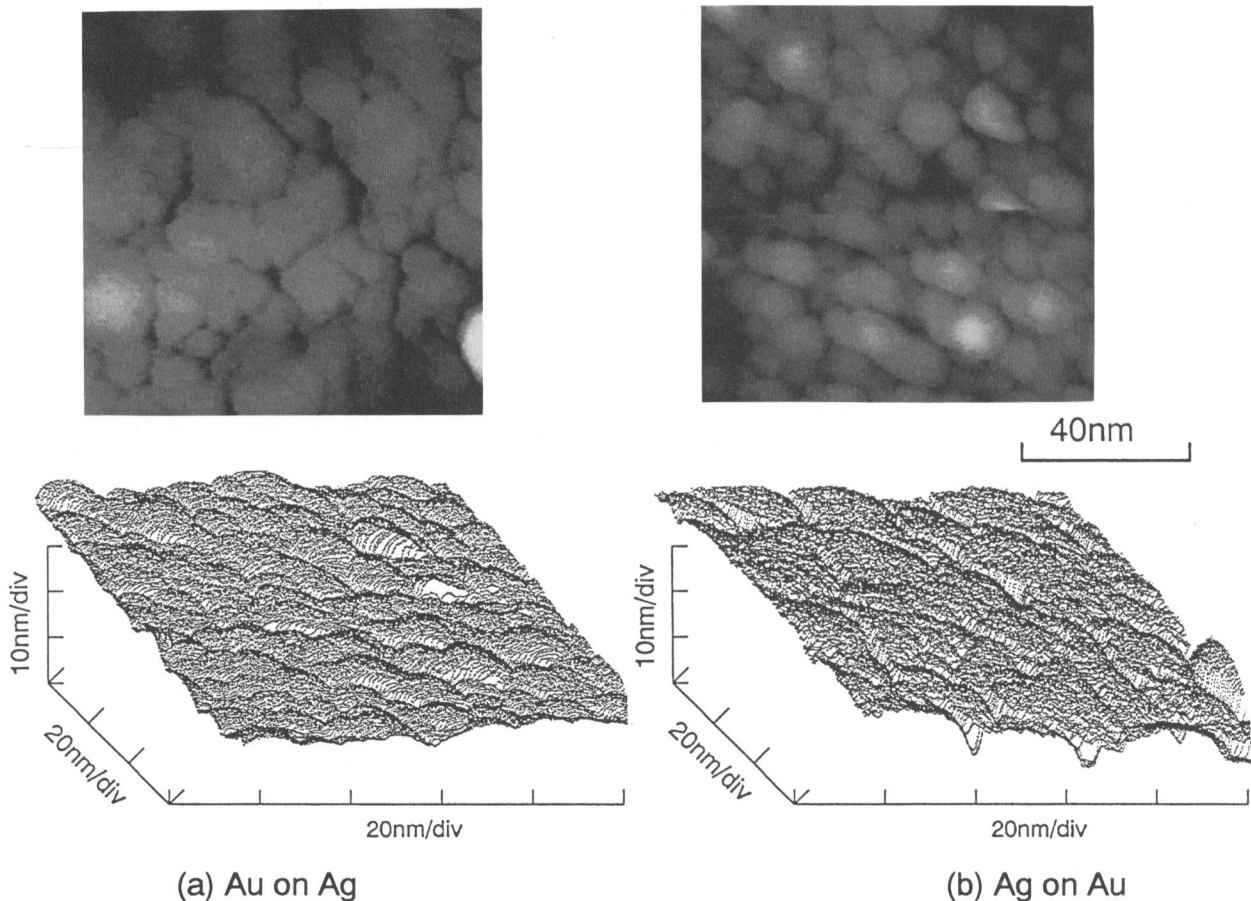


図2-16 蒸着表面のSTM像
(上部：グレースケール表示，下部：鳥瞰図)

す)試料表面, (b)は, 金板に銀を蒸着した(以下Ag on Auと表す)試料表面をSTM観察によって得た像を示す. このときの, STM観察条件は, トンネル電流1nA, 印加電圧50mVである. (a)のAu on Ag表面は, 均一に直径約10nm, 高さ約3nmの粒上の凹凸が観察されることから, 島状成長であるVW型に従って, 蒸着表面が形成されていると考えられる. 一方, (b)のAg on Au表面は, 粒の大きさが一定ではないが, それぞれの粒の表面はほぼ平坦である. このことから, Ag on Auにおいては, 層状成長であるFM型に近い形で, 蒸着面の構造が決定されるものと考えられる. 粒と粒の境界は, かなり深い溝状になっており, 場所によっては, 幅が1nmで深さが9nm程度ある. この境界溝の存在は, 使用した金基板が, 多結晶体であり, また, 欠陥などが表面に存在するため, 蒸着層の水平方向への広がりがそれらによって拘束されるためであると考えている.

2. 4. 2 蒸着表面の熱処理による変化

3. 1で作成・観察した試料を, 真空度 1×10^{-5} Pa中で473K, 3時間それぞれ熱処理した後, STM観察を行った. 図2-17(a)にAu on Ag試料, (b)にAg on Auの試料の表面のSTM像を示す. 図2-16(a)で観察されたように金蒸着表面において, 比較的均一な状態であった直径約10nmの蒸着粒子が, 熱処理を加えることによって, 図2-17(a)で観察されるようにお互いに結びつき, 大きな塊を形成し, 表面が平坦化していることがわかる. これは, 大きな塊をつくることで, 表面のポテンシャルエネルギーを小さくして, 安定化するためである. 一方, (b)の銀蒸着表面では, 熱処理前に見られていた隣接する蒸着層の深い溝が全く見られなくなり, 基板を反映しているようなわずかな凹凸が観察されるだけである. これは, もともと2次元成長によって形成された膜の境界溝が, 拡散によって消失し, さらに蒸発によって蒸着表面の平坦化が促進されたためであると思われる. このとき, 前述したように, 銀の金基板に対するぬれが良いために, (a)のAu on Ag膜のような塊を形成せずに, 平坦化するものと考えられる.

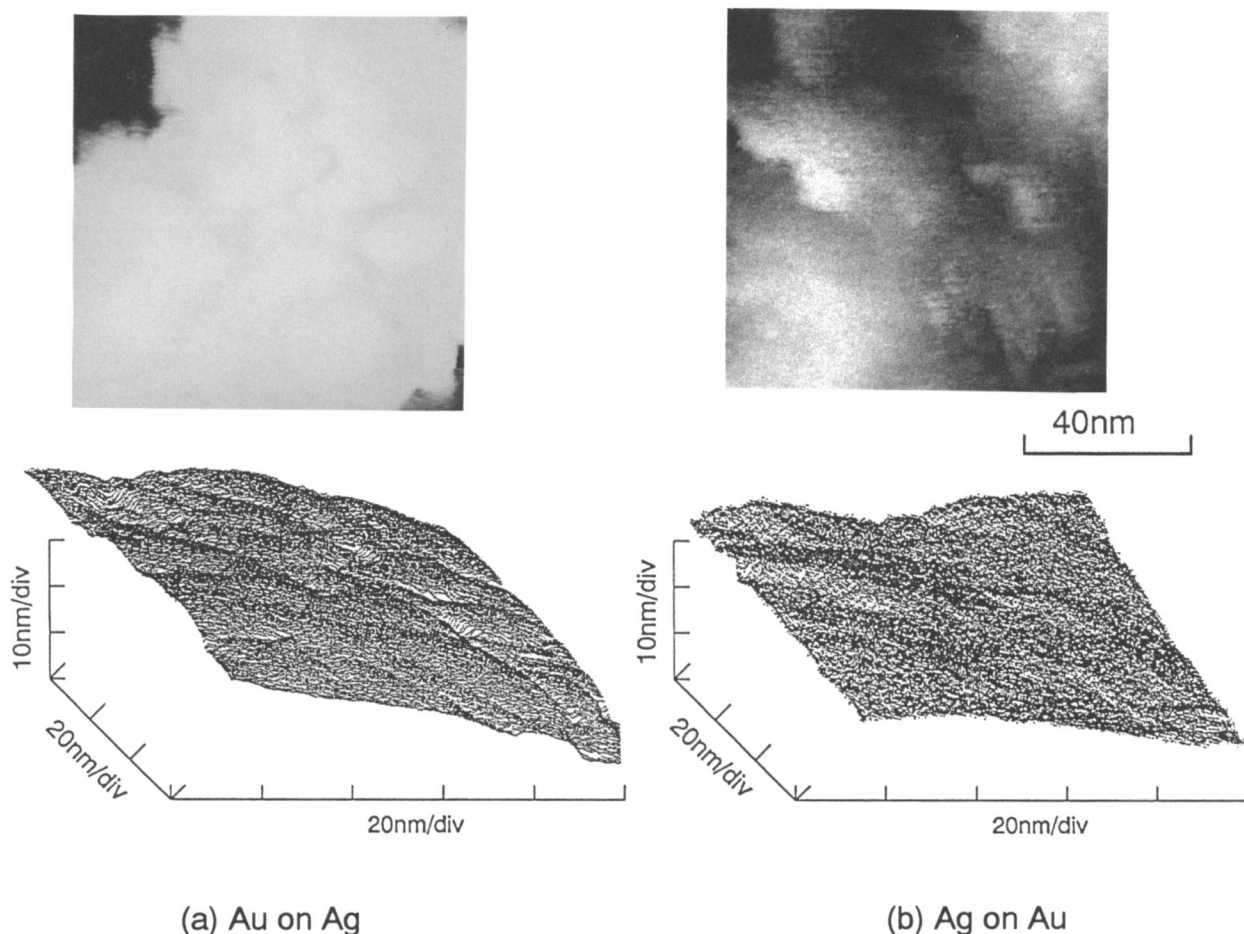


図2-17 アニール後の蒸着表面のSTM像
(上部：グレースケール表示，下部：鳥瞰図)

2.5 試作STM装置の性能評価

一般に金属表面を観察する場合，超高真空中において清浄化処理を行う。これは，金属表面は，大気中では，表面に吸着物が存在するからである。本研究では，試料を清浄化するための装置は付加していないため，バフ研磨を行っただけの試料表面はあまり安定して観察できない。これに対して蒸着試料は，観察前に大気にふれたにもかかわらず，比較的安定にSTM像を得ることができた。従って，蒸着面の観察を通じて，試作したSTMの性能評価を行った。図2-18は本装置で得られた金蒸着表面のSTM像と，そのFESEM（電界放出型SEM：日本電子社製）像である。

どちらも10nm程度の蒸着粒子が観察できるが、FESEM像では、粒子同士の境界がつながっているように見えるところがある。これは、加速された電子ビームは、試料表面から内部にわずかに浸透し、この位置から2次電子を放出するので、浸透した距離の間の情報が重なってしまうからである。これに対し、STMは、最表面の情報を得るので、STM像においてはそれぞれの粒子がはっきりしている。このようにSTMは、他の電子顕微鏡に比べ、高さ方向の分解能に優れ、凹凸の情報が得られることが利点である。

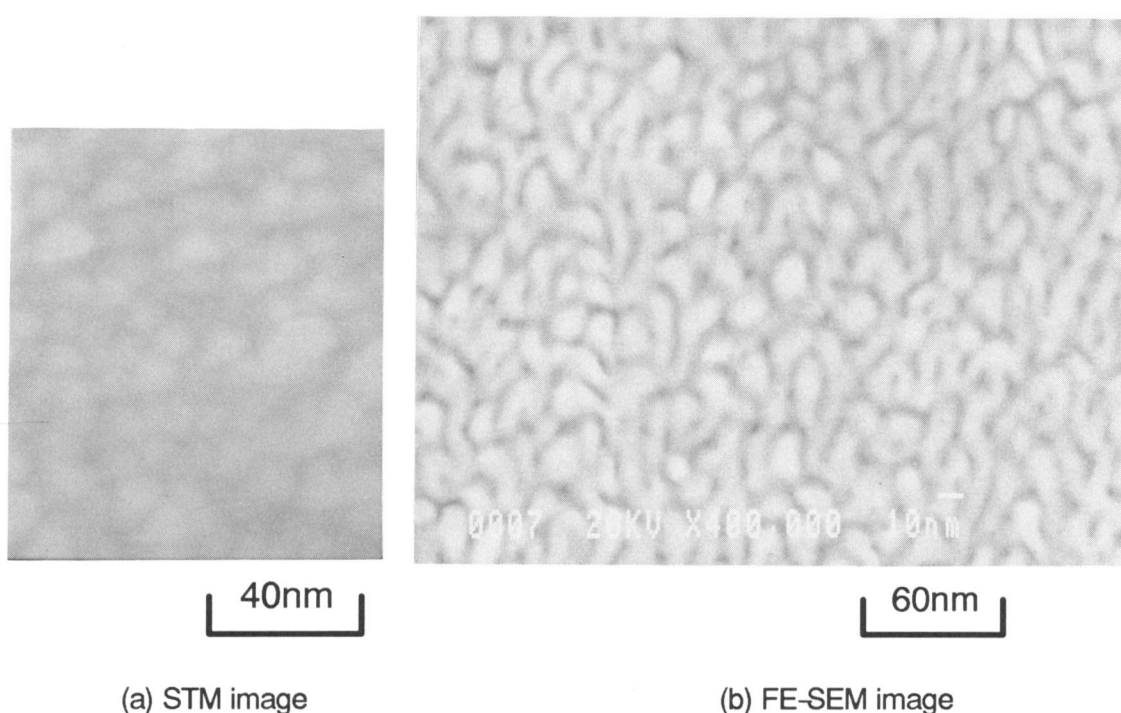


図2-18 STM像とFE-SEM像の比較

前節のように本装置において観察した領域(100nm×100nm)において、蒸着粒子を観察すると、小さいもので、直径10nmの蒸着粒子を観察でき、その蒸着粒子の高さ変化が2~3nm程度のものを、また、幅1nm深さ9nm程度の蒸着粒子の境界溝を安定に再現良く観察することができた。これは、検出限界ではなく、蒸着粒子の大きさに依存したものであるため、実際はこれ以上の水平分解能がある。STMの水平分解能は、原子レベルにおいて、探針の先端の構造で決定され、トンネル電流の流れる領域が最小検出領域

である。実際は、高さ変化が得られる領域が水平分解能とされるので、高さ分解能を規定する方が重要である。試作した装置でのこの実験のような領域においては、高さの分解能としては、原理上0.1nmの変化を検出することができるが、これは探針の先端の状態、制御状態および除振状態に影響されるので、安定に得ることは不可能に近い。STMの性能を評価する因子としては、探針先端の状態、装置を含めた系全体の振動、位置制御のための制御装置の安定性、をあげることができる。使用した探針は、機械加工によって作られているので、各個体によって差があり、探針によってはまったく画像を得られない場合もあったが、本実験で観察した程度の分解能においては、比較的良好に画像を得ることができた。STM像を1画像得るのに約3分程度かかるが、故意に振動をあたえない限り、画像に影響を与えるような数10Hz程度の微小振動および、数Hz以下のうねりはほとんど見られなかった。本装置では、観察位置は圧電素子の温度ドリフトによって、最大5nm/minで移動するが、これは、観察前にあらかじめ1時間ほど圧電素子に走査時と同じ電圧を印加させておくことで、ほとんど無視できるようになる。これらのことから、本装置で安定に得られる分解能は、高さ変化に対して1nmである。

2. 6 結言

STMを試作し、これをSEM鏡体内で使用できるようにしたことで、マイクロメートルからナノメートルの領域の表面を観察することが可能となった。この装置を用いて、蒸着膜の成長形態を調べ、試作STMの性能を評価した。以下に得られた結果を要約する。

- 1) 微小空間をはさみ対向している電極間に、電圧を印加したときに流れるトンネル電流と電界放出電流について理論的に考察し、試作装置によってナノメートルレベルの空間を作り、これらの電流を検出した。
- 2) 銀基板に金(Au on Ag)、金基板に銀(Ag on Au)の蒸着を行い、この蒸着表面をSTMで観察することで、蒸着膜の成長形態を直接知ることができた。その結果、Au on Ag表面は、島状(VW型)成

長をし、Ag on Au表面は、層状(FM型)成長をすることを確かめた。

- 3) 蒸着した試料を真空中で加熱すると、Au on Ag表面とAg on Au表面のいずれも平坦化を起こすが、Au on Ag表面は、蒸着粒子が集まり、大きな塊になる。一方、Ag on Au表面では、蒸着層の境界溝の消失が観察された。
- 4) 以上の観察結果より、試作したSTMの高さ分解能は、1nm未満である。

第3章 走査トンネル顕微鏡による微小表面熱加工

物質が溶融・蒸発するのに必要なエネルギー密度について予備的な検討を行ったのち、試作したSTMを用いて、探針と試料間に数Vのパルス電圧を印加し、試料表面にナノメートルサイズのクラスタの蒸着を行い、その蒸着物の体積と印加電圧の関係を調べた。

3.1 エネルギー密度と材料表面の相変化に関する予備的検討

材料表面からエネルギーが投入されたとき、その材料が溶融するか否かには、単位時間当たり、単位面積に与えられる熱流束（エネルギー密度 (J/m^2s)あるいは、パワー密度 (W/m^2))が、重要な役割を果たす。エネルギー照射部の温度は、熱源からの入熱量とその材料内部への熱伝導損失との収支で決定される。図3-1のように、固体の物質にエネルギーを与えると、温度が上昇し、固体が溶融し液体になり、さらに蒸発し気体になる。相状態が変化するときには、それぞれ、潜熱を考慮する必要がある。

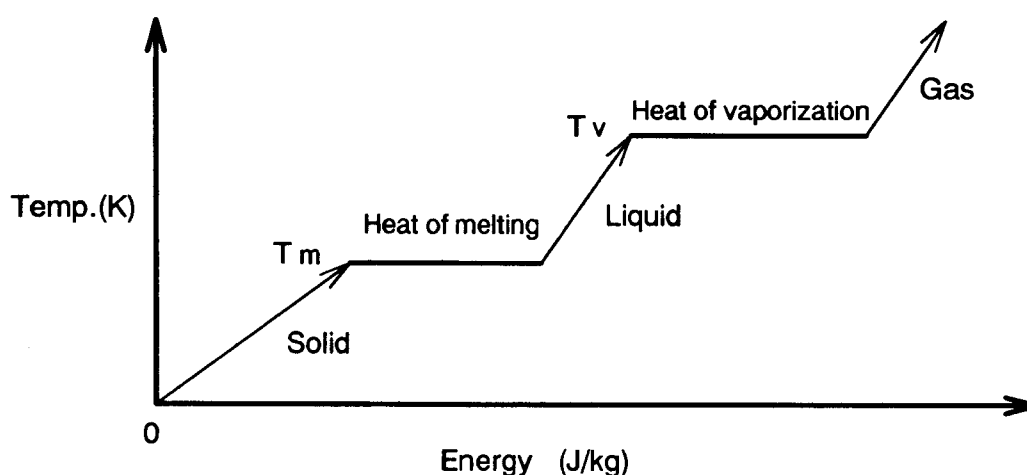


図3-1 相状態が変化するときのエネルギーと温度の関係

図3-2のような、半無限固体表面に $q (W/m^2)$ の熱流束が与えられたときの相状態を熱伝導論に基づいて考える。この表面から投入された熱が固体内を熱伝導によって輸送される速度を考える。その指標として、熱拡散距離 ($D_p = 2(\kappa t_p)^{1/2}$, t_p : 加熱時間, κ : 熱拡散係数) を用いると、 D_p

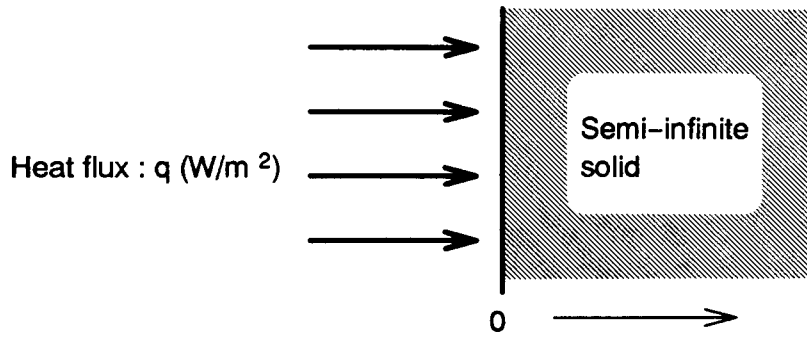


図3-2 表面からの熱流束による熱伝導

内に含まれる総熱量は、単位体積あたり $q t_p / D_p$ (J/m^3)となるので、溶融条件および蒸発条件として次式をみだす必要がある。

$$\frac{q t_p}{D_p} \geq \rho \{c_s (T_m - T_0) + L_m\} \quad \dots (3-1)$$

$$\frac{q t_p}{D_p} \geq \rho \{c_s (T_m - T_0) + L_m + c_l (T_b - T_m) + L_v\} \quad \dots (3-2)$$

ここで、 T_m : 融点(K), T_b : 沸点, T_0 : 母材の初期温度(K),

L_m : 溶融潜熱(J/kg), L_v : 蒸発潜熱(J/kg)である。

(3-1)(3-2)式を用いて、本研究で使用する材料について蒸発条件および溶融条件について計算した結果を図3-3に示す。計算に使用した材料定数

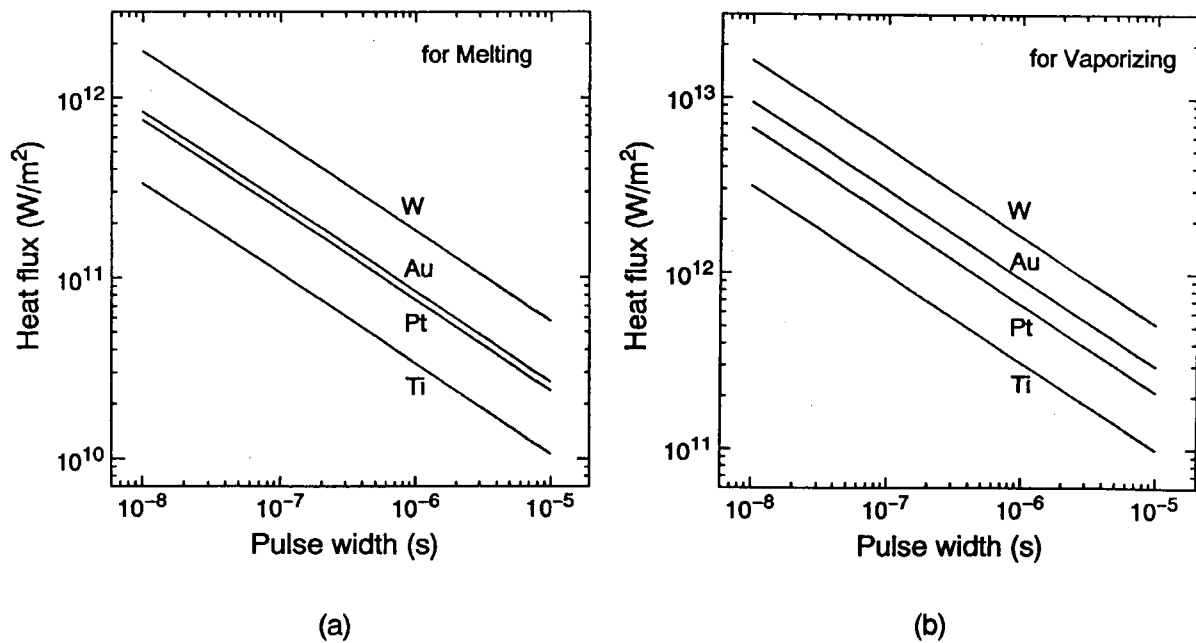


図3-3 材料の溶融・蒸発条件
(a)溶融 (b)蒸発

を表3-1に示す。それぞれの材料において、実線よりも高いエネルギー密度を与えると溶融および蒸発を起こすことを示している。

表3-1 材料物性値

	Au	Pt	Ti	W
融点(K)	1337.4	2045	1948	3660
沸点(K)	2983	4100	3535	6200
融解熱(kJ/mol)	12.36	21.7	15.47	35.36
蒸発熱(kJ/mol)	338.1	447.3	420.5	823.5
熱伝導係数(W/mK)	299	73	22	139
比熱(J/kgW)	135	141	580	140
密度(kg/m ³)	1.93x10 ⁴	2.14x10 ⁴	4.54x10 ³	1.91x10 ⁴
熱拡散係数(m ² /s)	1.15x10 ⁻⁴	2.42x10 ⁻⁵	8.35x10 ⁻⁶	5.2x10 ⁻⁵

材料によって異なるが、例えば、Ptの場合、加熱時間を10nsにすると、 $7 \times 10^{11} \text{W/m}^2$ 以上のパワー密度の熱流束を与えると、表面から深さ $D_p = 1.0 \mu\text{m}$ の領域が、溶融することになる。さらに、 $6 \times 10^{12} \text{W/m}^2$ 以上の熱流束では、蒸発が起こる。Auは熱の拡散速度が早いので、溶融・蒸発させるためにはPtよりも高いパワー密度を必要とすることがわかる。

3. 2 バイアス電圧とパワー密度

一般にSTMにおいては、金属表面を観察するときには、探針と試料間に10mVから0.1V程度の電圧を印加し、トンネル電流を0.1nAから10nA程度に設定する。この場合ギャップ間隔は1nm以下である。ギャップ長をこの距離に保った状態で、1V以上の電圧を印加すると、電界強度が 10^9V/m 以上となり、2章で述べたように電界放出が起こると予想できる。電界放出が起こると、電界強度が大きくなるに従い電流密度は急激に増加し、それとともに電子の持つエネルギーも増加する。Simmonsの式(2-1)で求められた電流密度とそのときの印加電圧との積をパワー密度(W/m^2)として計算し、電界強度との関係を求めた。その結果、図3-4に見られるように、トンネル距離1nmの条件において、電界強度が $3 \times 10^9 \text{V/m}$ (印加電圧3V)程度からパワー密度の増加率が上昇し始め、電界放出電流が支配的と

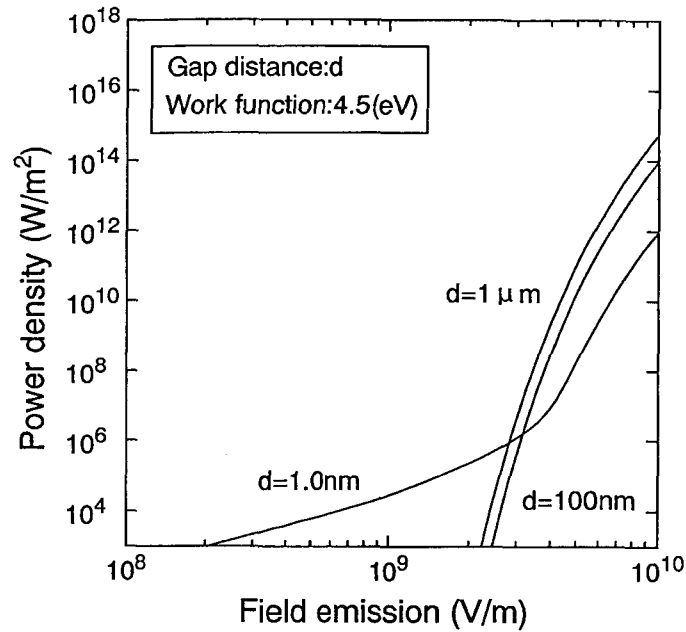


図3-4 電界放出による電界強度および距離とパワー密度の関係

なる電界強度 $4 \times 10^9 \text{V/m}$ から急激に増加し、 $5 \times 10^9 \text{V/m}$ になると 10^8W/m^2 に到達することがわかる。図3-3によると、このパワー密度では、熔融を起こすためには加熱時間を長くする必要があるが、電界強度をさらに高くすることによって、パワー密度を高くすることができ、熔融・蒸発条件を満たすパワー密度を得ることが可能となる。また、2章で述べたように距離が数nm以上になるとトンネル電流はほとんど流れなくなり、電界放出電流が支配的となる。このとき、同じ電界強度においては、電極間の距離が長くなるほどパワー密度は増加することがわかる。以上のように、電界放出電流を利用することによって、電極あるいは試料表面にエネルギーを与えることができる。

3.3 実験方法

試作したSTMは、SEM内で(真空度 10^{-3}Pa)で使用した。試料としては、99.95%の金ワイヤをガスバーナーによって球状に熔融させたものを用いた。この方法によって、比較的簡単に、微視的に平滑な面を得ることができる¹⁸⁾。探針には、市販のPt-Irを使用し、以下のように実験を行っ

た. 通常の印加電圧(約50mV)で, 試料表面を走査してSTM観察し, 表面が比較的平坦な場所を選び, 走査中に任意の場所で, 印加電圧にパルス電圧を重畳させ, その後STM観察を行う. このとき重畳させるパルス電圧と, パルス幅を変化させて, その影響を調べた. このとき重畳するパルス電圧波形を図3-5に示す. 本実験では, 表面形状をSTM観察している状態でパルスを印加するため, パルス幅は, 制御系に影響を与えない程度の短時間にする必要がある.

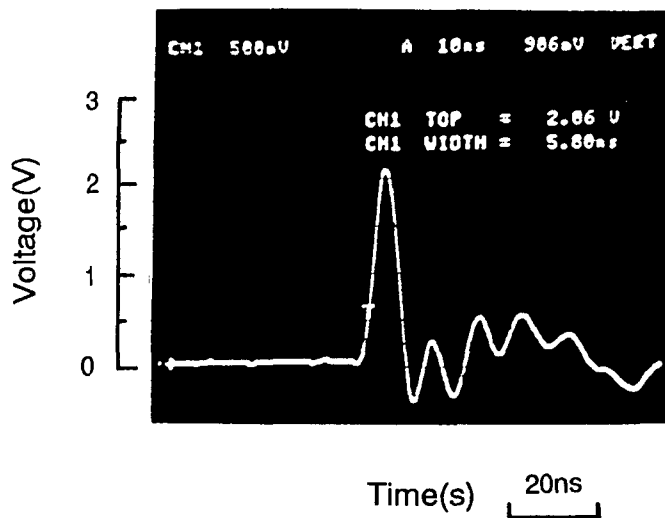


図3-5 バイアス電圧に重畳させるパルス波形

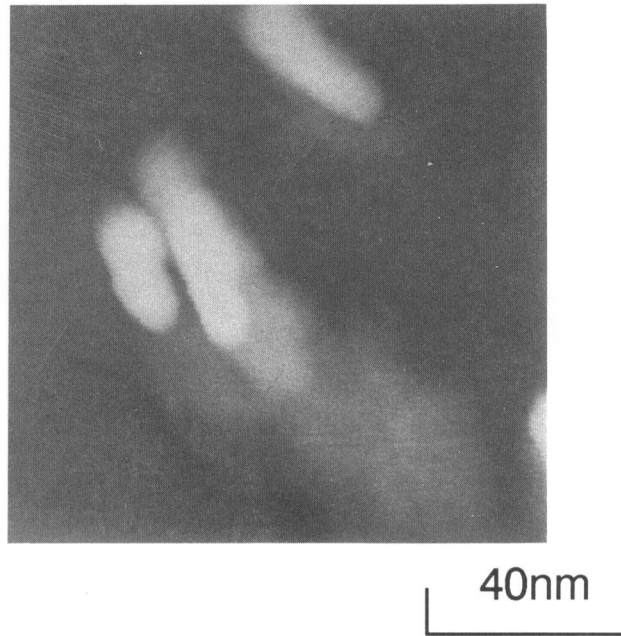
制御回路で最も周波数特性

の悪いところはI/Vコンバータであり, この周波数特性は, 2kHzで-1dB 100kHzで-30dBである. 従って, パルス波長を, 10 μ sよりも短くすれば制御に影響を与えなくなる. 実際に実験に使用したパルスの幅は, 40nsであるので, このパルス電圧を印加することによる制御系への影響はない.

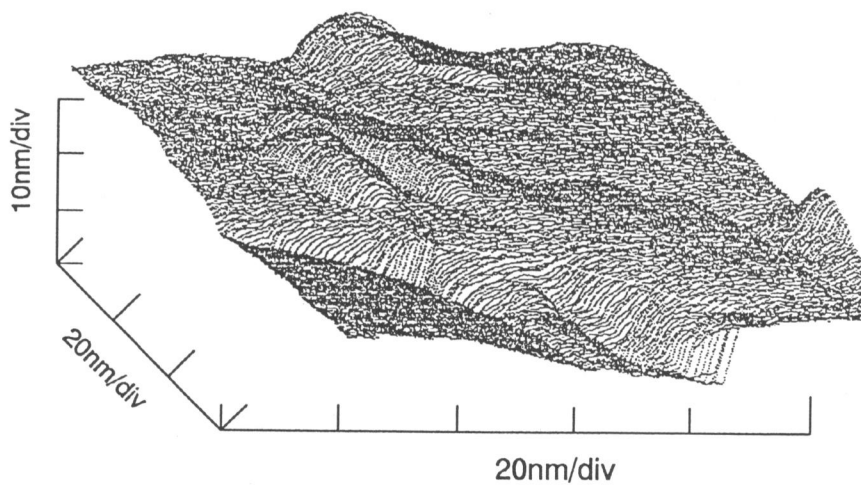
3. 4 実験結果

パルス印加後の試料表面のSTM像の例を図3-6に示す. 2章のSTM像と同様に明るくなるほど高くなっていることを表している. 3つの明るくなっているところがあるが, これがそれぞれパルスを1ショットづつ印加した位置である. この例におけるパルス条件は, パルス電圧2V, パルス幅15nsである. この蒸着物の大きさは, 印加するパルスの条件で変わり, パルス電圧が2V以下になるとこのような蒸着物は, 観察されなかった. また, パルス電圧が5V以上あるいはパルス幅が40ns以上になると, STM像がパルス印加前後で大きく変化し, パルスを加える前の像とまったく異なった画像となる. これは, 電極の蒸発量が多くなり, 探針の変化が激しいために探針の最先端の位置が大きく変化したために観察位置が変化した

もしくは、過大な入熱により、電極の蒸発とともに、試料表面が広い範囲にわたって蒸発したことが考えられる。従って、本実験では、パルス電圧2から5V、パルス幅40ns以下、の条件で行った。この条件の下では、パルス印加による蒸着物の生成は、再現性良く行われた。



(a)



(b)

図3-6 パルス印加後の金表面のSTM像 (a)グレースケール (b)鳥瞰図
(パルス電圧：2V,パルス幅：15ns)

パルス印加後に蒸着した蒸着物の占める面積をSTM像から求め、パルス条件によって整理すると図3-7のようになる。(a)はパルス幅10nsで一定としたとき、(b)はパルス電圧2.7Vで一定とした場合である。パルス

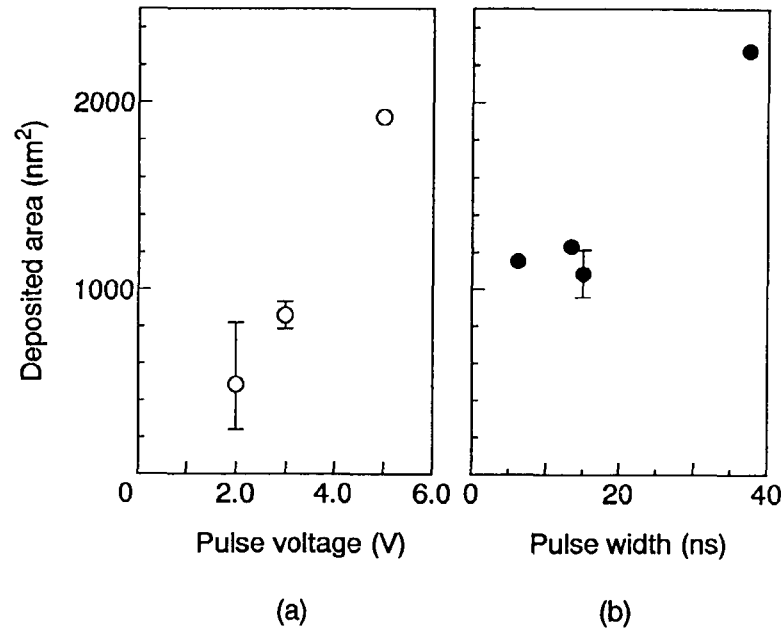


図3-7 パルス条件と蒸着物の面積
 (a) パルス電圧 (パルス幅: 10ns)
 (b) パルス幅 (パルス電圧: 2.7V)

電圧の増加とともにまたは、パルス幅の増加とともに蒸着面積が増加することがわかる。

この蒸着物が図3-8のように球の一部であると仮定し、蒸着物の占める面積を同じ面積 S (m²) を持つ円に直し、STM像から頂点と思われる場所の高さ h (m) を求め、次式に従ってこの蒸着物の体積を求めた。

$$V = \frac{3Sh + \pi h^3}{6} \dots (3-1)$$

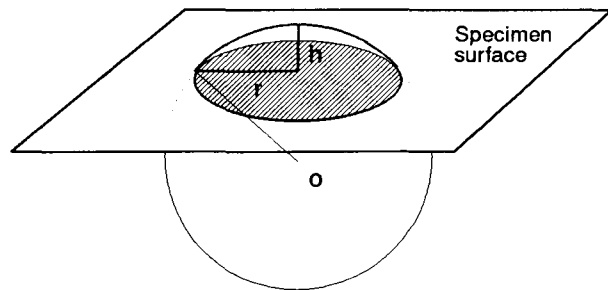


図3-8 蒸着部のモデル

このとき蒸着物の実効的な半径は、15～25nmとなる。この計算によって求めた体積と、パルス条件との関係を図3-9に示す。面積と同様体積も、パルス電圧およびパルス幅の増加とともに増加していることがわかる。特にパルス幅に対しては、ほぼ比例関係にある。

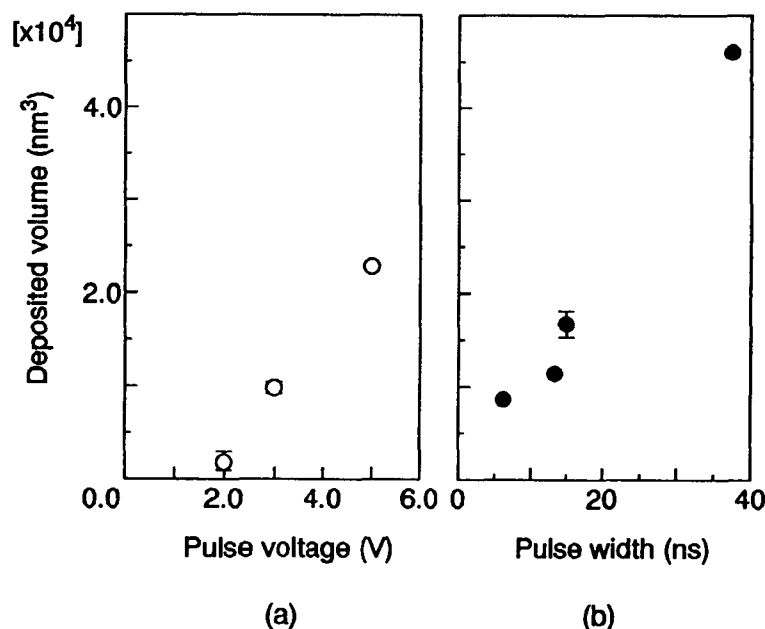


図3-9 パルス条件と蒸着体積の関係
 (a)パルス電圧(パルス幅：10ns)
 (b)パルス幅(パルス電圧：2.7V)

この現象は、探針先端における電界強度が高いために、電界蒸発が起こっていると説明されている¹⁹⁾²⁰⁾。電界蒸発は、FIM(Field Ion Microscope)の原理として知られており、パルスを印加するごとに電極先端のステップから一原子ずつ剥がされていくものである。Müller²¹⁾によると金属が電界蒸発を起こすために必要な電界強度は、数 10^{10} V/m以上である。アトムクラフトと呼ばれるような原子を一つづつ蒸着させるような実験結果が得られる場合には、電界蒸発が起こっている可能性もあるが、本実験のような比較的大きなクラスタとして形成される場合、これらのすべてが電界蒸発を起こすような強電界を受けているとは考えにくい。そこで、この蒸発が電界放出電流によって起こると考え、パルスを加えたときに電極と

試料間を流れる電流を計算した。この計算を行うにあたり、次の事項を仮定した。

(1) 探針および試料の表面は、清浄で、理論値に等しい仕事関数を持つとする。従って探針と試料間の平均障壁高さは、 $\phi = 5.0\text{eV}$ (Pt:5.3eV, Au:4.8eV)となる。

(2) S T M観察時のトンネル電流の流れる領域を 1nm^2 と見なす。

これらの仮定の下で、実験における S T Mの観察条件である、バイアス電圧50mV、トンネル電流1 nAをみたすような探針と試料間の距離を(2-2)式から求めると、 $s=0.39\text{nm}$ となる。この距離における印加電圧と電流密度の関係は、(2-2)式より図3-10のようになる。このグラフから、パルス電圧によって流れる電流密度を求めることができ、従って電流密度と電圧の積で表されるパワー密度も計算することができる。数Vのパルス電圧で、 10^{10}W/m^2 を超えるパワーが投入されていることになる。

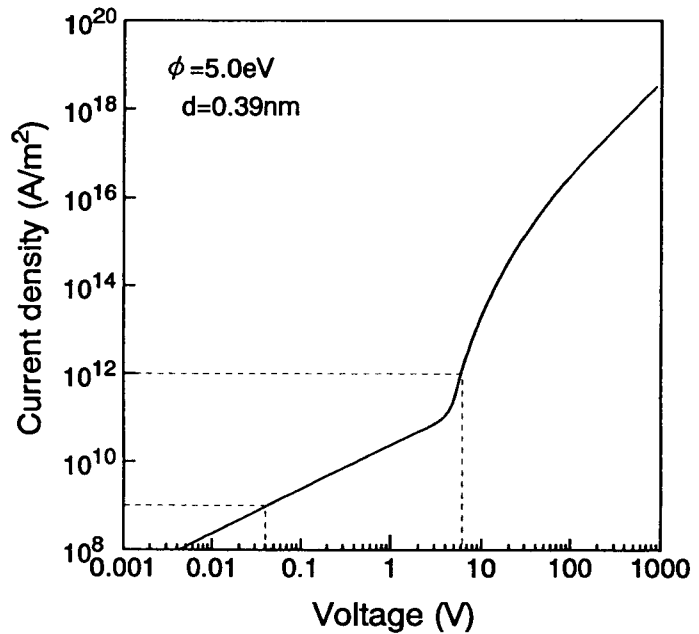


図3-10 蒸着条件における電極間の電流と電圧の関係

図3-3によると、半無限平板を仮定した場合、10ns程度のパルス時間においては、このパワー密度では、試料材料であるAuおよび電極材料であるPtの溶融・蒸発は起こらないことになる。しかし、電極先端は非常にとがっているため、電極の先端に高密度の電流が集中して流れる。したがって、この集中して流れる電流によって、先端がジュール加熱され、蒸発したものと考えざるを得ない。

3. 4 結言

相状態を考慮した，材料の溶融・蒸発と投入エネルギーの関係を検討した．その結果，金属において，加熱時間が1 μ s以下の時には，溶融条件は，パワー密度 10^{10} から 10^{12} W/m²，蒸発条件は， 10^{11} から 10^{13} W/m²の範囲にある．また，試作したSTMを用いて，探針と試料間のバイアス電圧にピーク電圧2~4V，幅7~40nsのパルス電圧を重畳することによって，金表面にナノメートルレベルの蒸着物を形成した．このとき蒸着する体積はパルス電圧およびパルス幅に依存し，電圧が高くなる，あるいはパルス幅が長くなるほど，蒸着体積が増加する．

第4章 微細電極を用いたマイクロ放電現象とその特性

試作したSTM装置を用いて、マイクロメートルレベルの絶縁破壊とそれにもなう放電現象について検討している。電極と試料の微小な間隔に直流電圧およびパルス電圧を印加すると、絶縁破壊が起こり、続いて放電が発生することを、電流および電圧波形、あるいは、発光を調べることによって、確認している。特に、真空絶縁破壊に影響をおよぼす因子として、

- ① 電極と試料間の距離
- ② 電極先端の形状
- ③ 試料材料
- ④ 電極と試料間に加える電圧およびそのときの電界強度
- ⑤ 絶縁破壊をおこす前に流れる電流（前駆電流）

を取りあげ、互いに密接に関係しているこれらの因子について、相関関係を調べることによって、微小ギャップの絶縁破壊について検討した。

4.1 実験方法

直径90 μm のタングステンワイヤ(純度99.95%)を図4-1のような方法で電解研磨し、先端曲率半径をサブミクロンに加工して、これを電極として用いた。電解溶液は、10%NaOH溶液で、ステンレスの陰極との間に2~3Vの電圧をあたえた。電圧がこれ以上になると、反応速度（電極の研磨速度）が早くなるが、電極の先端は、丸くなる。電界研磨中の電流は、約60mAで飽和する。図のように、ステンレス陰極をリング状にし、その中心付近にタングステンワイヤを置くことで、タングステンから電流が放射状に流れ、タングステンワイヤを等方的に研磨することがで

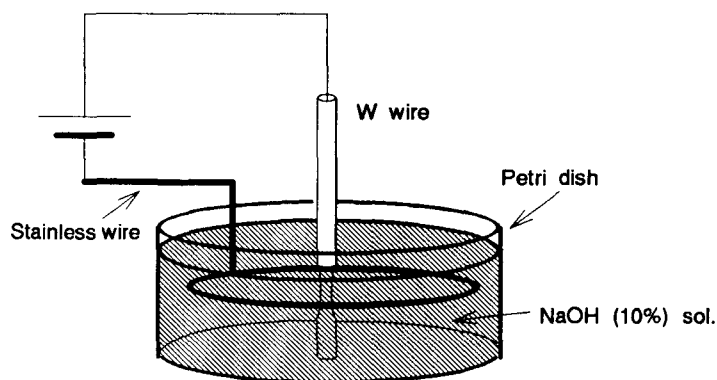


図4-1 電解研磨による電極作成方法

きる。この方法によって作成したタン
グステン電極のSEM像を図4-2に
示す。先端の非常にとがった電極を得
ることができる。

試料は、主に99.95%金板と
99.5%チタン板をバフ研磨したものを
用いた。この電極と試料をSTMに取り
付け実験を行った。実験では、
ギャップ長をナノメートルレベルで調
整するので、STMを高精度の位置合

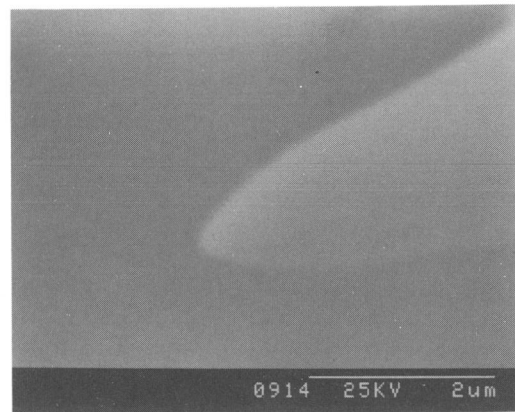


図4-2 タングステン電極先端部のSEM像

わせ装置として利用した。また、SEMによってその場観察しながら行
った。ただし、絶縁破壊を調べるために電圧をギャップ間に印加するときは、
電子ビームの影響を避けるためSEMによる観察はせず、それぞれの試験調
査が終わるごとに逐次SEMで電極あるいは試料表面の観察を行った。ま
た、SEM内に光電子増倍管（浜松ホトニクス製 R2228）を取り付け、放
射光の検出を可能としてある。

電極と試料間の距離を決定するために、次のような方法を採用した。S
EMで観察しながら、圧電素子に電圧を与えることによって電極を試料に
ゆっくりと近づけ、接触させる。この位置を距離の原点とし、再び電極を試
料から離してゆく。このとき、原点における圧電素子電圧と、電極を離れた
ときの電圧の変化分を読みとり、電極と試料間のギャップ長とした。

使用した電気回路を図4-3に示す。抵抗Rは、回路内を流れる電流を
制限するための制限抵抗で
あり、抵抗rは電流を検出
するための抵抗である。こ
の2つの抵抗により、電極
と試料間の電圧と電流に
は、次の関係が成立する。

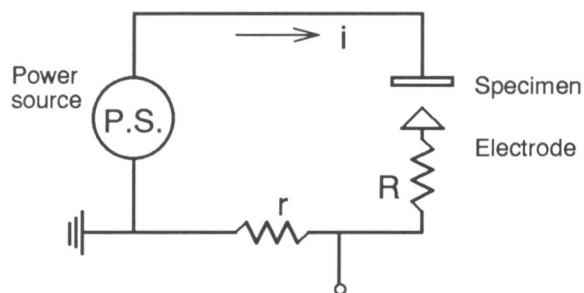


図4-3 絶縁破壊実験の電気回路図
(直流実験；R=200kΩ,r=10kΩ：
パルス実験；r=50Ω)

$$V = E - (R+r)i$$

・・・(4-1)

ただし、 V ：ギャップ間電圧、 E ：電源電圧、 R ：制限抵抗、 r ：電流モニター用抵抗、 i ：ギャップ間を流れる電流、である。

直流実験においては、電圧をコンピュータからD/Aコンバータ、高電圧アンプを通して、ギャップ間に印加し、回路を流れる電流と光電子増倍管からの信号をA/Dコンバータを通してコンピュータに取り込み、ギャップ間電圧に対する、電流および発光の関係を調べた。また、これと同時に電流と光の信号をメモリスコープに取り込み、瞬間的な現象を詳しく調べることができるようにした。直流実験では、大きな電流を流すと装置の破壊につながるため、制限抵抗 R を200k Ω に設定した。また、抵抗 r を10k Ω に設定することで、数 μ Aの電流を測定できるようにした。パルス実験においては、抵抗 r を50 Ω に固定して、インピーダンスが50 Ω の同軸ケーブルにてメモリスコープに取り込み、高速な現象、特にパルス電圧が立ち上がるときの電流信号を観察した。また、制限抵抗 R を変化させることで、電流の影響についても検討した。なお、実験を通して、電極側を陰極、試料側を陽極とした。

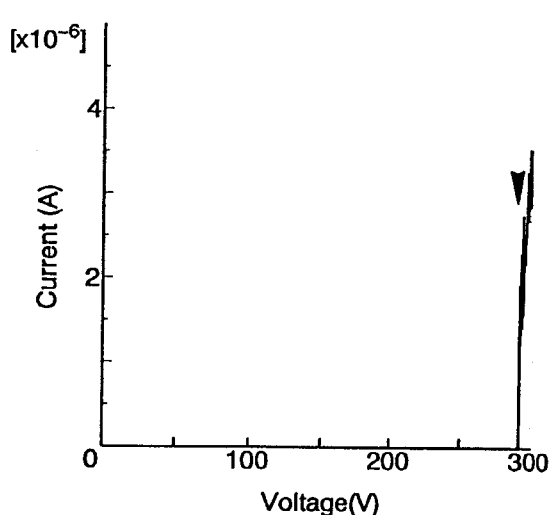
4. 2 直流電圧を加えたときの絶縁破壊

4. 2. 1 絶縁破壊時の電流の電圧依存性

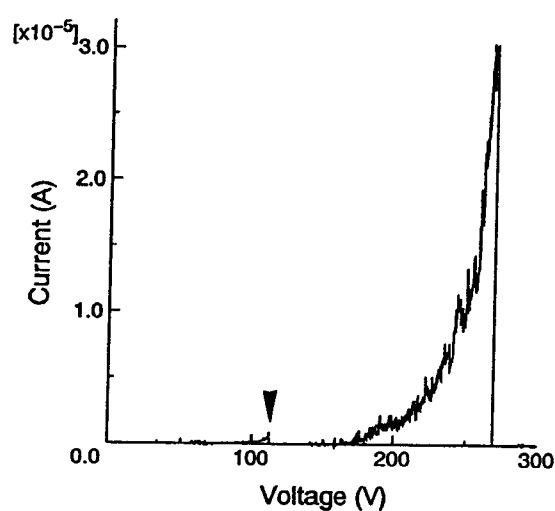
電極と試料間のギャップ長をある距離に設定し、電極と試料間にゆっくりと上昇する電圧を印加すると、電圧の値に従って、ギャップ間に電流が流れる。このときの電流の波形は、電極および試料の形状や表面状態によって様々な形態をとる。試料に金を用いたときの典型的な電流波形の例を図4-4と図4-5に示す。いずれもギャップ長を450nmとしたときの電流の電圧依存性(a)と時間的变化(b)を示しており、また、図中の矢印の部分で瞬間的に光が検出された。

電流波形は、図4-4のように、電圧がある値になると瞬間に電流が流れ始め、それと同時に光を発生する場合 (Type I) と、図4-5のように、電流が電圧の増加とともに徐々に流れ始め、電流がある値になると電流が急激に減少し、このときに発光する場合 (Type II)、の2つの型に分けることができる。また、このような光が発生したときには、試料表面および電極先端が溶融していることをSEMによって確認した。試料表面が溶融するの

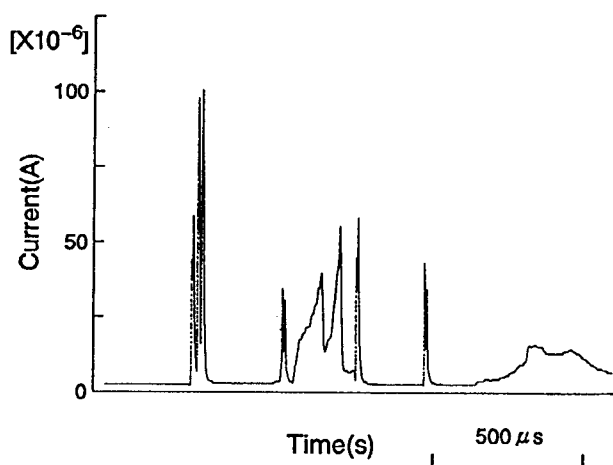
で、溶融が起こるたびに、電極を移動させ、試料の平坦な部分で実験を行った。光が発生した瞬間の電流波形を、メモリスコープで詳しく観察すると、それぞれ図4-4, 5(b)に見られるようにどちらのタイプにおいても、数百 μ A程度の電流が瞬間的に流れていることが観察できた。このことから、瞬間的に大きな電流が電極先端に集中して流れることで、溶融が起こると推測できる。この瞬間的に流れる大きな電流はアーク電流の特徴を持つが、詳細は、4.4で述べる。



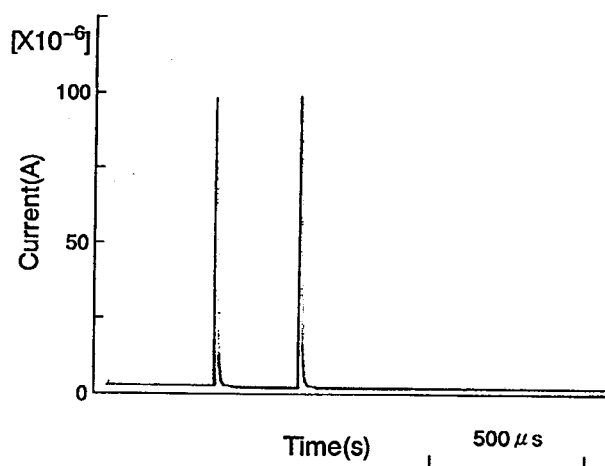
(a)



(a)



(b)



(b)

図4-4 絶縁破壊時の電流特性 (Type I)
(a)電圧依存性 (b)絶縁破壊瞬間
(矢印時)の電流波形

図4-5 絶縁破壊時の電流特性 (Type II)
(a)電圧依存性 (b)絶縁破壊瞬間
(矢印時)の電流波形

このような光が検出されるとき、ギャップ間隔と電圧との関係を求めると、図4-6のようになる。この図からギャップ間隔 d と電圧 V との間には、

$$V = 5 \times 10^6 d^{0.7} \quad \dots (4-2)$$

という関係が成立する。これは、従来の数十 kV の高電圧における真空絶縁破壊の研究²²⁾で報告されているような、ギャップ間隔と絶縁破壊電圧との関係と良く似ている。このことから、 $1 \mu\text{m}$ 以下の微小なギャップにおいても、従来の高電圧における絶縁破壊現象と同様の現象が起きていることが予想できる。従って、絶縁破壊時に見られる光は、放電による発光であると考えられることができる。また、本実験において絶縁破壊が起こる電界強度を求めると、 3×10^8 から $1 \times 10^9 \text{V/m}$ であった。この値は、従来の高電圧における絶縁破壊時と同等の電界強度である。

Type II の電流を FN プロットすると、図4-7のように直線となり、2.1に述べたことから、電界放出電流あると考えられる。すなわち、最初に電界放出電流が流れ、その後、絶縁破壊を起こしていることになる。Dyke²³⁾らによる、超高真空中における良くクリーニングされた電極を用いた高電圧の絶縁破壊実験では、前

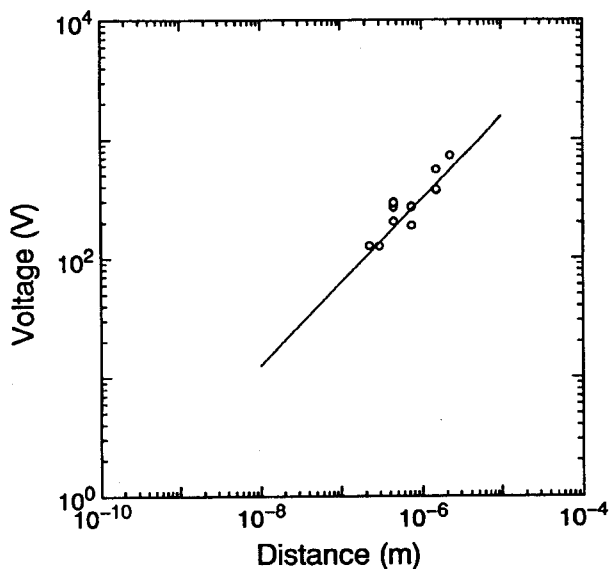


図4-6 直流絶縁破壊電圧とギャップ長の関係

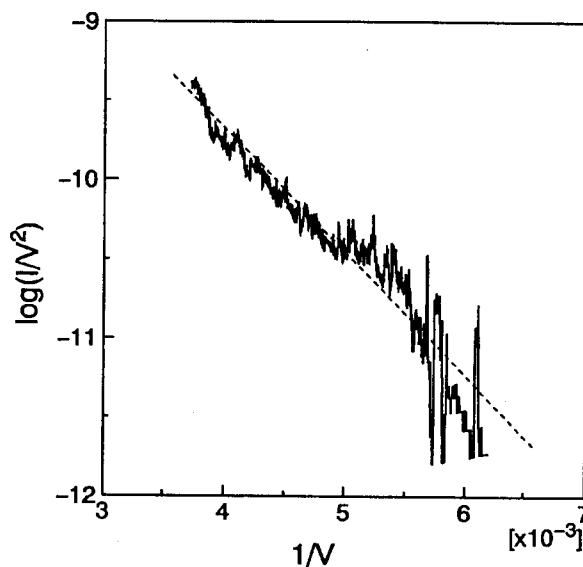


図4-7 Type II の電流波形の Fowler-Nordheimプロット

駆絶縁破壊電流と呼ばれる電流によって絶縁破壊が引き起こされ、この前駆絶縁破壊電流は電界放出電流であることがわかっている。彼らの説明では、電界放出電流が流れることで、陰極を加熱し、これがさらに電流を増加させ、ジュール加熱によって電極が熔融し蒸発する。電極蒸気が電子との衝突によってイオン化し、電流の爆発的な上昇によって絶縁破壊し、アーク放電にいたる。このように電極が清浄であれば、電界放出が絶縁破壊開始の役割を果たすことになる。本実験におけるType IIの現象は、Dykeらによって得られた現象と同じであると思われる。

本実験に使用した電極および試料は、清浄化処理を行っておらず、そのため表面には、酸化物、吸着物などが存在している。特にタングステン電極表面には、酸化物が存在し、金の表面には、水分子が吸着していると考えられる。表面に存在する吸着物の厚さや状態は、局部的に異なっているので、電極が試料表面のどの位置にあるかによって、Type IとType IIの2つの電流波形の型が現れるものと思われる。電界放出電流が検出できるType IIの場合には、電極および試料の表面が局部的に清浄に近い状態であることが予想できる。一方、Type Iの場合は、表面に存在する吸着物（酸化物を含む）の影響が考えられる。しかし、Type Iのような絶縁破壊の機構は、明らかでない。一般の絶縁破壊で述べられている説では、表面の不純物がイオン化して、強電界によって加速され、陰極の破壊を起こすというクランプ説がある。Type Iは、この説で述べられているようなことが起こっているのではないかと予想できるが、この説においても不純物のイオン化の過程が明確にされていないので、想像の域をこえない。

4. 2. 2 電界増倍係数と電極先端曲率半径およびギャップ長の関係

本実験において使用したような清浄化を行っていない表面においては、上述の2つの型のうち、Type IIが観察できるのは、ひじょうにまれであり、ほとんどの場合に、Type Iの波形が観察される。このことは、金属表面では、それがたとえ金であっても清浄化処理をしなければ、部分的にさえ清浄な表面状態を得ることが困難であることを示唆している。

2章において、電極の局部的電界強度は、その形状によって決定される電界増倍係数 β を乗じた値となることを述べた。本実験で使用した電極の形

状は、図4-2のように先端がひじょうにとがっているので、電極先端部の電界は、かなり高くなるはずである。電極の形状を図4-8のような双曲面体であると仮定すると、双曲面上の任意の位置の電界強度を解析的に求めることができる²⁴⁾。いま、次のような座標変換

$$\begin{cases} x = a \sinh \eta \sin \theta \cos \phi \\ y = a \sinh \eta \sin \theta \sin \phi \\ z = a \cosh \eta \cos \theta \end{cases} \dots (4-3)$$

によって、双曲面は、 θ の値で決定される。軸対象を仮定し、 $\phi = 0$ 面について考えると、双曲面における電界強度は、次のように表される。

$$E = \frac{V \cos \theta_I}{h \sqrt{\sinh^2 \eta + \sin^2 \theta_I} \cdot \sin \theta_I \cdot \ln \cot \frac{\theta_I}{2}} \dots (4-4)$$

この解析解から、電界強度が最も強くなる場所（双曲面の頂点： $\eta = 0$ ）における増倍係数 β を求めると、次のように表すことができる。

$$\beta = \frac{1}{\sin \theta \tan \theta \ln \cot \frac{\theta}{2}} \dots (4-5)$$

$$\theta = \text{Tan}^{-1} \sqrt{\frac{r}{d}}$$

ただし、 r ：双曲面の先端曲率半径、 d ：双曲面の先端から平面までの距離。

上の式における、 r は電極の先端曲率半径、 d は電極と試料間のギャップ長に相当する。この式から、試料が平坦な面である場合、電極先端における電界増倍係数は、 r/d によって一意的に決めることができることがわかる。従って、電極先端の電界強度は、ギャップ間電圧、電極の先端曲率半径、ギャップ長の3つの要素によって決定することができる。

(4-5)式は、双曲面の頂点における増倍係数であるが、実際の電極を想定した場合、電流は頂点だけでなくその周辺からも流れることが予想できる

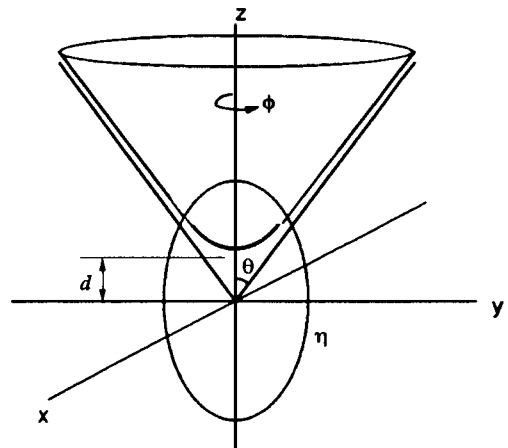


図4-8 双曲面座標系

ので、電極全体の電界強度を考慮した増倍係数と r および d との関係を求める必要がある。そこで、(4-4)式を用いて、双曲面上の各点の電界強度を求め、その電界強度における微小面積当たりの電界放出電流を (2-7)式から算出し、これを積算することで、電極と平面試料間を流れる電流を数値計算した。この計算を、先端曲率半径とギャップ長のいくつかの異なった条件において行い、電流と電圧の関係をFNプロットすると、図4-9のようになる。図のように、双曲面電極であっても、電界放出電流波形は、FNプロットにより直線となる。

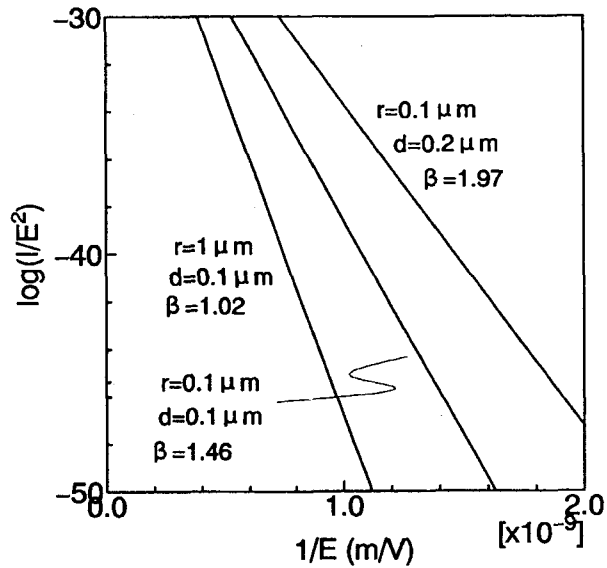


図4-9 計算による電界放出電流のFNプロット

この傾きから β を求め、 r/d との関係を探ると図4-10のような関係が得られる。図中の曲線は、(4-5)式から得られる関係である。このように双曲面電極による β 値は、(4-5)式で得られる値とほとんど同じであり、電極が双曲面であると仮定した場合、電界増倍係数が電極の頂点部分にのみ影響されることがわかる。

次に、本実験における β と r/d の関係を求めるために、Type II の電流波形が得られたときの電極先端のSEM写真から先端曲率半径を求め、電流波形をFNプロットすることでその傾きから β 値を計算し

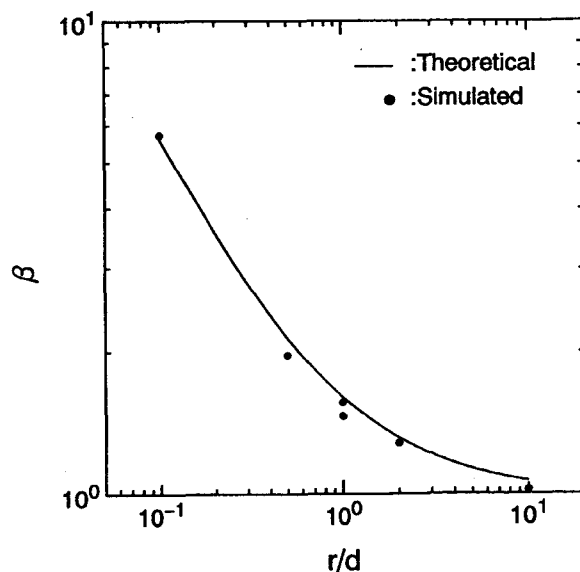


図4-10 計算による β 値と r/d の関係

た. その結果を先に双曲面によって得られた関係と合わせて図4-11に示す. 実験によって得られる β 値は, 計算によって得られる β 値に比べ, 一桁

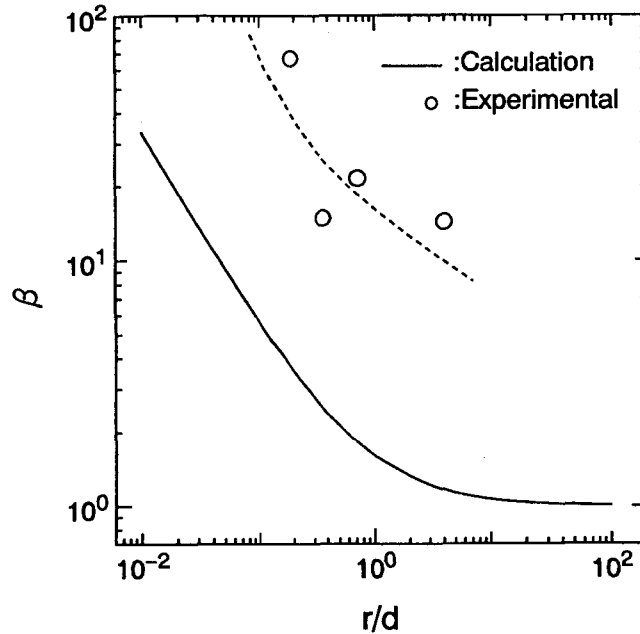


図4-11 実験による β 値と r/d の関係

程度大きくなっている. 実験によって得られる電界増倍係数がこのように計算結果よりも大きくなるのは, 現実の電子放出が, 電界放出だけによるものではないためであると予想できる. Fowler-Nordheimによって導き出された電界放出式は, 電極の温度が絶対零度の状態を仮定している. この仮定は, 室温程度の温度では, 十分成立するであろう. しかし, 電極先端に電流が集中して流れることによって発生するジュール加熱により, 電極先端が熱を持ってくると, 熱電子放出の影響が無視できなくなってくる.

実験によって得られる電流が, 電界放出と熱電子放出の両方の機構によって流れると考えると, 電界強度と電流の関係は, β で表わされる形状効果に加えて温度の効果を考慮する必要がある. 熱と電界の両方の効果を考慮した金属表面からの電子放出の理論的検討は, TF理論として, MurphyとGood²⁵⁾によって1次元について検討されており, 電流密度 J (A/m²)は, 電界強度 F (V/m)と温度 T (K)の関数として次式のように表されている.

(i) 熱放出領域 :

$$\begin{cases} \ln\{(1-d)/d\} - d^{-1}(1-d)^{-1} > -\pi F^{-\frac{3}{4}} \left(\phi - F^{\frac{1}{2}} \right), \\ \ln\{(1-d)/d\} - (1-d)^{-1} > -\pi F^{-\frac{1}{8}}, \end{cases} \quad \text{ただし, } d = F^{3/4} / \pi kT$$

のとき,

$$J = \frac{1}{2} \left(\frac{kT}{\pi} \right)^2 \left(\frac{\pi d}{\sin \pi d} \right) \exp \left\{ - \left(\phi - F^{\frac{1}{2}} \right) / kT \right\} \quad \dots (4-6)$$

(ii) 電界放出領域 :

$$\begin{cases} \phi - F^{\frac{1}{2}} > \pi^{-1} F^{\frac{3}{4}} + kT(1-ckT)^{-1}, \\ 1-ckT > (2f)^{\frac{1}{2}} kT, \end{cases} \quad \text{ただし, } \begin{cases} c = 2\sqrt{2} F^{-1} \phi^{\frac{1}{2}} t \left(F^{\frac{1}{2}} / \phi \right), \\ f = \frac{1}{2} \sqrt{2} F^{-1} \phi^{\frac{3}{2}} (\phi^2 - F)^{-1} v \left(F^{\frac{1}{2}} / \phi \right), \end{cases}$$

のとき,

$$J = \frac{F^2}{16\pi^2 \phi t^2} \left(\frac{\pi ckT}{\sin \pi ckT} \right) \exp \left(- \frac{4\sqrt{2} \phi^{\frac{3}{2}} v}{3F} \right) \quad \dots (4-7)$$

(iii) 中間領域における電子放出 :

$$\begin{cases} \left(F^{\frac{1}{2}} / -\eta \right)^{-1} > 1 + \pi^{-1} F^{\frac{1}{4}} d(d-1)^{-1}, \\ -\frac{F^2}{8(kT)^2} > -\phi + kT \frac{1}{1 - F(2\sqrt{2}\phi^{1/2}kT)^{-1}} \end{cases}$$

$$\text{ただし, } d = 2\sqrt{2}\pi^{-1} \left(F^{\frac{1}{2}} / -\eta \right)^{\frac{1}{2}} t \left(F^{\frac{1}{2}} / -\eta \right), \eta = -F^2 / 8(kT)^2$$

のとき,

$$J = \frac{F}{2\pi} \left(\frac{kTt}{2\pi} \right)^{\frac{1}{2}} \exp \left(- \frac{\phi}{kT} + \frac{F^2 \Theta}{24(kT)^3} \right), \quad \text{ただし, } \Theta = 3t^{-2} - 2vt^{-3} \quad \dots (4-8)$$

ただし, v, t : 楕円関数, ϕ : 仕事関数(eV)

k : ボルツマン定数; 1.38×10^{-23} J/K, である.

上記の式を用いて、仕事関数4.5(eV)として、温度 300, 1000, 1300, 1700, 3000K における電流密度と電界強度の関係を求めた結果を図4-12に示す。点線で表した部分は、上記のいずれの領域にも属さなかった部分を概挿したものである。電極温度が300K程度までは、0Kの時とほとんど同じ曲線となる。電流密度は、電界強度の広い領域にわたって、温度の上昇とともに増

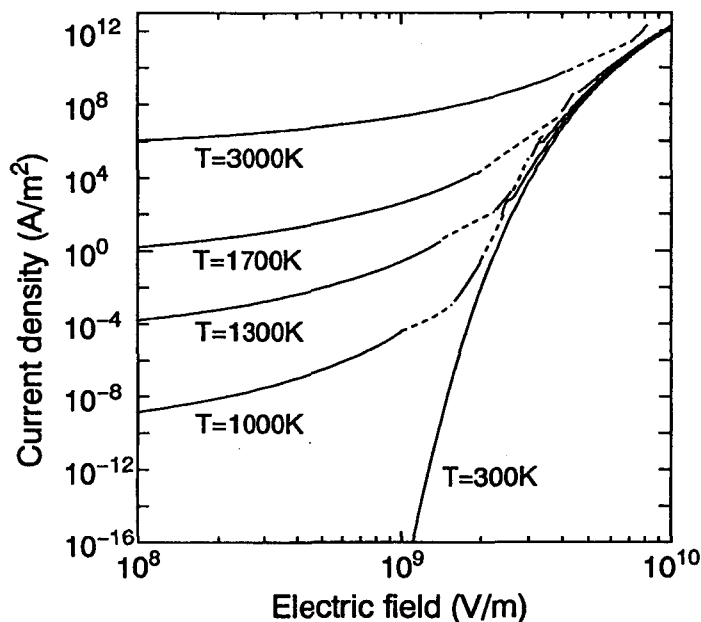


図4-12 TF理論による電流密度と電界強度の関係

加するが、電界強度が低くなるほど温度の影響が大きくなり、熱電子放出による電流が支配的となる。電界強度が 10^{10} V/mと高くなると温度の影響は、ほとんど無視できる程度になり、電界放出電流が支配的となる。

この電流密度と電界強度の関係を、FNプロットすると、図4-13のようになる。電極温度が300Kの時は、その傾きは電界強度によらず一定である。電極の温度が上昇すると図のように、電界強度によってその傾きが大きく変化することがわかる。電界強度が 1×10^9 V/mより小さい ($1/E > 1 \times 10^{-9}$ m/V) 場合は、熱電子による支配が強くなるので、電界強度の影響をあまり受けなくなり、傾きは0に近づく。電界強度が 2×10^9 V/m以上 ($1/E < 5 \times 10^{-10}$ m/V) において、ほぼ直線となり、その傾きは、温度の増加とともに小さくなっていくことがわかる。このことは、温度によって見かけ上 β が変化

するようなふるまいを示しており、実験データをFNプロットしたときに得られる βe は、電界と温度の両方に依存していると考えられる。

温度によって見かけ上変化する増倍係数を温度補正係数 α として、図4-13からそれぞれの温度における傾きから α を算出し、 α と温度および電界強度との関係を求めると図4-14のようになる。電極温度が300Kの場合は、補正係数 α は1となり、温度による影響はほとんどない。1000Kになると、電界強度によって α の値は、大きく変化する。電界強度が低いほど温度の影響が大きくなり、例えば電界強度 $1.5 \times 10^9 \text{ V/m}$ では、 α は約3になる。さらに、電極温度が3000Kになると、電界強度が $1.5 \times 10^9 \text{ V/m}$ のときに α は100を越える。

電界増倍係数 β は、図4-10に従って、電極先端の曲率半径 r と

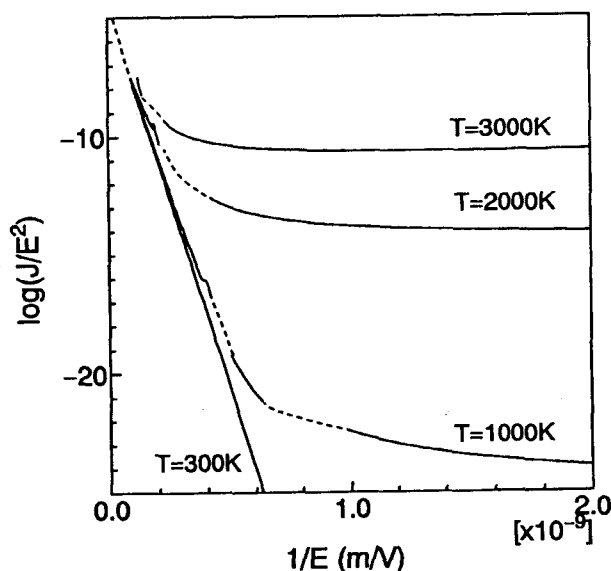


図4-13 TF理論から導かれる電流のFNプロット

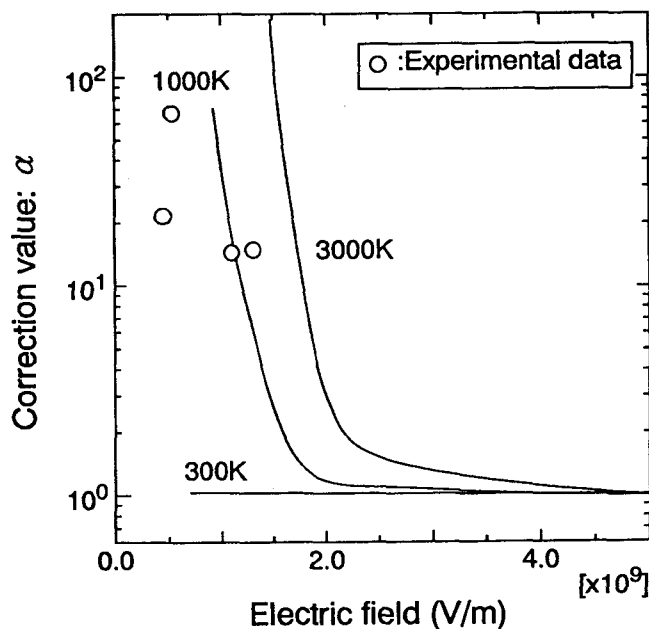


図4-14 温度補正係数 α と温度および電界強度との関係

ギャップ長 d によって求めることができ、電極先端の電界強度は、この β と電極と試料間の平均的な電界強度 E との積 βE で表すことができる。したがって、実験で得られた電界増倍係数 β_e は、電極先端の電界強度 βE における、電極温度に対応した温度補正係数 α であると考えることができる。そこで、実験データを図中にプロットすると、白丸印のようになる。これから、直流絶縁破壊の前に流れる電界放出電流によって、電極先端の温度は、1000K前後になっていると推測できる。

4. 2. 3 絶縁破壊後の電流特性

従来の高電圧での真空絶縁破壊においては、絶縁破壊をすると、放電が起こり、電極間をアーク電流が流れる。本実験におけるType IIの場合、発光した後、電流が流れる場合と電流が流れなくなる場合があった。一方、Type Iの場合、発光と同時に電流が流れ出す。この絶縁破壊後の電流について考察する。電極と試料間ギャップをある長さに設定し、周波数0.5Hzの三角波電圧を印加する。最初の電圧の上昇時は、前節の絶縁破壊の実験と同様であるが、繰り返し電圧を加えることで、絶縁破壊後の電圧と電流の関係を得ることができる。両タイプの絶縁破壊後において、電流が流れる場合の波形は、図4-15のように電圧の増減に対し、電流も増減を繰り返す。前節で

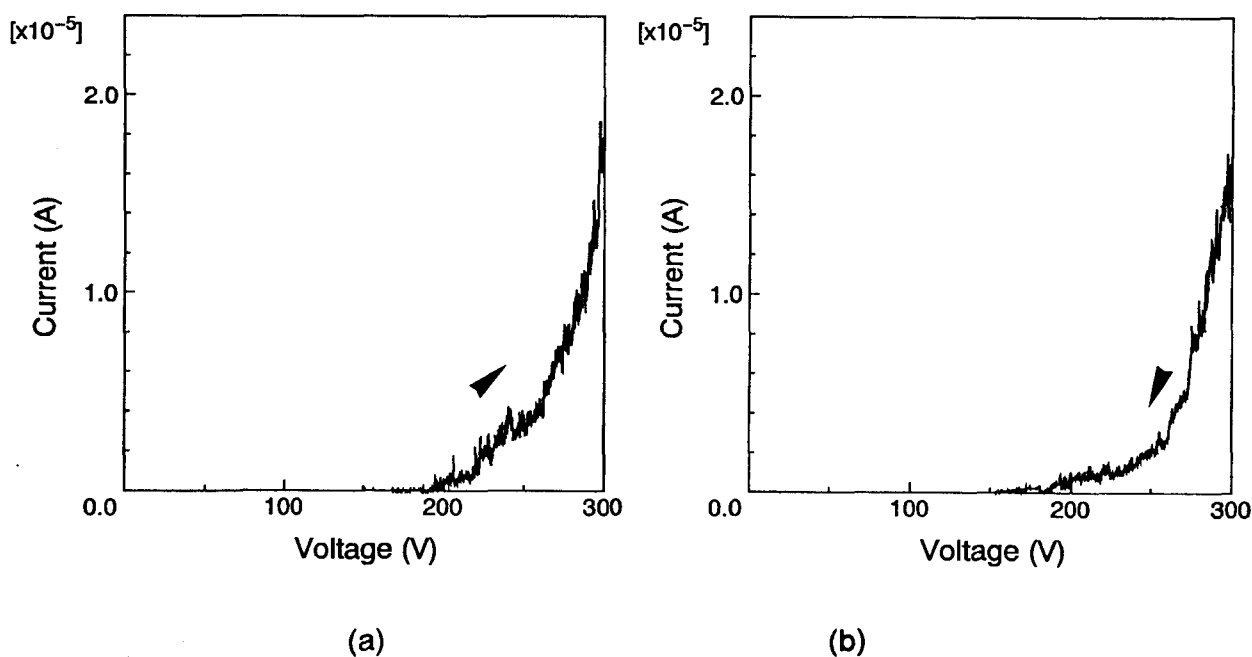


図4-15 絶縁破壊後の電流の電圧依存性

(a)電圧増加時 (b)電圧減少時

述べた絶縁破壊前の電流波形に比べ、絶縁破壊後の電流波形はひじょうに再現性良く得ることができる。これは、真空内で、電極と試料の両方とも熔融することによって、表面が清浄になるためであると予想できる。この電流をFNプロットすると、図4-16のように直線になることから、この電流は、電界放出電流であることがわかる。すなわち、本実験のようなサブミクロンの微小なギャップ間では、絶縁破壊後の放電はほとんど持続せず、光が検出される瞬間に、 $100\mu\text{A}$ を越えるピークを持つ電流が瞬時的（約 $10\mu\text{s}$ ）に流れ放電が終了し、その後電極と試料間には、 $10\mu\text{A}$ 以下の電界放出電流が流れる。

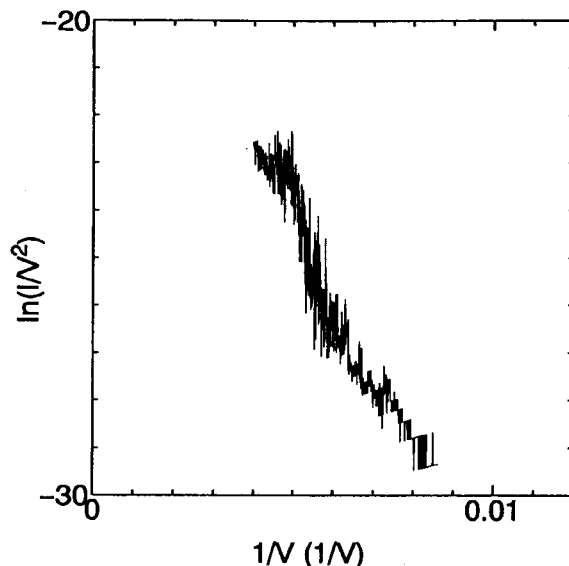


図4-16 絶縁破壊後の電流のFNプロット

Type IIにおいて、絶縁破壊後に電流が流れなくなる場合でも、電流が流れなくなってから、三角波電圧を印加した状態で電極を試料に少し近づけると、再び電流が流れ出すことが観察される。このときの電流は、同様に電界放出電流である。このことから、Type II型に見られるような、絶縁破壊後に電流が流れなくなる理由は、絶縁破壊時の電極あるいは試料の蒸発量が多いために、ギャップ長が長くなり、ギャップ間に電界放出電流を流すために必要な電界強度が保てなくなったためであると考えられる。

4.3 パルス電圧を加えたときの絶縁破壊

4.3.1 絶縁破壊時の電流および電圧波形

直流電圧による実験では、絶縁破壊後の放電している時間が非常に短く、電界放出電流に移行するため、放電現象を調査することは、困難である。従って、絶縁破壊現象を調べるときに、電圧の印加する時間を明確にできるパルス電圧を用いることは、有効な手段である。電気回路は、先に述べた回路を使用し、電源部分をパルス電源に交換して実験を行った。この回路

に接続した際の無負荷時のパルス電圧波形の例を図4-17に示す。この電源は、高速スイッチを使用しており、その性能は無負荷状態で、最大電圧1000V、立ち上がり50ns、最小パルス幅300ns、最大繰り返し周波数10kHzである。あるギャップ長に設定した状態で、パルスを1ショット与える、ギャップ間を電流が流れなければ電極を試料に少し近づける、これを電流が流れ同時に光が検出されるまで繰り返し、パルス電圧による絶縁破壊現象を調べた。

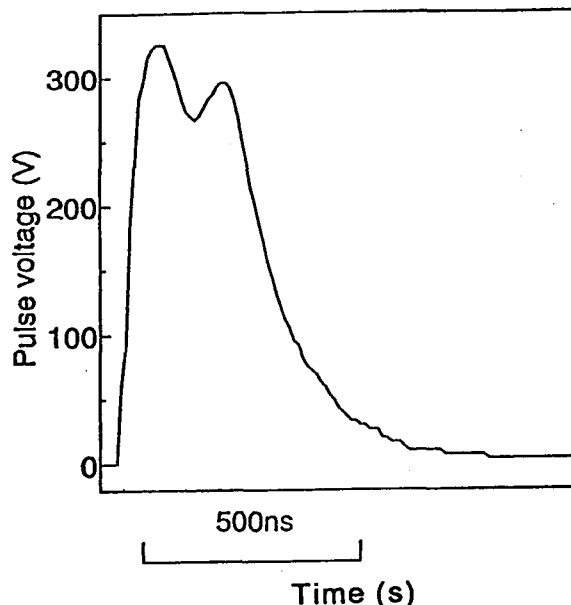


図4-17 パルス電圧波形

金試料に対して、絶縁破壊が起こったときの電流と電圧の波形の一例を図4-18

に示す。この例では、パルス幅300ns、パルス電圧300V、制限抵抗 R を200 Ω としている。電圧は、電源電圧を測定しているの、電極と試料間の

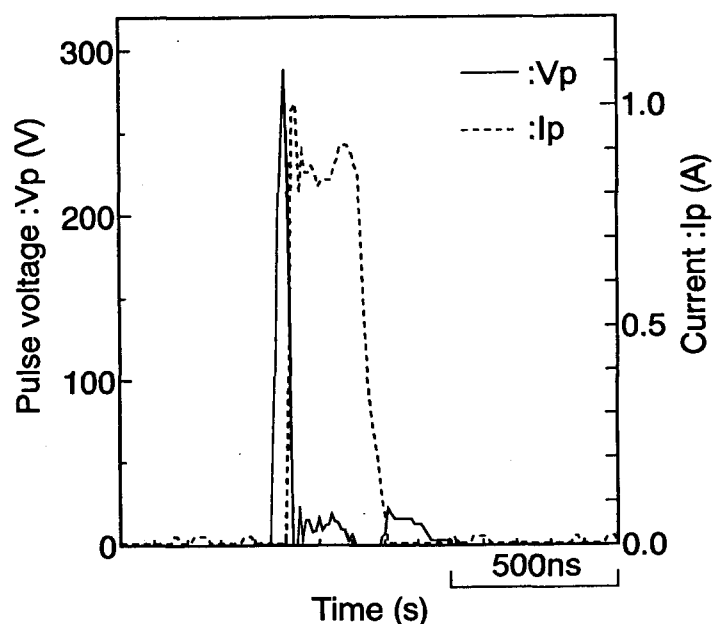


図4-18 パルス絶縁破壊時の電流と電圧波形
(パルス電圧： $V_p=300V$)

ギャップ間に印加される電圧は、(4-1)式から算出している。電圧が印加されて約50ns遅れて電流が流れ出しているが、この時間は、パルス電圧の立ち上がり時間である。すなわち、この電圧がピークに達すると同時に瞬時的に(10ns程度の時間内に)電流がピークに到達していることがわかる。電流は、ピークに達した後そのままの値でパルス幅の時間維持され、そのときのギャップ電圧は、約12V程度になる。この電流波形は、ひじょうに再現性良く得ることができる。このパルス絶縁破壊においても、直流絶縁破壊のときと同様に、電極あるいは試料の溶融が起こり、同時に光が検出される。従って、300ns程度のパルス時間においても放電が起こっていることがわかる。

このギャップ間電圧と電流との関係を詳しく調べた。パルス電圧と制限抵抗を変えることで、ギャップ間を流れる電流値を変えることができる。そこで、絶縁破壊後の電流とギャップ間電圧を測定し、そのときのSEM像から溶融後のギャップ長を測定し、この放電の電流と電圧およびギャップ長の関係を調べた。その結果を図4-19に示す。このときの実験条件として、パルス電圧を100V, 200V, 300V, 制限抵抗を100Ω, 200Ω, 1kΩに設定した。ただし、制限抵抗が1kΩのときには、パルス電圧300Vでのみ測定した。この図から、パルス条件によらず、電流とギャップ電圧の関係が決定され、電流の増加に従い電圧が減少することがわかる。このように低いギャッ

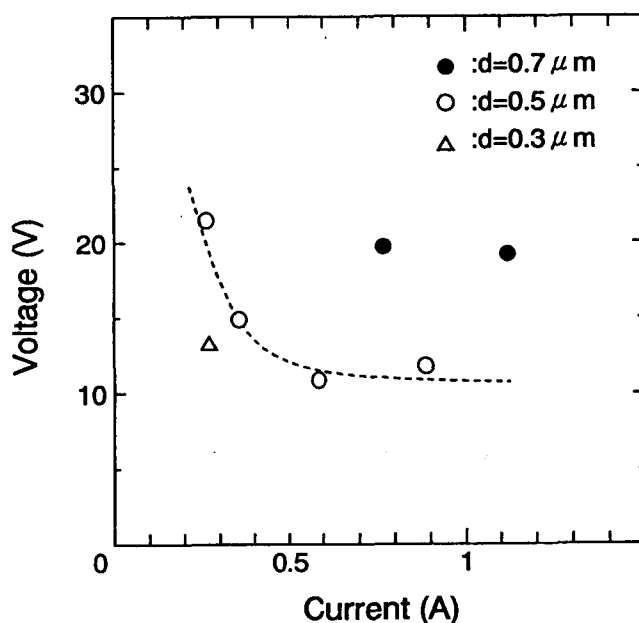


図4-19 放電電流とギャップ電圧の関係

プ間電圧で高い電流が流れることから、この放電は、金属蒸気によるアーク放電²⁶⁾であると考えることができる。すなわち、従来の高電圧の絶縁破壊現象と同様、絶縁破壊を起こした後アーク放電する（真空アーク）現象と同じことが、この微細な電極とギャップ間に、瞬間的にはあるが、起きていることが予想される。

4. 3. 2 制限抵抗の影響

制限抵抗は、ギャップ間を流れる電流を制限する。電流を制限したときのギャップ間への影響を知るため、制限抵抗の絶縁破壊におよぼす影響を調べた。金の試料を用いて、ピーク電圧300Vのパルス電圧を印加し、制限抵抗値を変化させたときに絶縁破壊するギャップ長を測定した。その結果を図4-20に示す。絶縁破壊を起こすギャップ長は、制限抵抗に影響されないことがわかる。

ただし、制限抵抗が10kΩのときは、絶縁破壊は起こるが、図4-21のように放電電流は、持続時間が短くなり、パルス電圧が印加されている途中で流れなくなる。図のように電流波形は、スパイク状の波形を呈しており、制限抵抗値が低いときに比べ再現性が悪い。これは、制限抵抗によって、アーク放電を安定に維持するほどの電流を流すことができないためであると思われる。制限抵抗を100kΩにすると、電流信号は、本実験の方法では測定できなくなるほど小さくなるが、放電の持続がほとんどなくなると予想できる。しかし、この条件においても、試料表面の溶融とわずかであるが発光を検出できる。この場合電極の溶融は、ほとんど見られなくなる。以上のように、パルス電圧が300Vの場合には、絶縁破壊を起こすためのギャップ間距離に対する

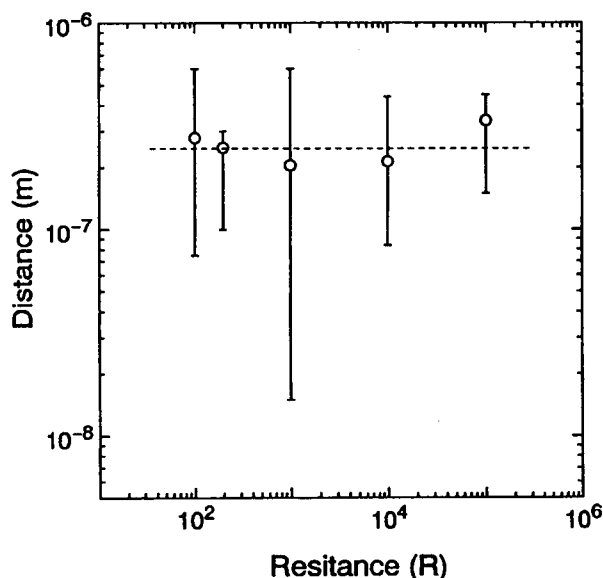
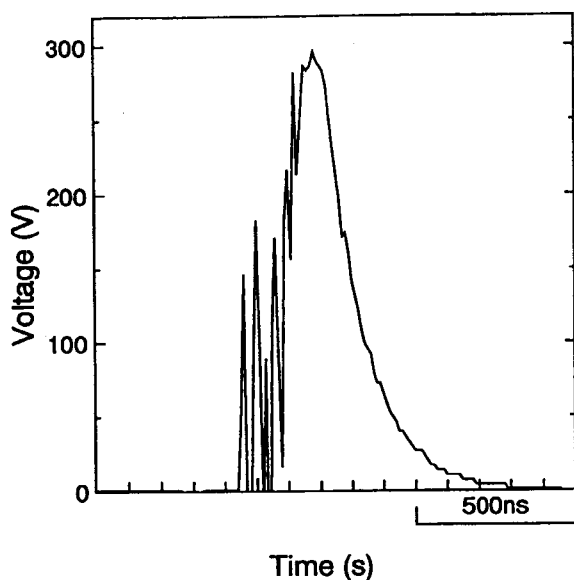
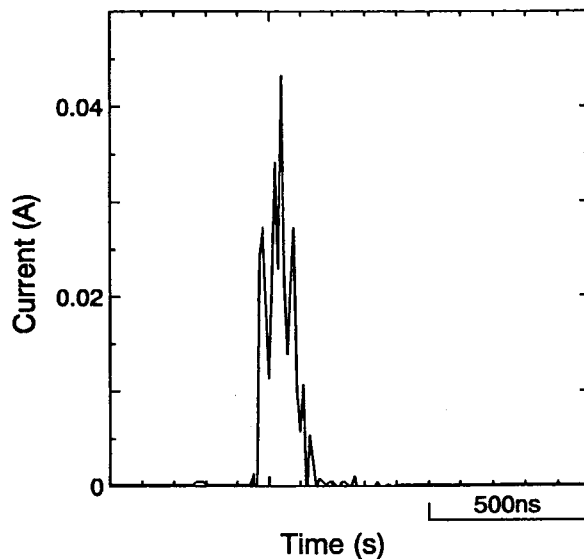


図4-20 制限抵抗と絶縁破壊時のギャップ間距離の関係
(試料: Au, パルス電圧: $V_p=300V$)



(a) 電流波形



(b) 電圧波形

図4-21 制限抵抗10kΩとしたときの電流と電圧波形
(パルス電圧: $V_p=300V$)

制限抵抗の影響は見られなかった。

一方、パルス電圧が100V, 200Vの場合には、制限抵抗が1kΩになると、絶縁破壊を起こすためのギャップ長は、電極と試料が接触するまで近づける必要があった。さらに、パルス電圧100V, 制限抵抗1kΩの場合には、パルス電圧300V, 制限抵抗10kΩのときよりもさらに電流の流れる時間が短くなり、電流は、図4-22のようにわずか30nsで流れた後消失している。電流のピーク値は、パルス電圧300V, 制限抵抗10kΩのときと同程度であるが、持続時間が極端に短くなっている。これは、電圧が低くさ

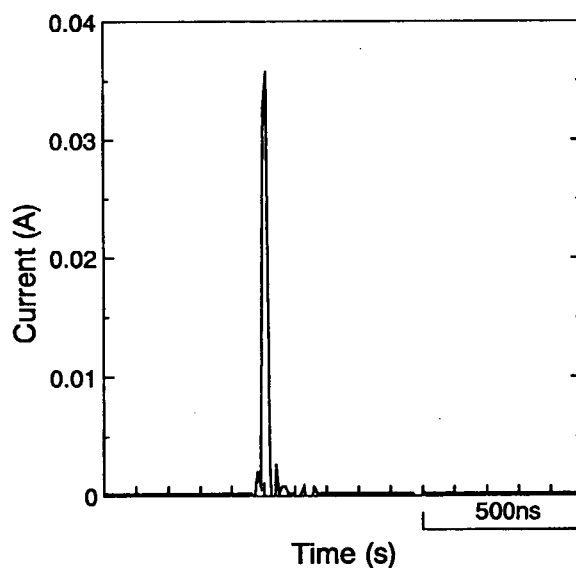


図4-22 パルス電圧100V, 制限抵抗1kΩとしたときの電流波形

らに、ギャップ間距離がひじょうに短いために、放電が持続できないためであると考えられる。これらのことから、パルス電圧が低くなると、制限抵抗は絶縁破壊に影響をおよぼすが、少なくとも電圧が300V以上になると、制限抵抗が100kΩ以下では、絶縁破壊にほとんど影響を与えなくなる。

次に、絶縁破壊をするときの電界強度に対する制限抵抗の影響を調べた。試料として、金とチタンを用いて得られた結果を図4-23に示す。パルス電圧の違いにもかかわらず、金とチタンの両方の試料について、絶縁破

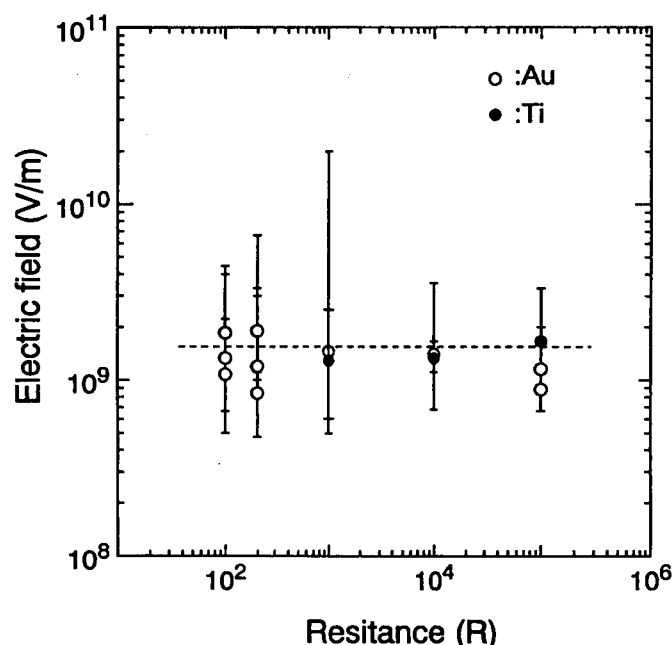


図4-23 電界強度と制限抵抗の関係 (試料: Au, Ti)

壊時の電界強度は、制限抵抗にほとんど影響されず $4 \times 10^9 \text{V/m}$ であることがわかる。また、金とチタンについて、これらの融点が異なるにもかかわらず絶縁破壊するときの電界強度にほとんど差が見られない。Cox²⁷⁾によると、高電圧の絶縁破壊の実験において、チタンの電界強度は、金のわずか1.2倍である。これは本実験においては、誤差の範囲内となるために電界強度に差が見られないのであろう。

4. 3. 3 電界増倍係数と電界強度の関係

電極先端で電界が増倍されるということは、電極からの電界放出電流が

増加することになり、電流は電極先端に集中することから、電極の先端形状が、絶縁破壊に影響をおよぼすことが予想される。直流絶縁破壊の実験において、先端のとがった電極を用いた場合の電界増倍係数 β は、電極先端曲率半径 r と電極と試料間ギャップ長 d とで決定されることがわかった。そこで、絶縁破壊をするときの電極の先端曲率半径とギャップ長との関係を調べた。チタンを試料とし、電極の先端のSEM像から曲率半径を測定した。パルス電圧は600V、制限抵抗は1k Ω として実験を行った。絶縁破壊したときの電極先端の曲率半径とギャップ長との関係は図4-24のようになる。この図から、電極の先端曲率半径が小さくなるほど、電極と試料間が離れた状態でも絶縁破壊を起こし、先端曲率半径が大きくなると、ギャップ長を短くしないと絶縁破壊を起こさなくなることがわかる。

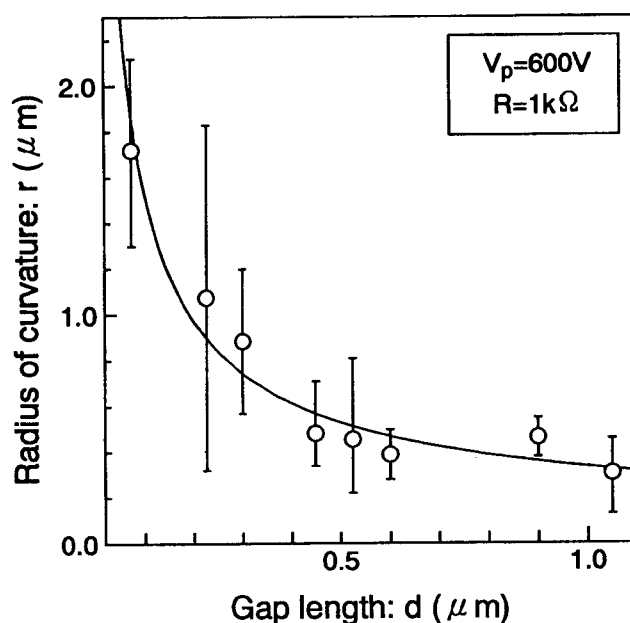


図4-24 絶縁破壊時の電極先端の曲率半径とギャップ長の関係

このようにして求めた r と d を(4-5)式に代入し β を求め、この β と絶縁破壊を起こすときの電界強度とを比較した。その結果を図4-25に示す。電界増倍係数が大きくなると、絶縁破壊時の電界強度が低くなることがわかる。このときの電界強度は、電極と試料間の平均の強度を表している。

すなわち、電極の先端曲率半径が小さくなると、絶縁破壊するために必要な電界強度は低くなることを示している。これは、電極の最先端に作用する電界強度は βE であり、平均的な電界強度よりも高くなることによって、電極先端からの電界放出電流が増加するからである。

2章で述べたように、電界強度の上昇にともなって、電界放出電流は急激に増加する。そこで、絶縁破壊をするときの

ギャップ間の平均電界強度 (E (V/m)) と電極先端の局所の電界強度 (βE (V/m)) とを比較し、図4-26にギャップ長と電界強度の関係を示す。ギャップ長が $0.1 \mu\text{m}$ から $1 \mu\text{m}$ に変化すると、平均電界強度は、 3×10^9 から $3 \times 10^8 \text{V/m}$ まで低下するが、一方、局所電界強度は、 3×10^9 から $1 \times 10^9 \text{V/m}$ までにしか低下しなくなる。このことは、平均電界強度が低くても、電極先端の電界強度が 10^9V/m 以上になると、絶縁破壊が起こることを示している。

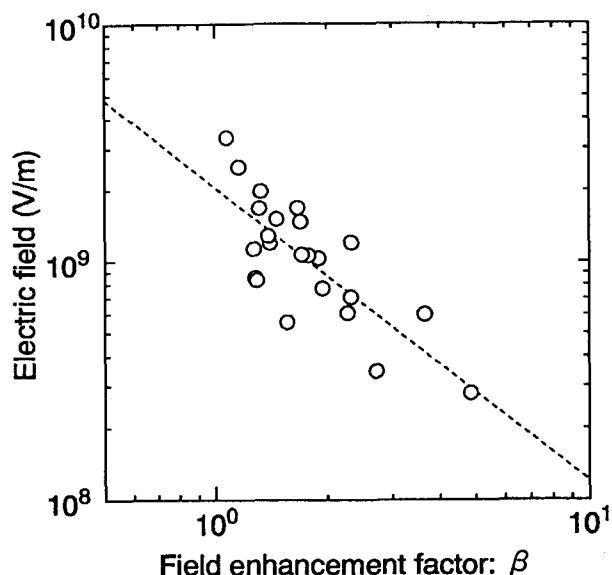


図4-25 β 値と電界強度の関係

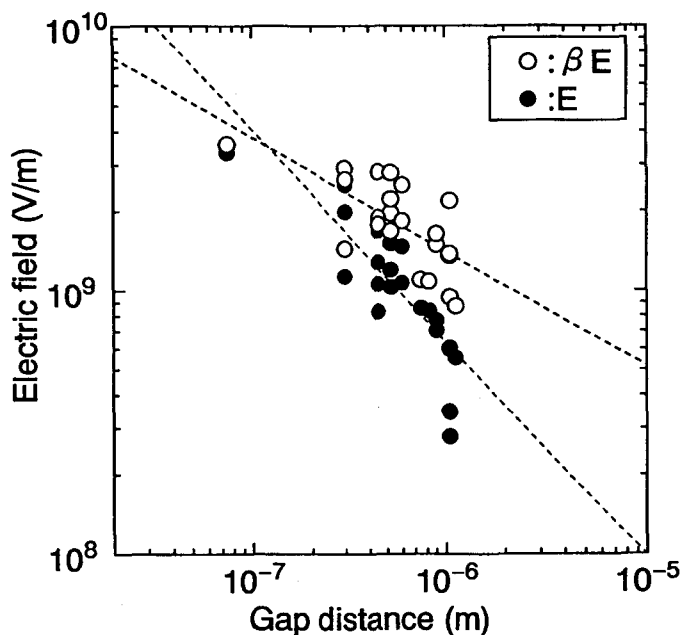


図4-26 平均電界強度 (E) と電極先端局所の電界強度 (βE) の比較

電界放出によって、絶縁破壊が起こる場合、その電流と電圧によって得られるパワー密度がある一定以上の値となるときに試料あるいは電極が蒸発し、絶縁破壊が起こると考えられる。そこで、試料が蒸発する条件として図3-3にしたがって $10^{12}\text{W}/\text{m}^2$ とし、図3-4から電界放出電流によってこのパワー密度を得るための電界強度を求め、先の結果と合わせて図4-27に示す。図中の0Kにおける曲線が、電界放出によって得られる蒸発条件を示しており、この曲線より電界強度が高くなると、蒸発が起こることになる。したがって、実験によって得られた電極先端の電界強度は、この条件を満たしていないことになる。しかし、電極先端は、電流が流れることによって加熱され、高温になるとTF理論にしたがって図4-12に示したように、電流密度が増加する。そこで、図4-12から先と同様に、蒸発条件 $10^{12}\text{W}/\text{m}^2$ のパワーを得るのに必要な電界強度を求めた。図中の3000Kの曲線が、その計算結果である。電極先端が高温になると、放出される電流密度が増加し、電界強度が低くても蒸発条件を満たすようになる。3000Kになると、蒸発曲線は、実験から得られる絶縁破壊時の電界強度の値に近づき、ギャップ長と電界強度との関係も、実験結果から得られる傾向に近づくことがわかる。これらのことから、パルス絶縁破壊の際の電極先端は、3000K以上になっていると推定できる。

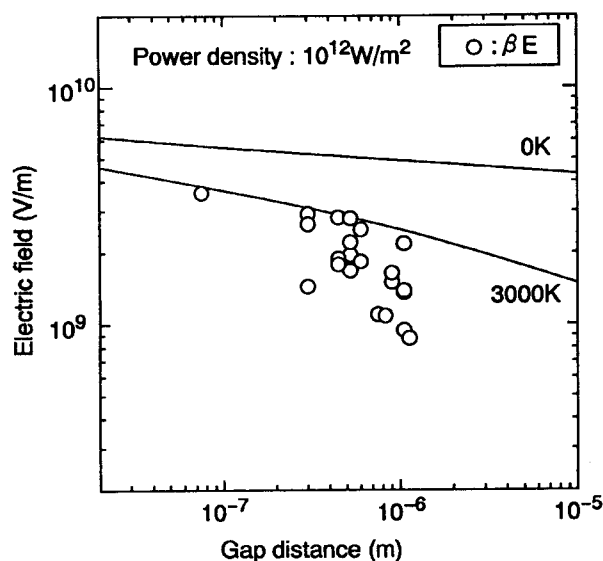


図4-27 局部電界強度とギャップ長の関係

4.4 マイクロ放電時の発光とその諸特性

4.4.1 絶縁破壊時の発光と電流の関係

先に述べたように、直流絶縁破壊の時に光を発生する。図4-28に、この絶縁破壊の瞬間に流れる電流(a)と光(b)の信号をオシロスコープで検出した例を示す。このとき、印加電圧はコンピュータからの信号を受けて

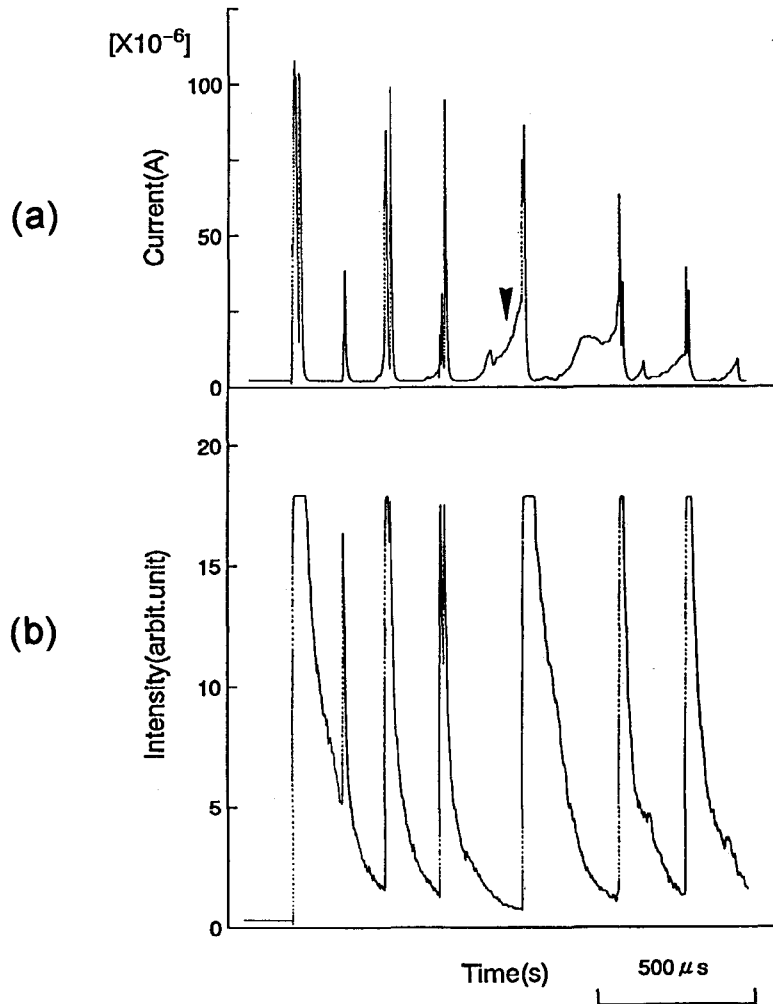


図 4 - 2 8 直流絶縁破壊時の電流波形と光の強度
(a)電流 (b)光

1. 4ms間隔で70mVずつ上昇するので、この波形が得られている間の電圧は、一定である。図のように、光は、瞬間的に高いピークを持つ電流波形に良く対応して、同じように発生し、瞬間的にピークに達していることがわかる。後に5. 1で述べるように、この光の瞬間的なピークは、溶融現象に密接に関係しており、この光と電流が同時にピークを持つ瞬間において放電が起こっているものと考えられる。

ピークに達した後、2つの波形を比べてみると、電流は瞬間的に流れな

くなり、場合によっては、図中の矢印で示したような比較的ゆっくりと上昇する波形が得られるのに対し、光の強度は、ゆっくりと単調に減少する。このように2つの波形の傾向が、まったく異なっていることから、電流および発光が同時にピークを持つ瞬間だけ放電し、その後は、放電とは無関係な現象になっていると考えられる。すなわち、放電直後のまだ熱い状態にある電極あるいは試料溶融部からの輻射光であると予想できる。このように直流絶縁破壊においては、瞬間的な放電が繰り返し起こり、放電の持続を観察することはできなかった。

前節で述べたように、直流絶縁破壊の後、電界放出により電極と試料間の空間を電流が流れる。このとき、電界放出電流の測定と同時に光の測定を試みた。絶縁破壊を起こすときの光の強度は瞬間的にかなり高いピークを持つので、光電子増倍管からの電流を検出するために使用するアンプは、高速アンプが望ましく、増幅率は低いもので十分である。しかし、増幅率が低いアンプでは、絶縁破壊後の光は全く検出されなくなる。そこで、光電子増倍管に高増幅率のI/Vコンバーターを使用することによって、光電子増倍管からの微小電流を増幅した。このI/Vコンバーターの最大増幅率は、 10^8 V/Aである。このコンバーターによって得られた光の信号と、そのときの電界放出電流の電圧依存性を図4-29に示す。電圧の増加とともに電流が

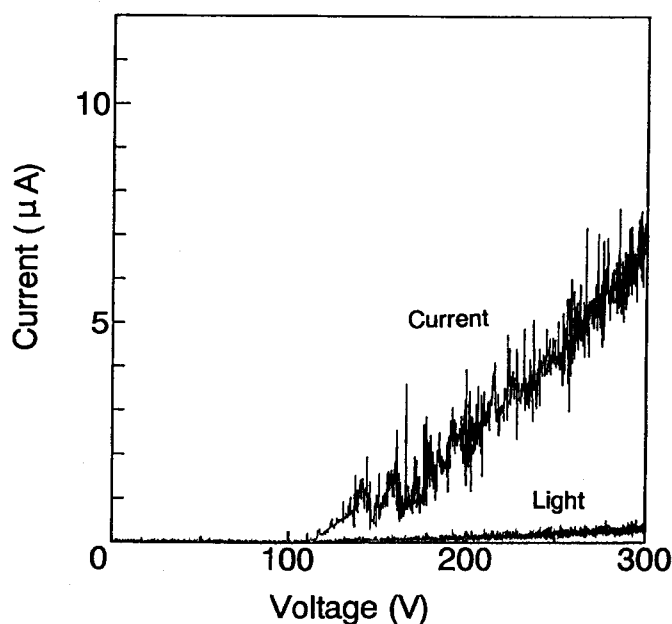


図4-29 絶縁破壊後の電流と光の強度の関係

増加し、同じように光の強度も増加していることがわかる。電流は、電界放出によるものであるので、この光は放電による発光ではない。電極先端が電子電流によってジュール加熱されることともなう輻射光であると考えられる。

4. 4. 2 放電エネルギーと発光強度の関係

パルス絶縁破壊の際に、発光を検出できるが、このとき検出された光の強度のピークをパルス条件によって整理すると図4-30のようになる。パルス電圧の増加とともに光の強度も増加し、制限抵抗の増加とともに光の強

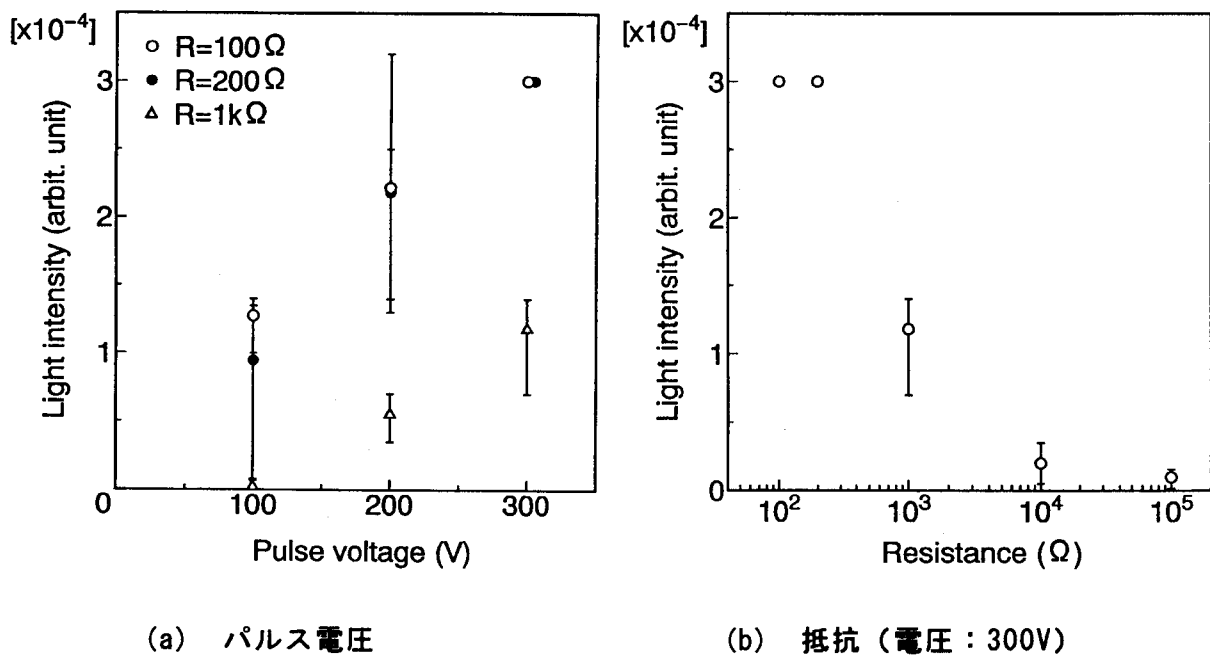


図4-30 パルス条件と光の強度の関係

度が減少する。このことは、光の強度が、絶縁破壊にともなう放電のエネルギーに依存していることを示している。そこで、金の試料を対象として、実験によって得られた図4-18に示したようなパルス放電の電圧および電流波形から、放電中の電圧と電流の積を求め、これをさらに時間積分することによって、電極と試料間に与えられるエネルギーを求めた。このようにして求めたエネルギーと光の強度の関係を図4-31に示す。電極と試料間に与えられたエネルギーと光の強度の間には、比例関係があることがわかる。こ

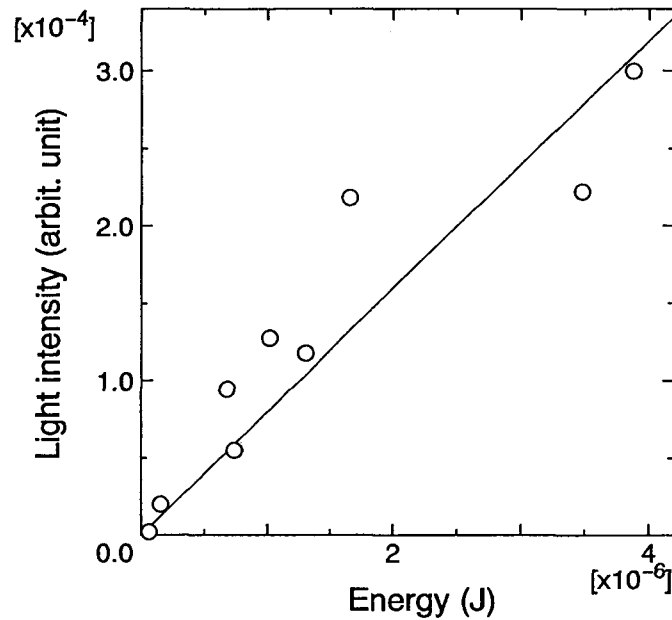


図 4 - 3 1 放電エネルギーと光の強度の関係

れは、電極間に与えたエネルギーのうち一定の割合のエネルギーが発光に寄与していることを示している。

この光の時間変化を調べるために、光電子増倍管の出力端に50Ωの終端抵抗を接続し、この抵抗間の電圧をオシロスコープにて検出することで、高速に光の信号をとらえた。この方法において、発光の信号を検出するためには、光電子増倍管から0.1mA以上の電流を必要とするが、放電の際の発光強度は高いので、十分検出可能である。検出された光の強度の時間変化の一例を、そのとき流れた電流波形と合わせて図4-32に示す。図中の矢印にお

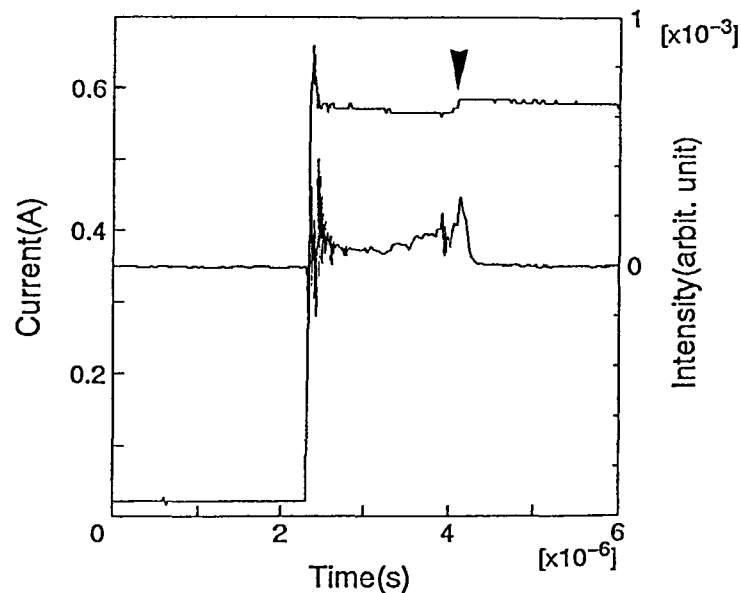


図 4 - 3 2 パルス放電時の発光と電流の関係

いて電流が少し上昇しているが、これは、偶然に何らかの原因で、電極と試料が短絡していることを示している。電極と試料が短絡したことは、この後SEMによって確認した。電極と試料が短絡すると同時に光の信号が検出されなくなっているのがわかる。このように、放電の開始と同時に高い強度の光が発生し、放電の消滅と同時に光が消失する。

4. 4. 3 分光法による発光現象の調査

これまで、本実験における現象が真空中における微小ギャップ間の絶縁破壊現象であり、絶縁破壊後放電にいたることを述べてきた。この放電現象であることを補足するため、パルス絶縁破壊時に発生する光の波長特性を分光法により調べた。図4-33のようにSEMチャンバ内に光ファイバを導入し、光を取り出し、モノクロメータ(Nikon:P-250)によって分光を行った。チタンを試料とし、パルスを1ショット印加するごとに0.5nmから1.0nm程度ずつ検出波長を変化させて、そのとき検出される信号のピークをプロットした。チタンにおける原子線およびイオン線を表4-1に、結果を図4-34に示す。

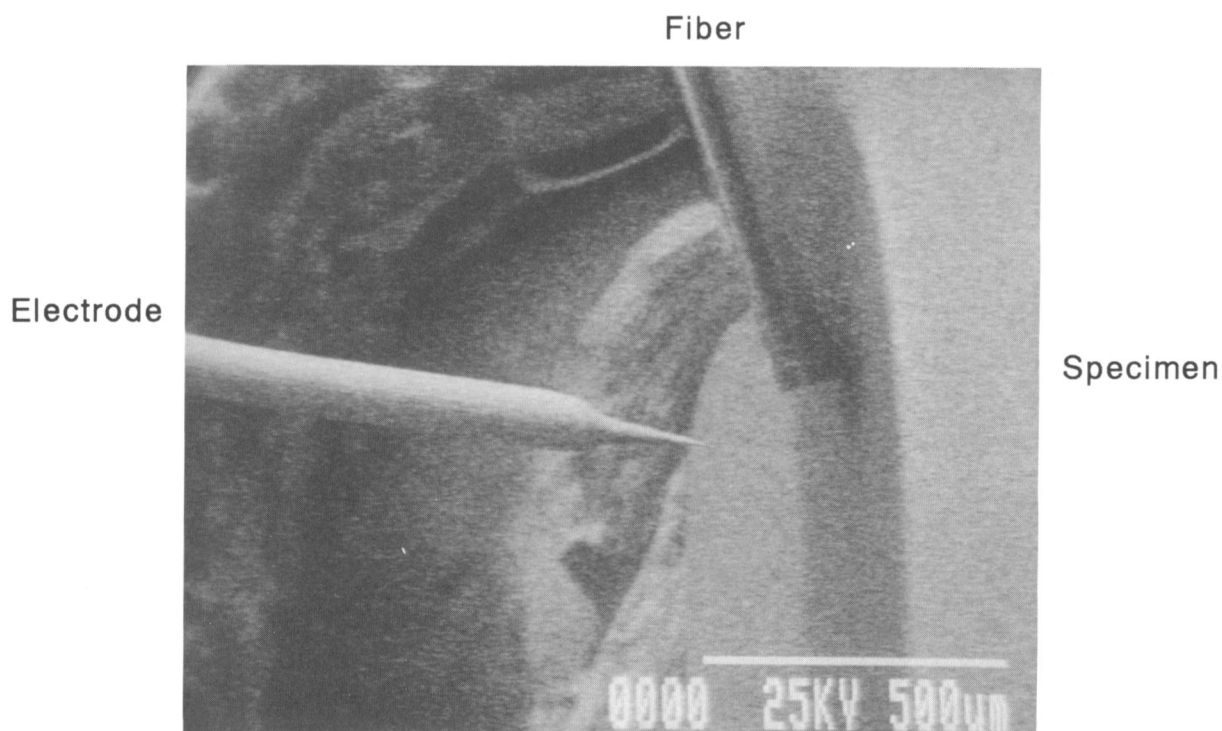


図4-33 分光実験における光ファイバーの配置図

検出される信号は、分光によってかなり小さくなるので、信号の強度にはばらつきがあるが、波長によって検出される信号の有無がはっきりしており、図のようにスペクトルを得ることができた。このスペクトルは、材料であるTi(I)に相当する。本実験で用いた光ファイバーは、紫外光を通さないで、イオン線のある波長領域の光を検出することはできなかったが、原子線が得られたことで、少なくとも励起された原子が含まれていることがわかった。

表 4-1 チタンの原子線 (I) およびイオン線 (II) ²⁸⁾
U:Ti(I), V:Ti(II)

波長 (nm)	強度 (アーク)	感度, 種類
500.7213	200	
499.9510	200	
499.1066	200	
498.1733	300	U1
365.3496	500	U2
364.2675	300	
363.5463	200	
338.3761	70	
337.2800	80	V3
336.1213	100	V2
334.9035	125	V1

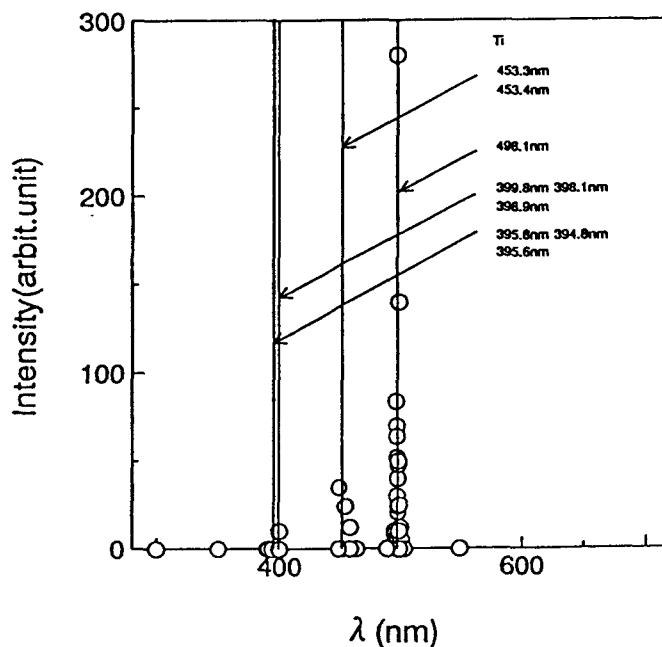


図 4-34 分光結果

4. 5 結言

真空中における、マイクロメートル以下の微小ギャップ間に電圧を印加した場合の現象について、先端曲率半径の小さい細径のタングステンを電極として、SEMによる直接観察をとおして、調査した。以下に得られた結果を要約する。

- 1) 微小ギャップを安定に保つことによって、1000V以下の低い電圧でも真空絶縁破壊を再現性良く起こすことができた。このときに同時に、光が発生し、電極および試料の溶融が生じることがSEMによって観察できた。
- 2) 直流絶縁破壊時の前駆電流波形から電界増倍係数 β を求め、この β が電極の先端曲率半径 r と電極-試料間ギャップ長 d に依存し、 r/d が小さくなるとともに β が大きくなることを実験的に確かめた。
- 3) 絶縁破壊時に検出される光とその分光結果、および絶縁破壊後の電圧と電流の波形から、絶縁破壊後には放電が起こり、その放電は、アーク放電であると推察した。
- 4) 絶縁破壊を起こすときのギャップ長は、電極の先端曲率半径 d に依存し、曲率半径 r が小さくなるほど、ギャップ長が長くなっても絶縁破壊を起こすことがわかった。この d と r とから求めた電界増倍係数 β 値と、絶縁破壊を起こすときの電界強度に依存性があり、 β が大きくなると、絶縁破壊にいたる電界強度は低くなる。
- 5) 電界増倍係数によって、電極先端の局部的電界強度を求めると、パルス絶縁破壊時には、 10^9V/m 以上となり、先端部は高い電界強度になることがわかった。

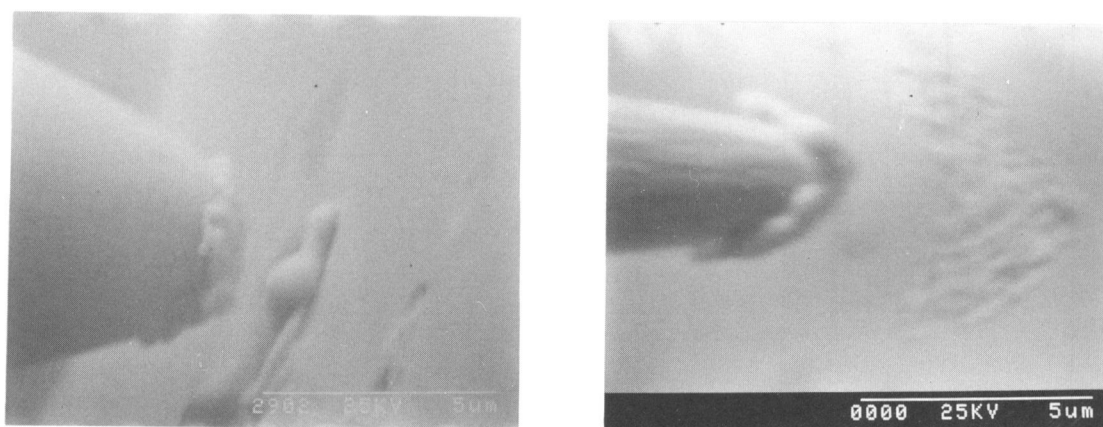
第5章 マイクロ溶融現象とその応用

10^{-3} Paの真空中で、細径の電極を用いて、電極間隔をマイクロメートル以下にしたとき、極間電圧1000V以下においても、真空絶縁破壊を起こすことを見出した。このとき絶縁破壊に続いて放電がおこり、電極および試料表面の極めて小さい領域で溶融が生じる。この極めて狭い領域のマイクロ溶融について検討し将来の応用に備える。

5. 1 直流電圧による溶融現象

5. 1. 1 電極極性による溶融状況の比較

電極を陰極にした場合と陽極にした場合の、絶縁破壊後の電極形状と試料表面の状況を図5-1に示す。試料は金の板を使用した。図の(a)が電極を陰極、(b)が陽極として、どちらも100Vで直流放電させたものである。溶融の



(a) Electrode:cathode.

(b) Electrode:anode.

図5-1 電極極性による試料表面の溶融状況の比較

様相が明らかに異なっていることがわかる。電極を陰極とした場合、陽極となる試料の溶融は一カ所に集中して生じているのに対し、電極を陽極とした場合には、陰極となる試料面に小さい溶融痕が広がっており、さらに、電極が激しく溶融・蒸発していることがわかる。これらのことから、このような微小な放電においても従来の放電と同様に陽極側が選択的に溶融することが

認められる。したがって、試料の局所的な溶融を目的とするとき、試料を陽極、電極を陰極とすると効果的であることがわかる。

5. 1. 2 絶縁破壊時の電流波形と溶融の関係

4. 2において、直流電圧をギャップ間に印加することで、絶縁破壊を起こし、これと同時に光が検出され、このあとSEM観察によって電極と試料の溶融が生じたことを述べた。この溶融と電流および光の関係調べる。4章で述べた実験方法と同様に、制限抵抗を200k Ω として、0Vから300Vまでゆっくりと上昇する電圧を印加した。Type I型の絶縁破壊を起こしたときに、オシロスコープに記録された電流と光の強度信号、および、その時観察された試料表面のSEM像をそれぞれ図5-2(a), (b), (c)に示す。この例では、約290Vになった時に電流が流れ始め、絶縁破壊が起こっているが、このとき、極短時間持続する100 μ A程度の放電が4つ間欠的に生じてピークとして認め

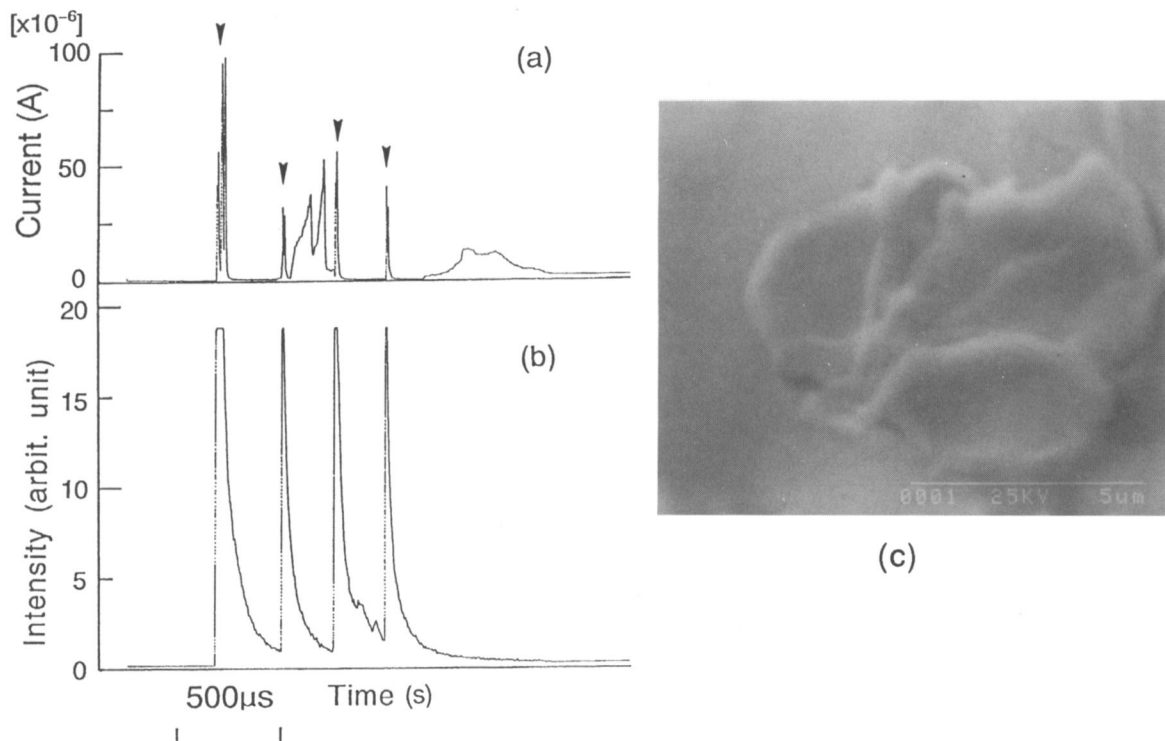


図5-2 絶縁破壊時の電流と光の強度および溶融部の形状
(a)電流波形 (b)光の強度 (c)試料表面の溶融部

られる（図中(a)）．これと同期して4つのピークを持つ光の信号が検出されている（図中(b)）．この絶縁破壊が起こった後の試料表面をSEMで観察すると、(c)のように、4つの溶融部が重なった状況となっていて、それぞれが4つのピークに相当する放電に対応していると思われる．このことから、一つの放電によってすでに試料表面に溶融部が形成されていることがわかる．

直流絶縁破壊にともなう溶融は、このように短時間に放電と消滅を繰り返すことによって形成される．この放電と消滅の繰り返しの周期、回数再現性はほとんど無く、そのときどきで変化する．これは、電極先端の形状が、放電を起こす度に溶融・蒸発して変形し、絶縁破壊する際の電流の流れるサイト（陰極点）が変わるためであると考えられる．再現性が乏しいために、このときの溶融部は図5-3のように、それぞれの溶融部の外形は不規則な円形を呈している．また溶融部には微小な凹凸が存在している．

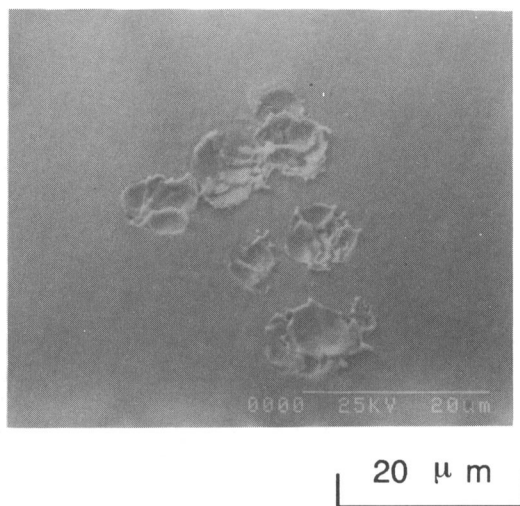


図5-3 直流電圧による試料表面の溶融部のSEM像

このようにしてできた数個のまとまった溶融部の外形の直径と電圧の関係を図5-4に示す．電圧の増加とともに溶融部の直径も増加していることがわかる．このように、直流絶縁破壊にともなうマイクロ放電においては、溶融部の大きさは、与える電圧に依存するものの放電の不安定さから溶融部の形状が不定であり、きれいな溶融部を形成することができない．

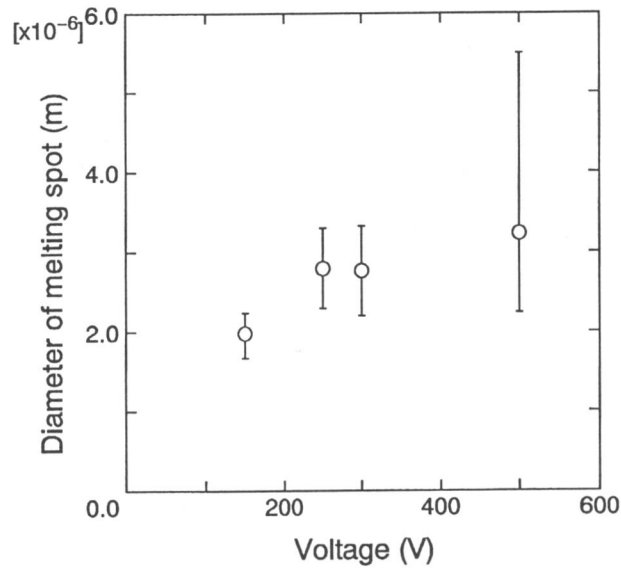


図 5-4 直流電圧と溶融部の直径との関係

5. 2 パルス電圧による溶融現象

5. 2. 1 パルスエネルギーと溶融部の直径との関係

上述のように、直流電圧による溶融部は再現性が乏しいので、溶融を再現性良く得るために、パルス電圧を用いた。単パルスの印加によって絶縁破壊を発生させ、その時の電圧、電流、ギャップ間隔を測定し、また、絶縁破壊前後の電極先端および試料表面をSEMで観察した。金板を試料として、絶縁破壊を起こし、放電電流が流れたときに試料にできる溶融部のSEM像を図5-5に示す。パルス幅を300nsで一定にし、それぞれパルス電圧を100V

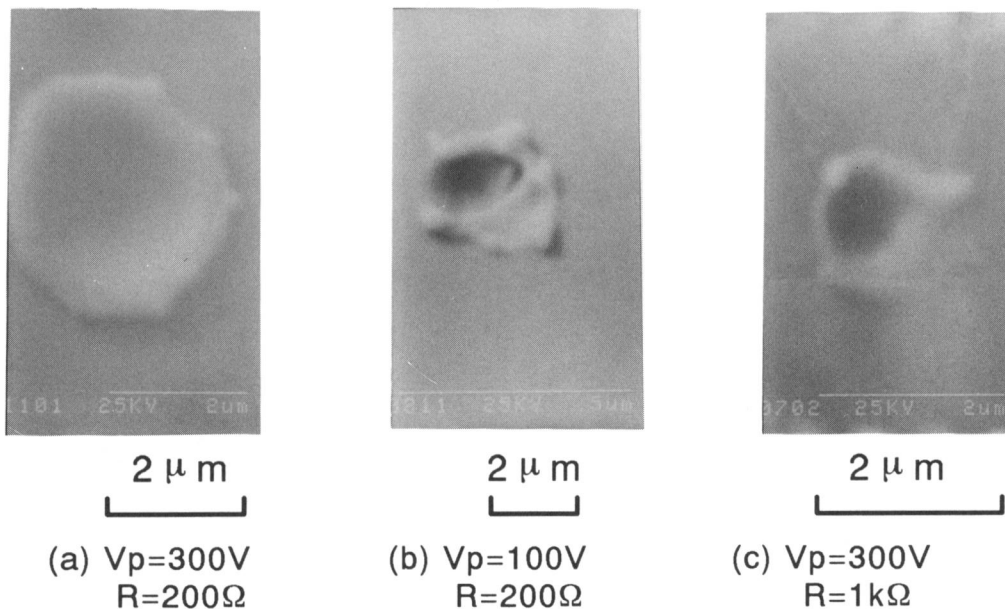


図 5-5 パルス電圧による試料表面の溶融部のSEM像

から300V, 制限抵抗値を200Ωから1kΩに変化させた. いずれも, マイクロサイズの直径を持つクレータが形成されているのがわかる. (a)は, パルス電圧300V, 制限抵抗200Ωにおける溶融部である. (b)は, パルス電圧を100Vとして溶融させたものであるが, 電圧が高くなると溶融部の直径が大きくなっている. (c)は, 制限抵抗Rを1kΩとして, 電流を抑えたときの溶融部である. 電流を抑えることによっても直径が小さくなっていることがわかる.

それぞれの条件における溶融部の直径を測定し, 図5-6(a)にパルス電圧と溶融部径, (b)に制限抵抗と溶融部径の関係を示す. パルス電圧の増加とともに, また, 制限抵抗の減少とともに溶融部径が大きくなることがわか

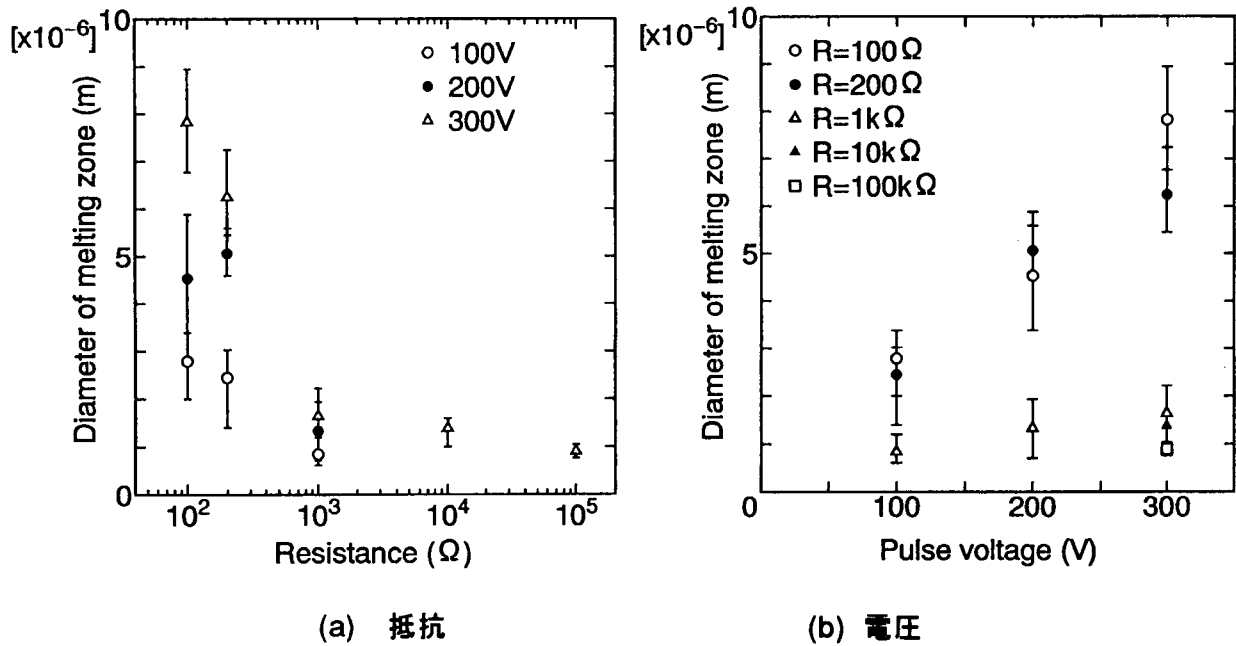


図5-6 パルス条件と溶融部の直径の関係

る. これらのことから, 投入されたエネルギーと溶融部の直径には, 相関関係があることが予想できる. そこで, 電極-試料間に与えられた電圧とその間を流れる電流との積をパワーとし, さらにそのパワーを時間積分したものを投入エネルギーとして求め, その投入エネルギーと溶融部の直径との関係を図5-7に示す. 溶融部直径は, エネルギーに依存し, エネルギーの増加とともに大きくなっていることがわかる. このことから, 投入エネルギーによって, すなわち電流と電圧を適当に選ぶことによって, 溶融部の直径を制御することができることがわかった.

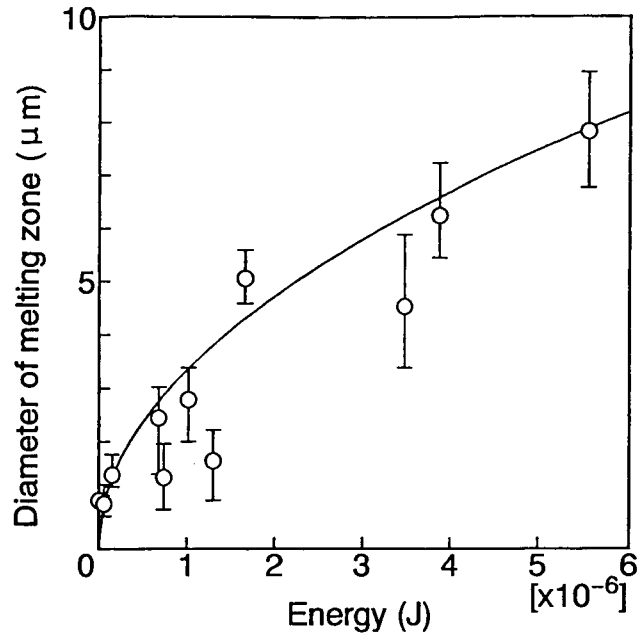


図5-7 パルスエネルギーと溶融部の直径との関係

今、この溶融が熱伝導で広がると仮定した場合、上記のエネルギーが表面に投入されたときの溶融する大きさを計算した。図5-8のような半径 a の円盤熱源が、瞬間的に半無限平板上に投入された場合についての熱伝導を考える。このとき平板内の位置 (r, z) における温度は、次式のように表わされる²⁹⁾。

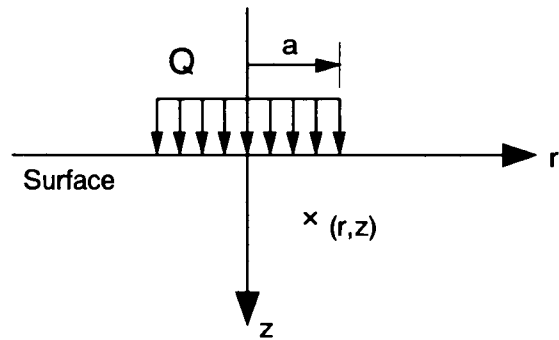


図5-8 瞬間発生円盤熱源の模式図

$$T = \frac{qa}{2\sqrt{\pi\kappa t}} \exp\left(\frac{-z^2}{4\kappa t}\right) \int_0^{\infty} \exp(-\kappa t \lambda^2) J_0(\lambda r) J_1(\lambda a) d\lambda \quad \dots (5-1)$$

$$q = \frac{Q}{c\rho \cdot \pi a^2}$$

ただし、 J_0, J_1 : 0次および1次の第1種ベッセル関数,
 κ : 熱拡散係数(m²/s), c : 比熱(J/kgK),

ρ : 密度(kg/m^3), Q : 投入エネルギー(J),
 r : 面方向位置(m), z : 板厚方向位置(m),
 t : 経過時間(s)

である.

この温度が, 試料の融点に達したときに, 試料が溶融するとした場合, このときの r が熱伝導によって溶融する半径となる. この式を数値積分することによって溶融半径を求めた. 金を対象として, 表 3-1 の材料物性値を用いて, 投入エネルギーを $1 \times 10^{-6} \text{J}$ と一定としたときの熱源半径 a (m) と溶融半径 r (m) の関係, および熱源半径と溶け込み深さ z (m) との関係それぞれ図 5-9 (a) と (b) に示す. 熱源半径が $1 \mu\text{m}$ より小さくなると溶融半径と溶け込み深さのいずれも, $2.8 \mu\text{m}$ でほぼ一定となり, 瞬間発生点熱源による計

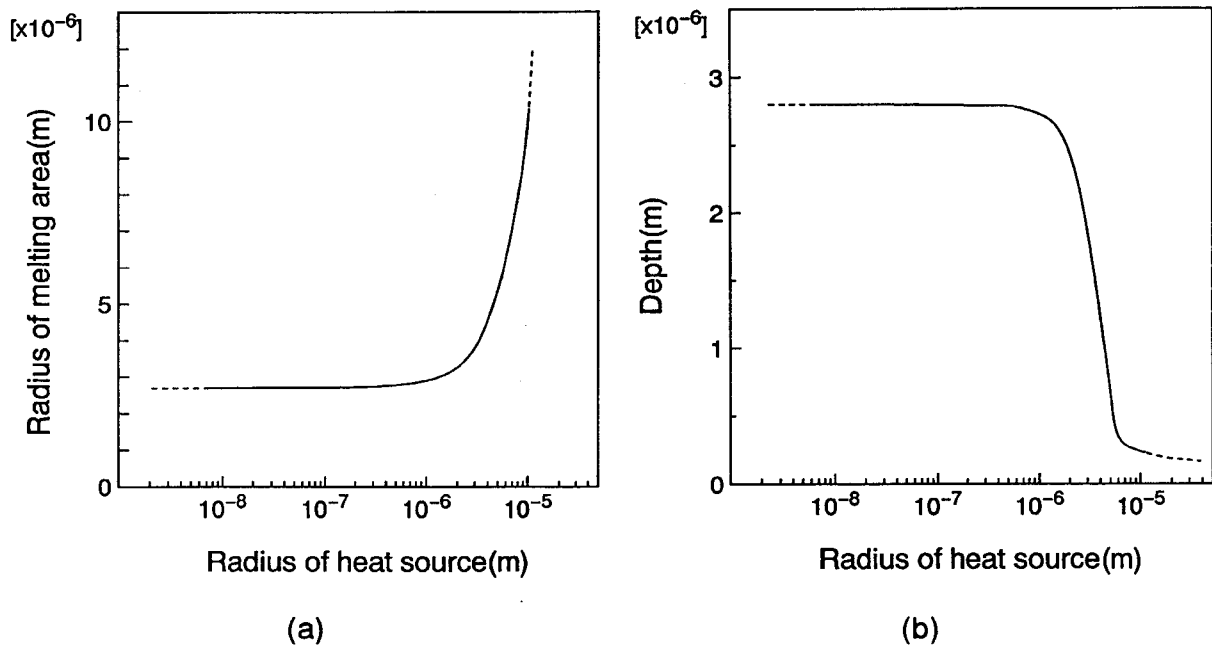


図 5-9 熱伝導における熱源半径と溶融半径および溶け込み深さの関係
 (a) 溶融半径 (b) 溶け込み深さ, ($Q = 1 \mu\text{J}$)

算値に近づく. 熱源半径が $1 \mu\text{m}$ 以上になると, 溶融半径は広がってゆき, それと同時に溶け込み深さは浅くなってゆく. 熱源半径が $7 \mu\text{m}$ 以上になると, 溶融半径は, 熱源半径とほとんど同じになり, 熱源直下のみ溶融することになり, 溶け込み深さは, $1 \mu\text{m}$ より浅くなる.

これを視覚的に表すと, 図 5-10 のようになる. この図は, 投入エネ

ルギーを $1\mu\text{J}$ として、熱源半径 $0.1\mu\text{m}$ と $4\mu\text{m}$ について計算した溶融部の断面形状である。同じ入熱であれば、熱源半径が大きくなると、溶融部は、浅く広くなることがわかる。熱源の半径が $1\mu\text{m}$ 以下の時には、溶融半径および溶け込み深さは、熱源半径に無関係となる。逆に熱源半径が $1\mu\text{m}$ より大きくなると、熱源半径の大きさが溶融半径と溶け込み深さに大きく影響してくる。

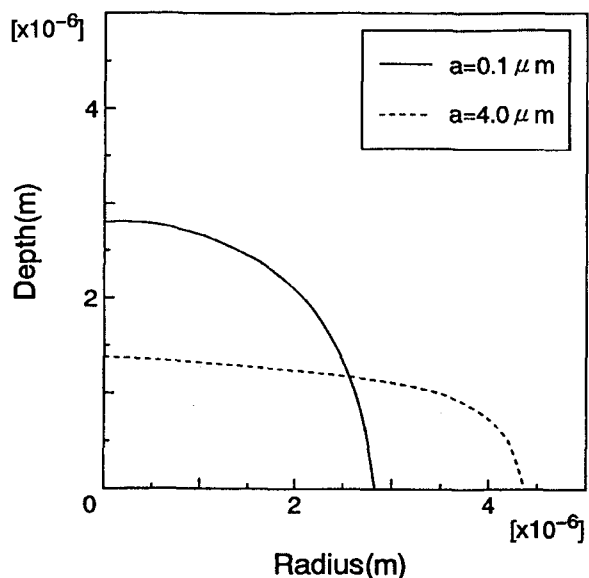


図5-10 熱伝導計算による溶け込み形状 (材料: Au, $Q=1\mu\text{J}$, a: 熱源半径)

従って、実験データと計算値を比較する場合、熱源の大きさを知る必要がある。本実験において、熱源の大きさを知ることは困難である。しかし、絶縁破壊の際に電極が同時に溶融・蒸発し、その蒸発する部分の直径は、約 $2\mu\text{m}$ であることから、熱源半径を $1\mu\text{m}$ とした。このようにして求めた溶融直径 ($2 \times r_m$) とエネルギーの関係を、実験データと合わせて図5-11に

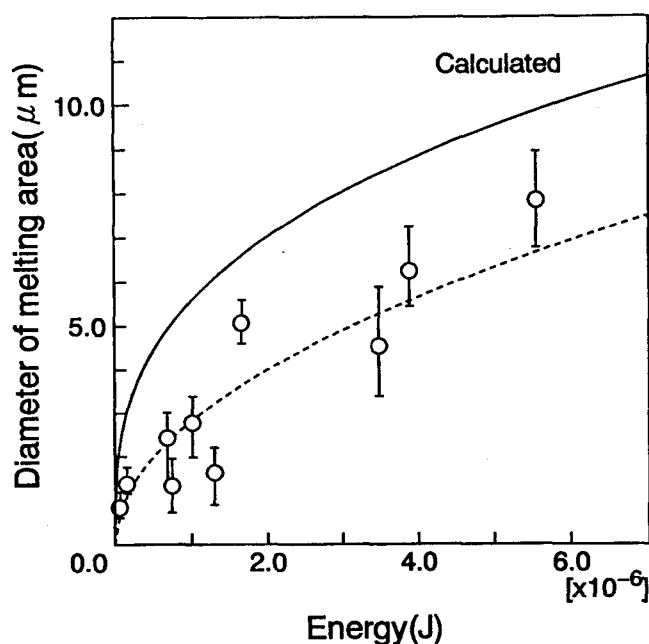


図5-11 熱伝導計算結果と実験結果の比較 (材料: Au)

示す。この図から、計算値と実験値に対し、同じ径を溶融させるために必要なエネルギーを比較すると、計算結果は実験データから得られるエネルギーの約20%となる。

溶融部の大きさについて、熱伝導的に大きく異なる(表3-1参照)AuとTiとを比較した。Au, Tiの板を用いて、同じ条件(パルス電圧1000V, 制限抵抗100k Ω)で実験を行った結果を図5-12に示す。横軸は、熱拡散

係数である。Taについても同じ条件で実験を行ったが、Taの場合は絶縁破壊を起こしても、スポット状の溶融部は形成されなかった。AuとTiを比較した場合、融点が高く熱拡散係数の小さいTiの溶融径がわずかに小さくなっている。以上のように、マイクロ放電によって、熱伝導型の溶融が起こることがわかった。ただし、試料材料として、半導体であるSiを用いると、その溶融部は、熱伝導計算に従わずに、Auや、Tiの溶融部の直径に比べ小さくなり、また、これらに比べ深い穴があくことを確認している。これは、放電電流が広がらずに集中し、そのために熱源の半径が小さくなり、熱が中心付近に集中しているためであると予想できる。

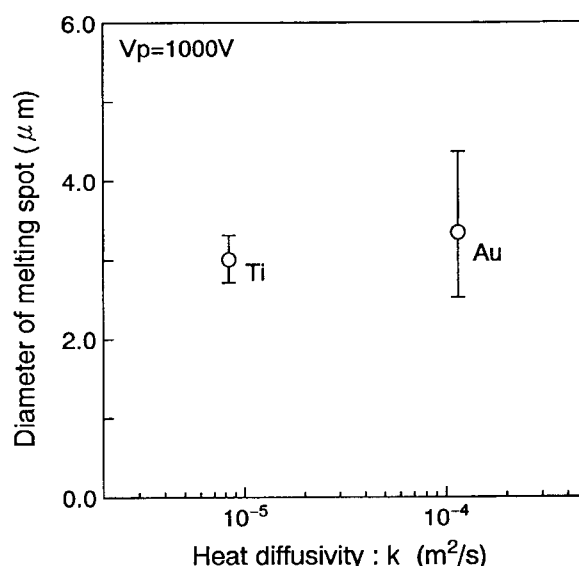
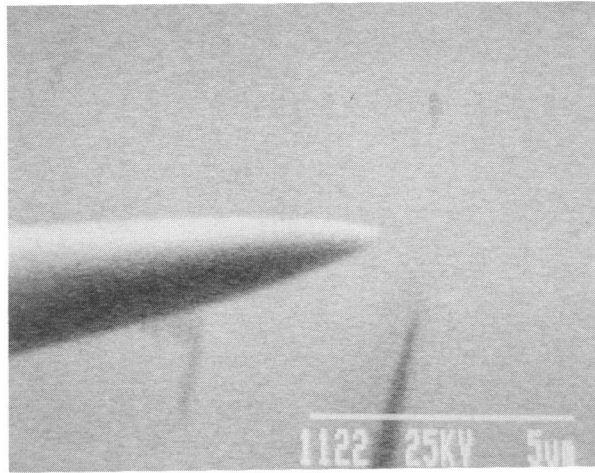


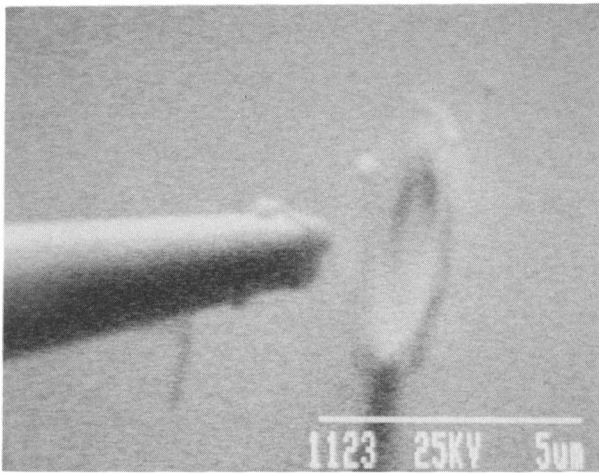
図5-12 AuおよびTiの溶融部直径の比較(パルス電圧: 1000V, 制限抵抗: 100k Ω)

5. 2. 2 電極の消耗と試料溶融部の関係

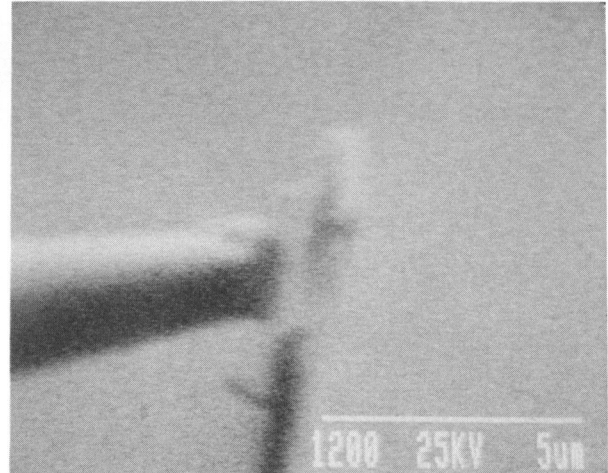
放電する際には、電極を陰極にした場合でも、電極と試料のどちらも溶融し、蒸発する。図5-13は1パルスごとの電極の消耗する様子を示している。電極先端部が、パルスを印加するごとに蒸発し、変形していることがわかる。このような電極の消耗は、電極の先端の形状(太さ)によって異なり、試料の溶融部の大きさも変化することがSEMで観察できる。実際に消耗した部分の体積を求めることは困難であるので、この消耗する量の変化を



(a)



(b)



(c)

図5-13 パルス印加ごとの電極の変化
(a)電圧印加前 (b)1パルス印加後 (c)さらに1パルス印加後

調べるために、パルスを印加する前後のSEM写真を比較し、図5-14の模式図の斜線部分のような、パルス印加後に消滅した部分の面積を求め、電極先端の形状による電極の消耗と試料溶融部の関係を求める。

電極先端の形状は、放電電流の分布に影響をおよぼすことが予想できる。4章において、絶縁破壊におよぼす電極先端形状の影響を調べるために、先端曲率半径によって先端形状を表した。先端曲率半径は、絶縁破壊に影響をおよぼすが、放電による試料溶融部の半径には影響をおよぼさない。電極の先端曲率半径は、多くの場合、 $1\mu\text{m}$ 以下であるのに対し、絶縁破壊の後、放電が起こると電極先端の数 μm の領域が溶融・蒸発する。このことから、放電中は、先端曲率半径よりも広い領域から電流が流れていることが予想でき

る。そこで、電極先端の頂角をSEM像から測定し、その角度によって電極先端の形状を表した。図5-14に示すように、電極先端から $2\mu\text{m}$ のところまで電極側面に対して接線を引き、それらが交わる場所の角度を電極先端頂角とした。この角度が小さいほど電極先端は細く、逆に大きくなると電極の先端は太いということになる。

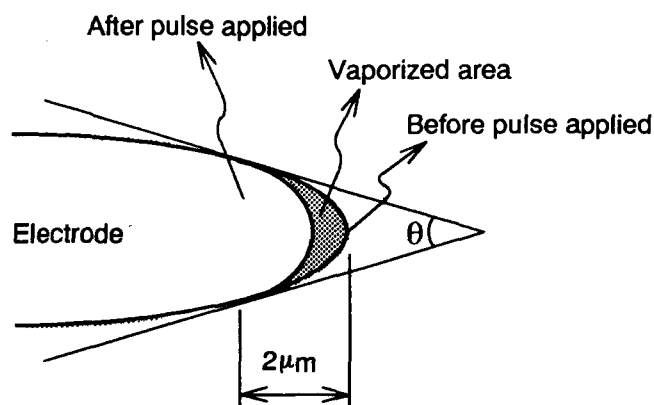


図5-14 電極先端消耗の様式図

以上のようにして求めた電極の先端頂角と電極の蒸発量について検討した。Ti試料を用い、パルス電圧600V、制限抵抗 $1\text{k}\Omega$ 、パルス幅 $1\mu\text{s}$ の条件で、絶縁破壊させたときの、電極先端の蒸発量と試料溶融部の直径との関係を図5-15に示す。横軸は、電極先端の蒸発した部分の面積であり、図中

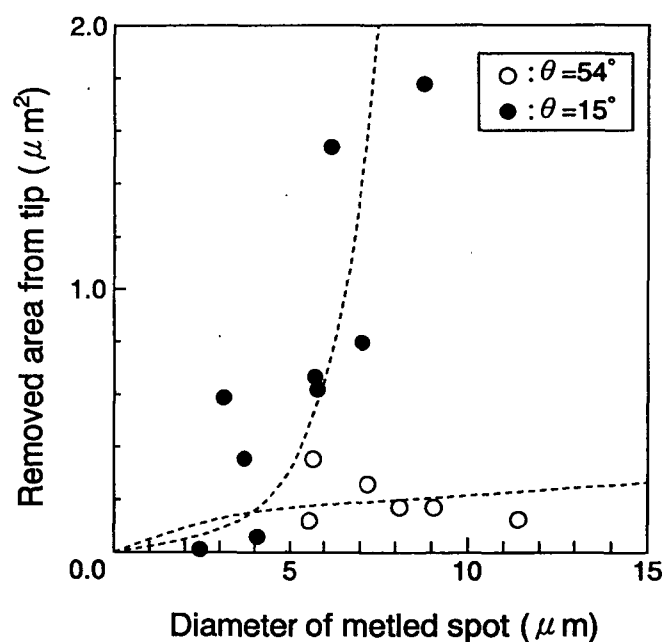


図5-15 電極先端の溶融部の面積と試料表面の溶融部直径の関係

の白丸は、先端頂角 54° の太い電極、黒丸は 15° の細い電極を使用したときの実験結果である。電極の先端の角度の違いで、電極蒸発量と試料溶融部直径の関係が大きく異なっていることがわかる。すなわち、先端角度の大きい電極を使用した場合、電極の蒸発はほとんどなく、蒸発量と試料溶融部直径との相関はあまり見られない。一方、先端角度の小さい電極を使用した場合、電極の蒸発量の増加とともに試料溶融部の直径も増加していることがわかる。また、その蒸発量は、先端の太い電極に比べて、面積にして最大20倍程度多くなっている。これは、電極先端が細くなるほど、電流が電極先端に集中し、ジュール加熱によって、蒸発しやすくなるためであると考えられる。このことから、電極の形状によって、電極の消耗の度合いが異なり、電極の先端が細いほど消耗が激しく、パルスごとの蒸発量が変化することがわかる。

このとき試料溶融部の直径と電極先端角度の関係は図5-16のようになり、電極先端の頂角が大きくなると試料の溶融部直径はわずかに大きくなる。これは、頂角が大きくなると電流の流れる領域が増加し、熱源半径が増加することになり、先に図5-9の熱伝導計算で示したように、溶融部が大きくなるためであると予想できる。以上のことから、電極の消耗を抑えるためには、試料の溶融部直径はわずかに大きくなるが、先端の比較的太い電極を使用すればよいことになる。

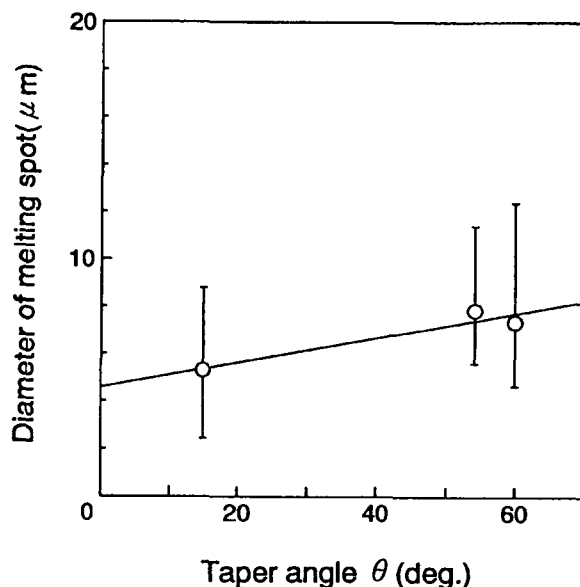


図5-16 電極先端角 θ と試料溶融部の直径の関係

5.3 マイクロ溶融現象の応用

5.3.1 連続パルスによるマイクロビードの形成

パルスを周期的に繰り返し、放電を繰り返し発生させ、電極を試料に添って移動させると、試料表面に連続した溶融部を形成することができると考え

た。4章で述べたように、絶縁破壊を起こし電極と試料間に放電電流を流すためには、 10^9V/m 前後の電界強度が必要である。従って、1000V以下のパルス電圧によって放電を起こすためには、電極と試料間隔を $1\mu\text{m}$ 以下にする必要がある。また、放電を繰り返し発生させて熔融部を安定に形成させるためには、ギャップ長をナノメートルの精度で、一定に保つ必要がある。

そこで、本研究では、図5-17のように、パルス電圧にベース電圧を加え、ベース電圧が印加されているときに電極と試料間に流れる電流（電界放出電流）を一定に保つように圧電素子を制御して、ギャップを一定に保つ

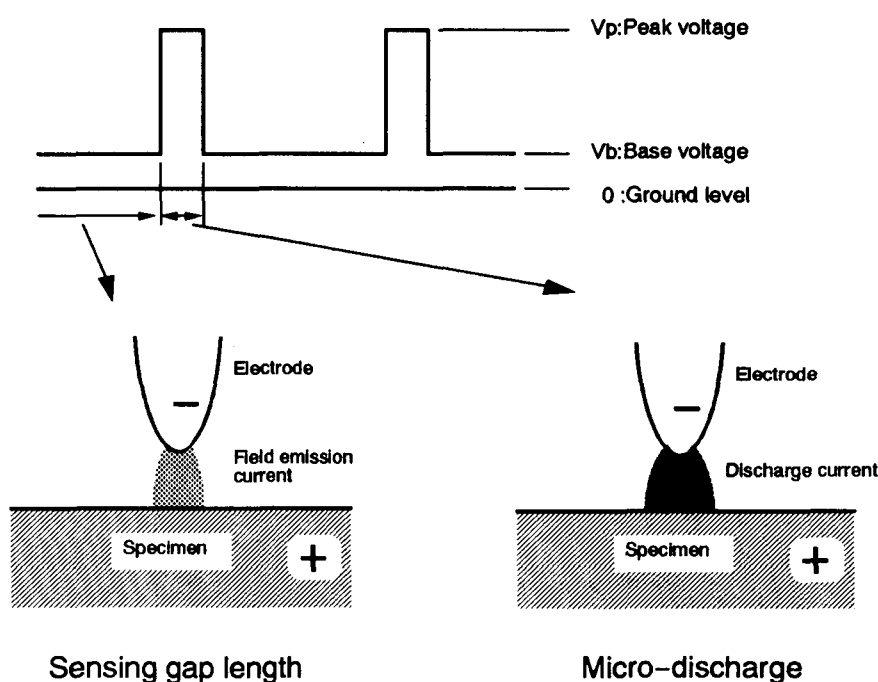


図5-17 連続的に熔融させるためのパルス電圧波形

ようにした。電界放出電流は、電極間電圧一定の下でギャップの長さに敏感に依存して変わる。従って、電界放出電流を一定に保てば、ギャップを制御することになり、ギャップを一定に保つことができる。

電極と試料の周辺の電気回路を図5-18に示す。電流検出の部分が単パルス実験と少し異なっているが、これはベース電圧印加時に流れる電界放出電流を検出するためである。電界放出電流は、数 μA のレベルであるので、単パルス実験に使用している 50Ω の終端抵抗では、電流を検出できない。そ

ここでI/Vコンバータを用いて電流の検出を行ったが、このコンバータは耐圧50Vであるので、図のようにすることで、コンバータに作用する電圧を低くなるようにして使用した。このようにして検出した電界放出電流を制御回路への入力信号とした。制御回路としては、STMの制御回路を用い、PI制御の定数を電界放出特性に合うように選定した。なお、本研究で使用したパルス電源装置の制約により、印加できるベース電圧の最大値は100Vである。

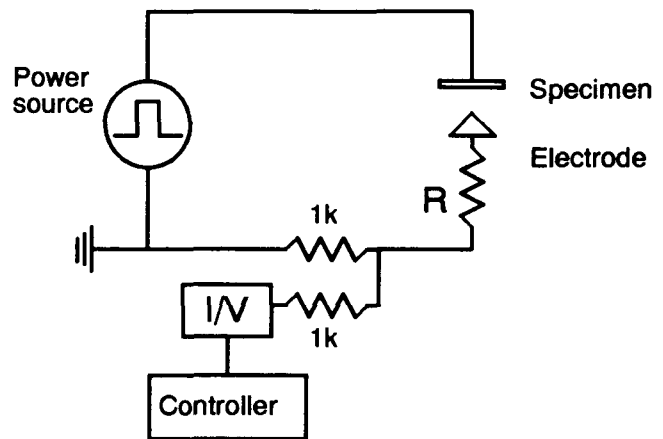


図5-18 繰り返し溶融のための電気回路図

図5-19は、制御を行っているときの電流信号と、そのときの制御圧電素子の移動量を示している。(a)が制御が安定している状態、(b)はパルス

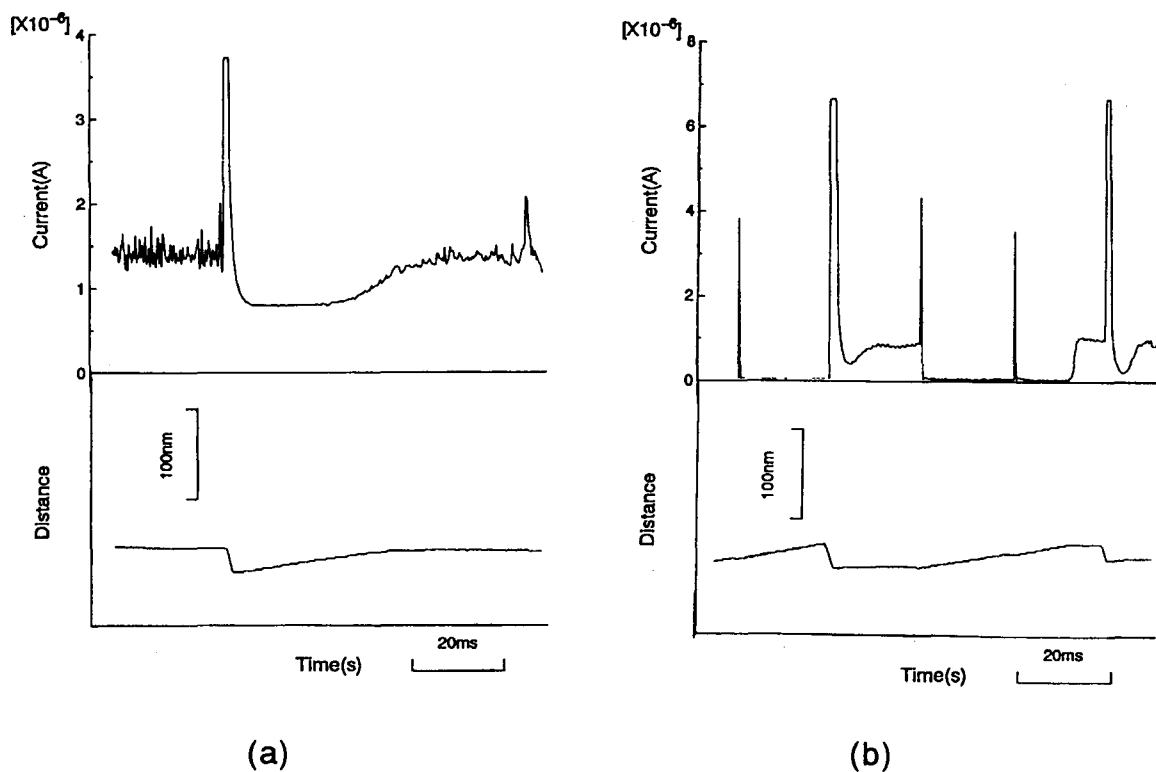


図5-19 制御中の電流波形と圧電素子の変化
(a)安定な制御状態 (b)不安定な制御状態

の繰り返し周波数が高いために、制御が不安定になった時の波形である。(a)のように制御が安定している場合、電界放出電流を制御している状態でパルスが印加され、放電電流が流れると、放電電流は設定電流値をはるかに越えているので、電極は試料から約40nm離れ、その後、電界放出電流を一定に制御するために元の位置に戻ってゆく。これを繰り返すことで、試料表面の凹凸に対して安定な距離を保ちながら熔融させることが可能である。

この方法によって、チタンの試料を用い、パルス幅300ns、制限抵抗100k Ω とし、ベース電圧100V、設定電流値0.1 μ Aで制御を行い、繰り返し周波数50Hzで連続的に熔融させたときの熔融部を図5-20に示す。これは、金属顕微鏡に微分干渉装置を付けて、凹凸を強調したものである。図のように、一定の幅を持つビード状の熔融部を形成することができる。熔融部にはリップ

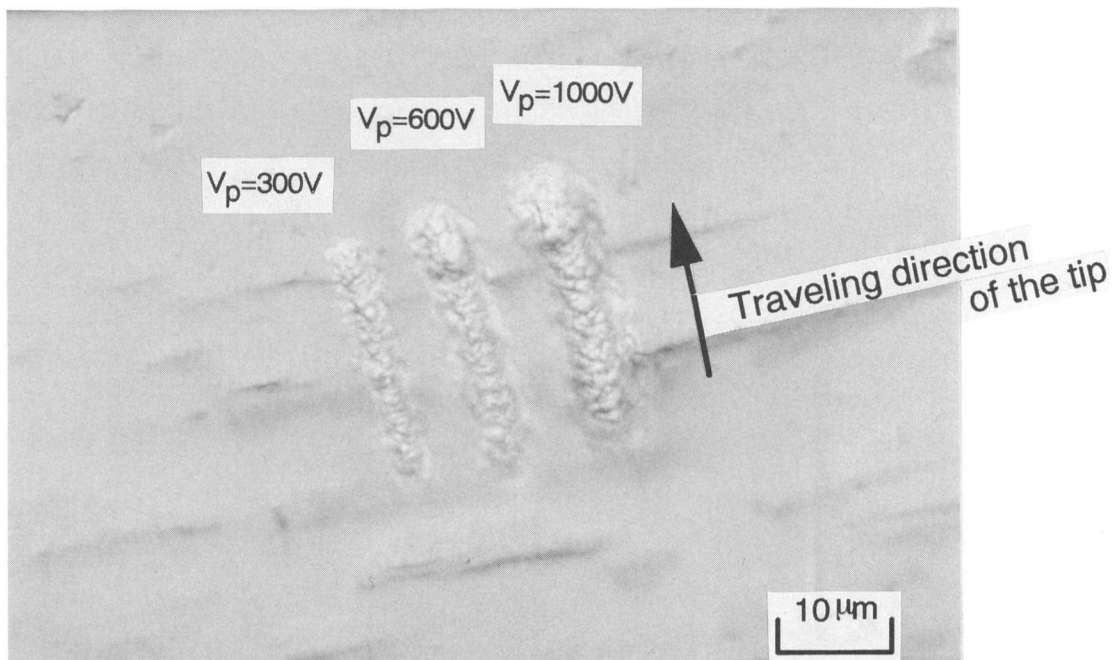


図5-20 繰り返し熔融を行ったときのTi試料表面の光学顕微鏡像

ル状の凹凸が観察できるが、SEMで詳しく観察すると、図5-21のように微小な熔融部が重なっていることがわかる。このことは、放電が終了してから次のパルスが印加されるまでの間に、熔融部が凝固していることを示している。この熔融幅を、パルス条件によって整理すると、図5-22のよ

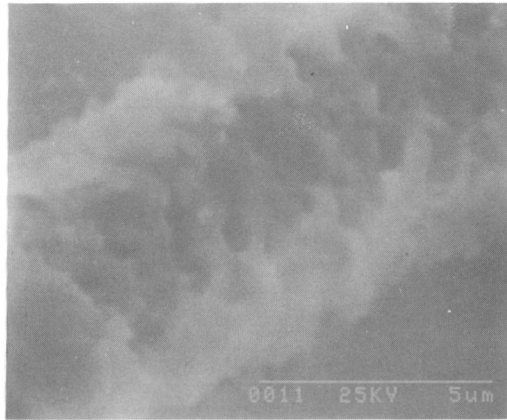


図5-21 Ti表面溶融部のSEM像

うになる。この図から、溶融幅は、繰り返し周波数、パルス電圧、電極移動速度などのパルス条件に依存することがわかる。

以上のように、電界放出電流制御による繰り返しパルスを用いて、試料にマイクロメートルの幅の溶融ビードを形成することが可能であることがわかった。

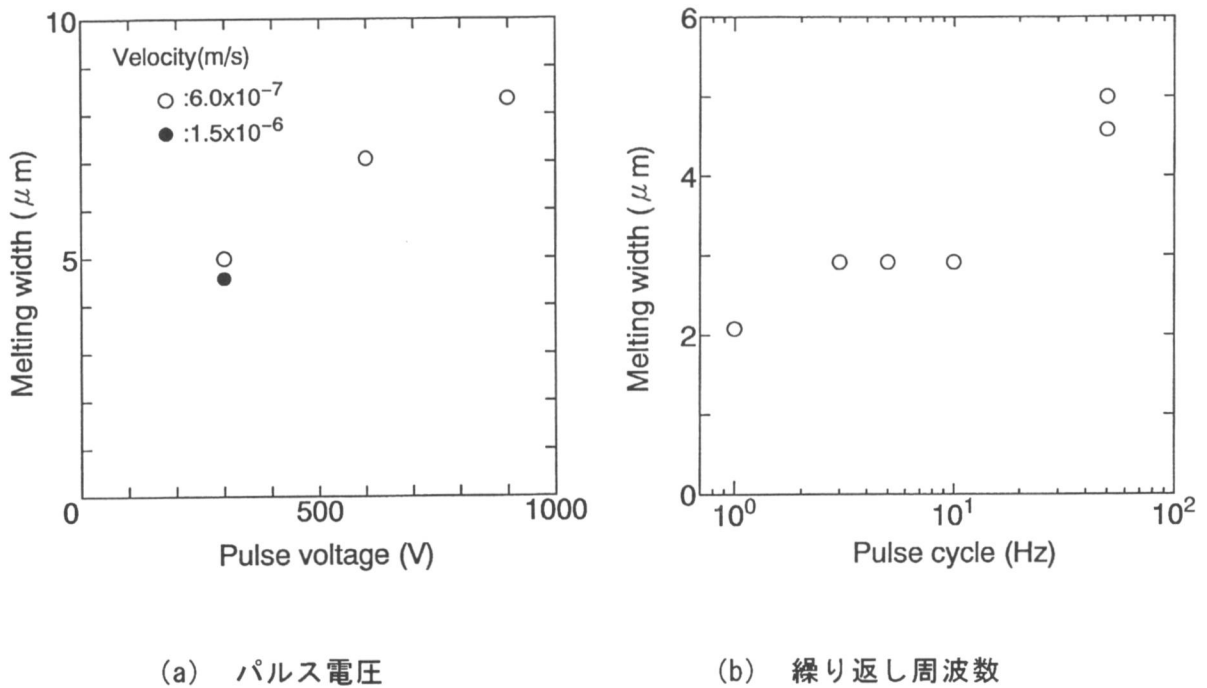


図5-22 パルス条件と溶融幅の関係

5. 3. 2 サブミクロンサイズの加工

前項の方法では、数 μm の溶融幅を持つ加工を行うことができたが、この幅をさらに小さくすることを試みた。溶融幅を小さくするためには、入熱を少なくすることが有効な方法である。入熱を抑えるためには、電流と電圧を低くする必要がある。4章で述べたように電極あるいは試料表面の酸化膜の影響で、電圧を100V以下にすると、電極と試料を酸化膜をはさんで接触させなければ、絶縁破壊して電流が流れるに至らず、溶融が起こらない。そこで、接触させながら連続的に溶融を行う方法を考えた。電源として、図5-23のような電流と電圧の静特性を持つ定電流電源を用いて、接触した際の最大電流値を制限し

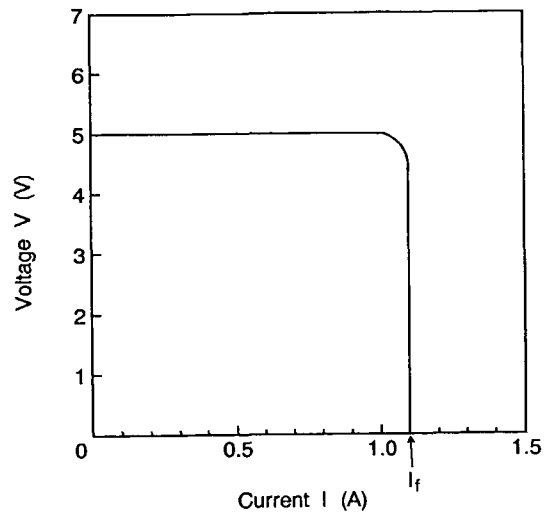


図5-23 定電流電源の静特性

た。この例では、無負荷電圧5V、定電流値1.1Aである。無負荷電圧は最大50V、定電流値は最小数 μA の範囲に設定することができる。

この電源の定電流の設定値を $40\mu\text{A}$ にして、電極と試料を接触させた時の電極間を流れる電流と電極間電圧の波形を図5-24に示す。この図では、電流のピーク値はオシロスコープのレンジを越えているので正確ではないが、接触瞬間には、無負荷電圧が10~30Vのとき、ピーク電流値は0.8~2.3mAになることを確認している。電源の静特性は定電流特性であるが、動特性における電流波形は、接触する瞬間に数mAの電流が約 $20\mu\text{s}$ 間流れ、その後設定電流値である $40\mu\text{A}$ で安定する。電極と試料間の電圧は、電流がピークに達している間に、無負荷電圧からほとんど0Vまで下降し安定する。このとき、試料表面は微細に溶融する。この接触瞬間の電流波形は、電極と試料を明らかに接触させて得られる波形とは異なっていた。また、 $40\mu\text{A}$ の電流を流した状態で放置しても、電極と試料の溶融部は広がらなかった。これらのことから、接触する直前のわずかなギャップ間で、数mAの電流が流れ、この間に当該試料表面が溶融していることになる。

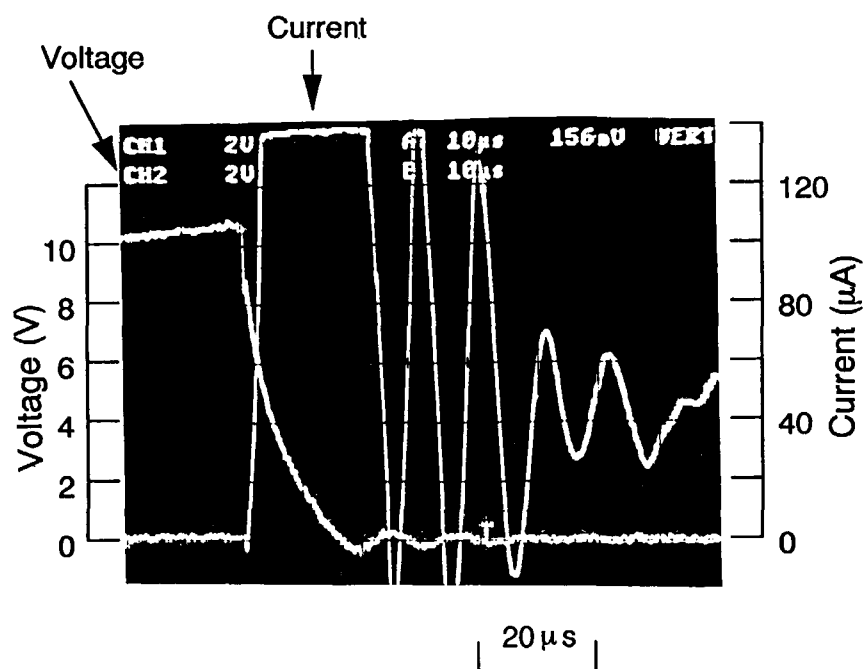


図 5 - 2 4 電源の動特性

この試料表面の溶融部の直径と電源の無負荷電圧との関係を図 5 - 2 5 に示す. $2\mu\text{m}$ 以下の直径を持つ溶融部が形成され, 無負荷電圧の増加とともに溶融部の直径が増加していることがわかる.

電極を試料に単に接触させるだけでは, 溶融はくり返し起こらない. これは, 完全に接触してしまうと, 定電流電源の働きによって, 電流が $40\mu\text{A}$, 電圧 0V になってしまうからである. そこで, 溶融を連続的, 定常的に起こすために, 電流を信号とするフィードバック制御を行い, ギャップの制御を行った. このときの電流と電極の動きとの関係を模式的に図 5 - 2 6 に示す. 電極と試料の接触を検出し, 制

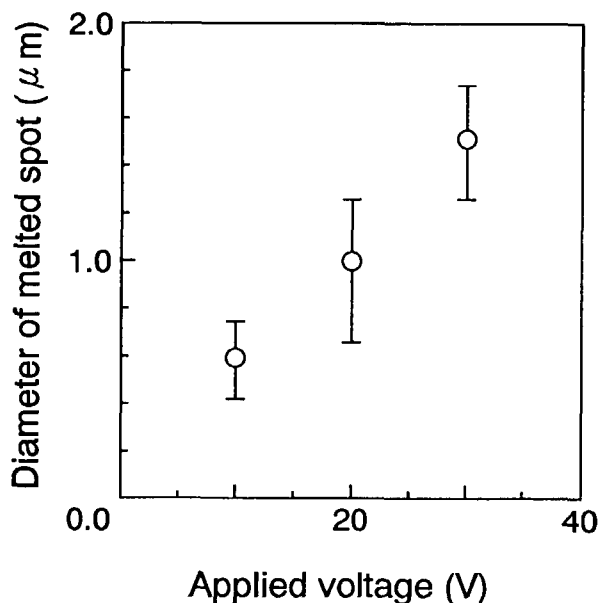


図 5 - 2 5 接触時の印加電圧と溶融部の直径の関係

御電流値を定電流電源の設定値より小さくすることで、接触すると電極が試料から離れ、離れるとギャップ間を電流が流れなくなるので、電極は試料に近づいてゆき、接触する瞬間に電流が流れ試料が溶融する。これが繰り返し起こるので、連続して試料を溶融させることができる。

この状態で、電極を移動させると、図5-27のように移動量に応じた溶融部が形成され、これと同時に、電極の先端に付着物が形成され、これが電極の移動とともに成長することが観察できる。この電極先端の成長物は、EMAX(堀場製作所製)によって金であることを確認した。したがって、接触したときに金が蒸発し、その蒸発した金が電極に付着し、それが繰り返し起

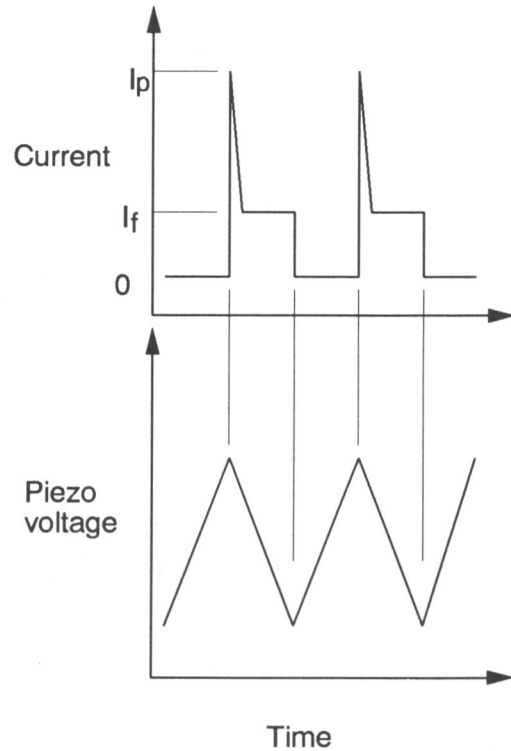


図5-26 繰り返し溶融の時の電流と圧電素子の動きの模式図

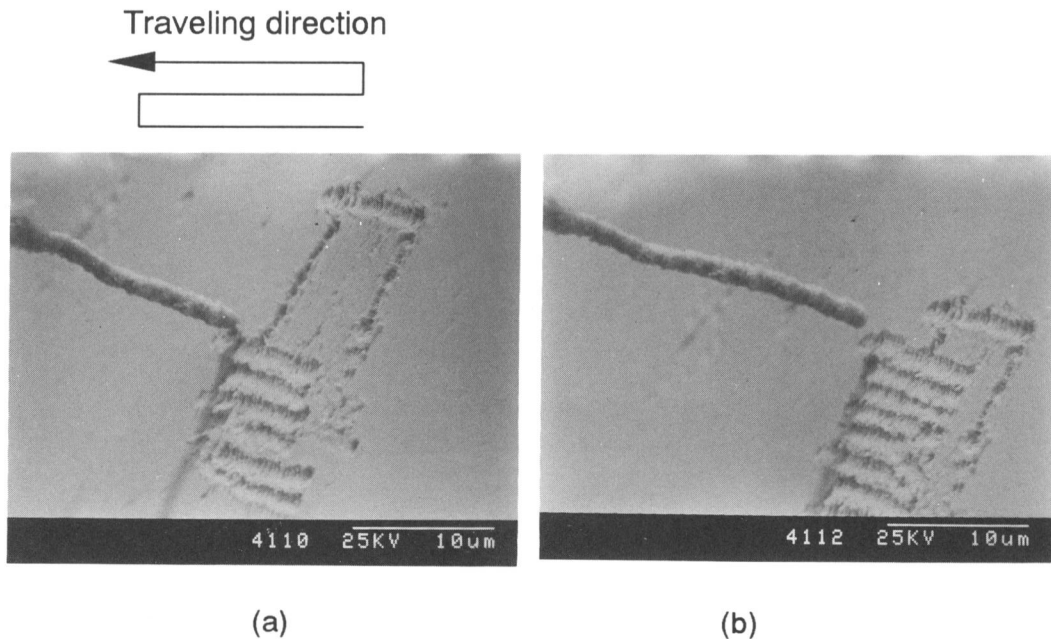


図5-27 電極先端の成長と試料表面の溶融部のSEM像
(b)は(a)の75 μm移動後

このことで、成長したものであると考えることができる。

試料表面の溶融部の幅と電極先端の成長物は、図5-28のように電源の無負荷電圧に依存する。溶融部には、小さな溶融部が存在することがわか

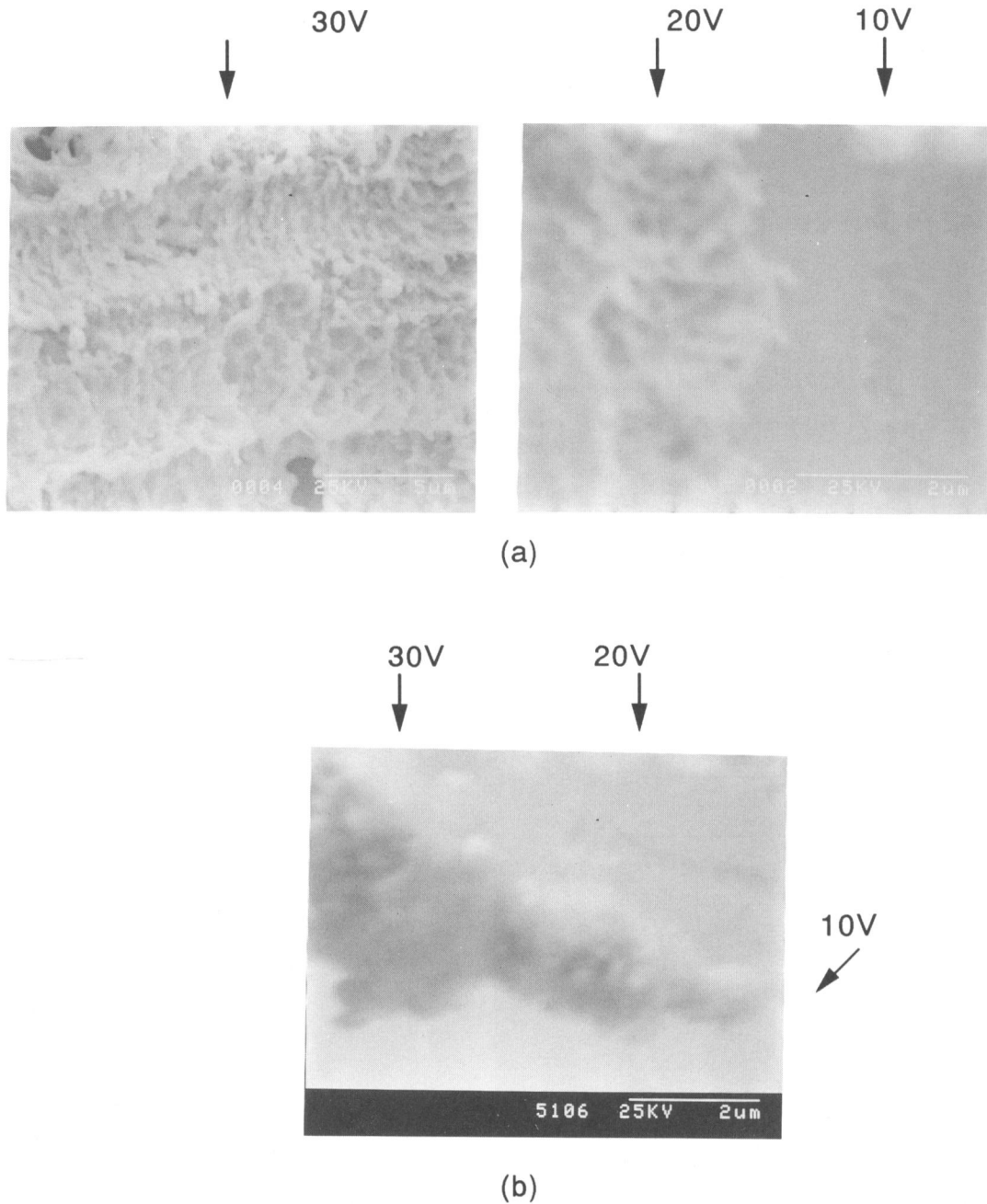


図5-28 電極先端の成長物および試料表面の溶融部の印加電圧による変化

(a) 試料溶融部 (b) 電極先端の成長物

る。この溶融部をFE-SEMによって詳しく観察したものを図5-29に示す。このときの電圧は10Vである。この場合にも、溶融領域に微小なクレーター状の溶融部が鱗状に重なって存在している。これらは、前項で述べたパルス電圧数百Vでの連続パルスによる溶融部に良く似ており、それぞれのスケールを小さくしたような形状となっている。また、このクレーターの直径は、図5-27の単接触によって得られる溶融スポット径とほとんど同じ大

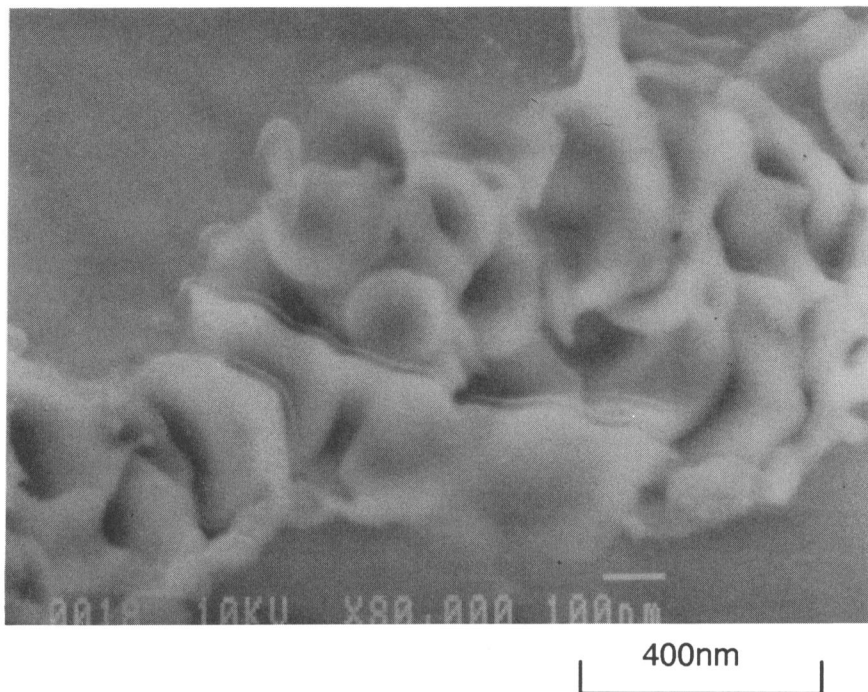


図5-29 試料表面の溶融部のFE-SEM像（印加電圧：10V）

きさである。

無負荷電圧とこの溶融幅および電極先端の蒸着物の直径の関係を図5-30に示す。電圧の増加とともに、溶融部の幅および電極先端の蒸着物の径が増加することがわかる。

この方法によって、金表面をマイクロメートルからサブミクロンの幅で溶融させることができる。図5-31は、電極を一定位置に設定した状態で溶融を行い、穴あけ加工を行ったときの電極と試料のSEM写真である。このように電圧10Vにおいて、直径0.7 μ mの穴をあけることができる。このと

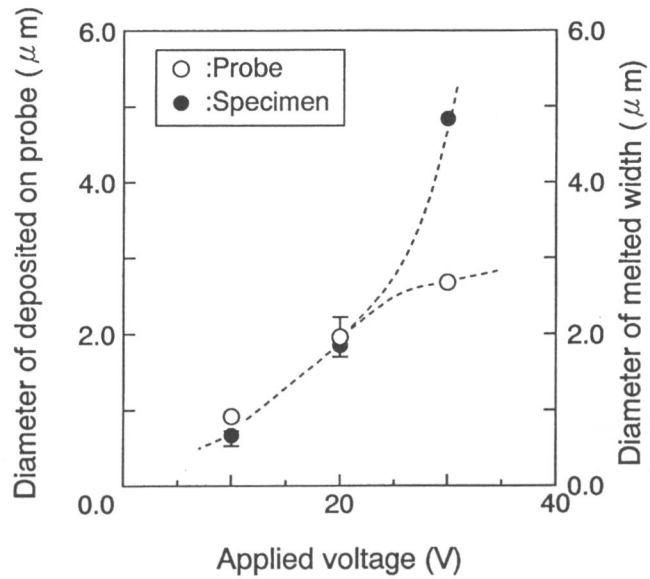


図5-30 印加電圧と電極先端成長物の直径および試料表面溶融部の直径の関係

き電極先端に成長した金の長さから、この穴の深さは、 $2\mu\text{m}$ になることがわかった。この穴の深さは、時間をかけることによって、さらに深くすることができる。

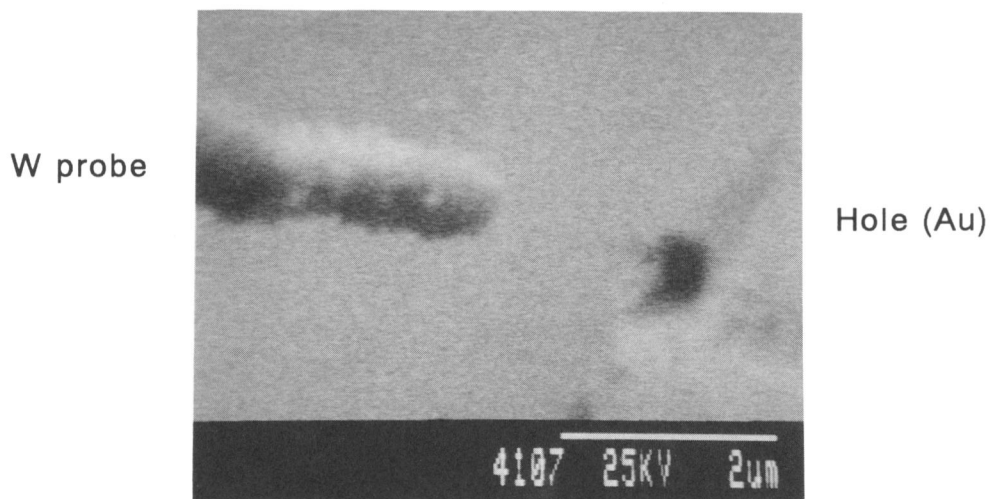


図5-31 穴開け加工に適用した例 ($V_p=10\text{V}$)

5. 4 結言

微小ギャップにおける真空絶縁破壊現象にともなって発生するマイクロ放電を利用して，Ti，AuおよびSi表面をマイクロメートルのサイズで溶融させ，その制御性を調べた．以下に得られた結果を要約する．

- 1) 電解研磨によって作成した先端曲率半径が数十nm程度の針状タンゲステン電極を用いて，マイクロ放電によって，金およびチタンの試料にマイクロメートルサイズの溶融部を形成させることができる．このとき電極を陰極にすることで，試料を選択的に溶融させることができる．
- 2) 直流絶縁破壊現象において，電流と光の波形の検出および試料表面のSEM観察によって，瞬間的に高いピークを持った電流が繰り返し流れることにより放電が発生し，溶融することがわかった．
- 3) パルス放電によって，試料表面に直径1 μ mから10 μ mのサイズのクレータ状の溶融部を再現性良く形成することができる．このとき形成される溶融部の直径は，投入されたエネルギーに依存し，エネルギーの増加とともに増加する．従って，溶融部の直径を投入するエネルギーによって制御することができる．
- 4) ベース電圧を重畳した周期的なパルス電圧を用いることで，電極と試料間のギャップ長を制御し，マイクロメートルレベルの溶融幅を持つビードを形成することができる．このとき形成されるビード幅は，パルス電圧，パルス周期，移動速度に依って制御できる可能性が見出された．

第6章 結 論

本研究では、先端のとがった微細電極と試料間の微小なギャップに電界を作用させたときに生じる現象のうち、とくに真空絶縁破壊とそれにもなって発生する放電に注目し、この現象に影響をおよぼす因子を走査トンネル顕微鏡（SEM）によるその場観察を通じて、基礎的に調べた。さらに、放電時に試料表面にマイクロメートルサイズの微小なスポット状の熔融部が形成されることから、この制御性を検討し、マイクロメートルサイズの熔融加工の可能性を追求した。

実験にあたって、サブミクロンの微小なギャップを精度良く設定することが必要であると考え、表面を原子レベルで観察することのできる走査トンネル顕微鏡（STM）を基にした、マイクロ熔融加工装置を試作した。各章で得られた結果を要約すると以下のようなになる。

第1章では、研究の背景と現状を述べ、本研究の目的を示した。

第2章では、微小な電極間に電界を作用させたときに流れる電流について、理論的に検討した。また、試作したマイクロ熔融加工装置の構造を述べ、その性能について評価した。本装置は、電極と試料間の電圧を数十mVにすることで、STMとして利用することができ、装置の性能評価にあたっては、物理蒸着表面をSTM観察することによって行った。その結果、本装置の平面分解能は1nm以下であることがわかった。

第3章では、試料の熔融・蒸発に必要なエネルギーについて、熔融および蒸発潜熱を考慮に入れ、熱伝導論によって予備的な検討を行った。その結果、金属材料を蒸発させるためには、入熱時間が10ns程度の時には、 10^{12} から 10^{13} (W/m²)程度のパワー密度が必要であることがわかった。理論的に電界放出電流によって、このような高いパワー密度を電極あるいは試料間にあたえることができる。STMで試料表面を観察時に、数Vのパルス電圧を加えることで、瞬間的にギャップ間の電界強度を強め、試料上に直径20から40nm程度の蒸着物が形成できた。この蒸着物の体積が、パルス

の条件に依存し、パルス電圧が高いほどまた、パルス幅が長いほど増加することがわかった。

第4章では、真空中における微小ギャップ間の絶縁破壊とそれともなうマイクロ放電現象について検討した。実験には直流電圧とパルス電圧を用い、絶縁破壊に影響をおよぼす因子である電極先端の曲率半径、電極と試料間のギャップ長、ギャップ間電圧、についてそれぞれの相関関係について調べることで、絶縁破壊にいたる条件を明らかにし、また、マイクロ放電現象の特性を調べ、以下の結果を得た。

- (1) 電極と試料のギャップ間をサブミクロンにすれば、100から1000Vの電圧でも、真空絶縁破壊を起こし、それともなう放電を起こす。この放電は、電圧と電流の波形および発光強度から、アーク放電であると推察した。
- (2) 絶縁破壊時の前駆電流波形から電界増倍係数 β を求め、 β が、電極先端の曲率半径 r とギャップ長 d に依存することを実験的に確かめた。また、絶縁破壊を起こすときのギャップ長 d は、 r に依存し、 r が小さくなるほど、 d が長くても絶縁破壊を起こすことがわかった。

第5章では、4章で調べた絶縁破壊ともなうマイクロ放電によって発生する、微小サイズの溶融現象について、電流、電圧波形を調べることによって、この溶融を制御する因子を調べた。その結果、以下の結果を得た。

- (1) 電極を陰極にすることで試料表面を選択的に溶融させることができ、パルス電圧を用いることで、 $1\mu\text{m}$ から $10\mu\text{m}$ の溶融部を再現性良く得ることができた。そのときの溶融スポットの直径は、ギャップ間にあたえられるエネルギーの増加とともに増加する。
- (2) 電極と試料間のギャップ長を制御し、パルス電圧を繰り返し与えることで、Ti試料に対して、 $2\mu\text{m}$ から $10\mu\text{m}$ のビード状の溶融部を形成することができた。AuおよびSiに対しても同様の溶融部を形成できた。このときの溶融幅は、パルス電圧、繰り返し周期に依存する。

以上の成果は、微小放電を利用したマイクロメートルサイズの溶融加工の基礎となり、マイクロ溶接の可能性を示すものであると考えている。現時点では、マイクロ部品の組立技術が発達していないために、接合の必要性はあまり議論されていないが、将来マイクロマシンを高機能化するためには、マイクロサイズの接合技術は、不可欠な技術であると考えられる。このような微小な接合において、その現象を観察するためにSEMなどのような高倍率の顕微鏡内で行う必要がある。そのため、観察する対象物を真空中に導入することになり、したがって、接合を真空雰囲気中で行うこととなる。このことから、本研究で行った方法は、有効な手段であると考ええる。

これまで、真空絶縁破壊によって、電極が無数の微小なクレータからなる溶融部ができることはわかっていたが、それを制御する方法は、研究されていなかった。これに対し、本研究によって、放電エネルギーを利用して、微小な溶融部を形成させる方法および条件を明らかにした。微細な電極を用いて、この電極と試料間に電界を作用させ、電極と試料間を流れる電流によってエネルギーを試料にあたえる方法の利点として、次の2つをあげることができる。

- (1) 電圧あるいは電流を変えることで、エネルギーを制御することができ、電極先端を細くすることによって、電流の流れる領域を制限できる。これらのことから、溶融する領域を制御することができる。
- (2) 電極と試料間を流れる電流を検出し、電極と試料間の距離を制御することで、試料表面の凹凸に対処でき、自動化が可能である。

この方法は、多くの金属材料（高融点材料：Ta, Wなどを除く）あるいは、半導体材料に適用可能であると予想できる。これらのことを考慮して、本研究によって明らかにされた結果は、将来の微小接合の有効な方法の基礎となると考える。

謝 辞

本研究は、大阪大学大学院工学研究科博士課程において、大阪大学教授 丸尾 大博士の御指導と御教示のもとに遂行したものであり、心から御礼申し上げます。

本論文をまとめるにあたり、大阪大学教授 仲田周次博士、中尾嘉邦博士、小林紘二郎博士、黄地尚義博士より有益な御助言と御討論を賜りました。ここに深く感謝の意を表します。

本研究を進めるにあたり、終始御助言と御教唆を頂きました 大阪大学講師 平田好則博士に厚く御礼申し上げます。

さらに、大阪大学講師 宮本 勇博士、大阪大学教官 裏垣 博博士、をはじめ、生産加工工学科の諸先生方より多大の御助言と御便宜を頂きました。心から感謝いたします。大阪大学溶接工学研究所助教授 小林 明博士には分光器の、三菱電機生産技術研究所の関係者方々にはF E S E Mの使用に対し御便宜と御協力を頂きました。心より感謝いたします。また、実験の遂行にあたって御協力を頂いた岡山 靖工学修士、安東賢二工学士、伊藤 毅工学士、世木宏重工学士、香川洋介工学士をはじめ卒業生諸兄に心から感謝いたします。さらに、公私ともにお世話になりました大家利彦博士（現 通産省四国工研）をはじめ丸尾研究室の方々にも御礼申し上げます。

最後に、本論文は、両親の支援があって成されたものであり、ここに感謝の意を表します。

参考文献

- 1) G. Binnig, H. Rohrer, Ch. Gerber, and E Weibel; Appl. Phys. Lett. 40, 178-180(1982)
- 2) E.Garfunkel,G.Rudd,D.Novak et al.;Sciece 246,99-100(1989)
- 3) J.A.Miller and R.J.Hocken; J. Appl. Phys. 68, 905-907(1990)
- 4) D.M.Eigler, and E.K.Schweizer; Nature 344,524-526(1990)
- 5) D. Bohm; "量子論", みすず書房, 1964
- 6) 武田;"気体放電の基礎", 東京電機大学出版局, 1989
- 7) M. Mehregany and Y. Tai; J. Micromech. Microeng. 1, 73-85(1991)
- 8) G. Stemme, J. Micromech; Microeng. 1, 113-125(1991)
- 9) T. Ohnishi, Y. Kawaniami and T. Ishitani; J. J. Appl. Phys. 29, 188-190(1990)
- 10) 村上, 安永ら;第52回溶接学会電子ビーム溶接研究委員会, EBW-411-87, (1986)
- 11) 増沢;精密工学会誌, 57, 963-967(1991)
- 12) J.G.Simmons;J.Appl.Phys.34,1793-1803(1963)
- 13) G.Binnig and H.Rohrer;IBM J.Res.Develop.,30,355-369(1986)
- 14) 吉原邦夫;"物理光学", 共立出版, 61-72, 昭和43年
- 15) E.Bauer; Thin Solid Films, 12, 167-185(1962)
- 16) P.W.Palmberg and T.N.Rhodin; J.Appl.Phys.,39,2425-2432(1968)
- 17) B.Lewis and J.C.Anderson; "Nucleation and Growth of Thin Films ", Academic Press,London,1976
- 18) T.Hsu and J.M.Cowley; Ultramicroscopy, 11, 239,(1983)
- 19) H.J.Mamin,S.Chiang,H.Brik,P.H.Guethner,and D.Rugar; J. Vac. Sci. Technol. B9, (1991)
- 20)青野正和, 小林中ら; 日本結晶学会誌, 33, 158(1991)
- 21) E.Muller and T.T.Tsong; "Field Ion Microscopy", Elsevier
- 22) G.A.Mesyats and D.I.Proskurovsky; "Pulsed Electrical Discharge in Vacuum", Springer-Verlag, 1989
- 23) W.P.Dyke and J.K.Trolan; Phys. Rev., 89, 799-808(1953)
- 24) ランカスター編;"溶接アークの物理", 2nd(1990)

- 25) E.L.Murphy and R.H.Good; J. Phys. Rev., 102, 1464-1473(1956)
- 26) プリンツ; "電界強度計算法" 1976
- 27) B.M.Cox; J. Phys. D:Appl. Phys., 7, 143-150,(1974)
- 28) "Wavelength Tables", The M.I.T. Press, 1969
- 29) H.S.Carslaw and J.C.Jaeger; "Conduction of Heat in Solids", Oxford

本論文に関する発表論文

- (1) " 試作 S T M による蒸着表面の観察" , 高温学会誌, Vol. 20, No. 1(1994)
- (2) " サブミクロンオーダーの微小ギャップ中の放電現象 - 微細電極を用いる放電とそれによるマイクロ溶融現象 (第 1 報) -" , 溶接学会論文集, (投稿中)
- (3) " マイクロ放電による溶融現象 - 微細電極を用いる放電とそれによるマイクロ溶融現象 (第 2 報) -" , 溶接学会論文集, (投稿中)
- (4) "Surface Melting Process with a Thin Electrode in a Micrometer Scale", IIW Doc.212-835-93