

わたしたちの研究 (2) マイクロ加工システム研究室

鈴木基史 (S61/1986卒)



1. まずは自己紹介

マイクロエンジニアリング専攻マイクロシステム創成講座

マイクロ加工システム研究室は、教授・鈴木基史、助教・名村今日子の2名のスタッフに加えて、研究員2名、大学院生10名、学部生6名、事務補佐員1名（いずれも令和3年5月現在）で薄膜のナノ形態制御と機能創成について研究しています。

<http://www.mpe.me.kyoto-u.ac.jp>

私、教授の鈴木基史は、昭和57年に本学機械系工学科に入学し（図1）、昭和61年、63年にそれぞれ学部と大学院修士課程を修了しました。この間、万波通彦先生の研究室でイオンビームと固体の相互作用の研究を通じて研究者としての基礎を教えてくださいました。修士課程修了後に（株）豊田中央研究所に入社し、薄膜技術の開発や、薄膜を用いたセンサなどのデバイス開発に携わりました。この時出会った上司や先輩が薄膜のナノ形態制御の研究の世界的な草分けで、私もその技術を引き継いで研究者の仲間入りをしました。また、豊田中研時代に出版した論文をまとめて平成10年に京都大学から博士（工学）の学位をいただきました。平成14年に万波研究室の後を引き継いでおられた木村健二先生の研究室の助教授として京都大学に着任し、平成25年に独立して現職につきました。

助教の名村今日子さん（図2）は、平成21年に私が准教授として在籍していた木村研究室に4回生で配属され、修士課程・博士課程へと進学しました。平成27年3月に当研究室で学位を取得後、同年4月から助教に着任してもらいました。ナノ形態制御薄膜を利用した光熱変換に関連する様々な新しい現象を発見・解明して目覚ましい成果をあげています。



図1 昭和57年の筆者。だいぶ年季が入りました。



図2 名村今日子助教

本稿では、私たちの研究室で取り組んでいる研究の概要を紹介させていただきます。ご興味を持たれた方からの質問やコメントをいただければ幸いです。また、これをきっかけに共同研究など新しい研究活動につながればと思います。

2. ナノ形態と機能の創成

マイクロ・ナノデバイスにおいては様々な材料の微細な形状を整えることで、性能の飛躍的な向上や、新しい機能性の実現が期待できます。高度に発達したトップダウンの微細加工技術に加えてボトムアップのプロセスを取り入れることで、従来にない新しい構造をもったデバイスをデザインし、創り出すことが可能になります。本研究室では、ボトムアップの手法に基づいた新しいナノ形態の制御法の開発とその応用を目指した研究を行っています。

2. 1. 動的斜め蒸着法

原子や分子の蒸気が固体表面で凝集するプロセスを理解してそれを利用することで、 10^{-8} mレベルの微小な要素の形を制御することが可能になります。当研究室が薄膜内部のナノ形態を制御するコア技術は、真空蒸着による薄膜作製時に、基板を蒸発源に対して大きく傾斜して配置し、必要に応じて基板の面内方位を変えて成膜する「動的斜め蒸着法」です[1]。メガネや半導体デバイスなどに使われているいわゆる普通の薄膜は、均一で平坦な薄い板で、薄膜を作成する際には基板の表面に垂直な方向から蒸気を供給して薄膜を作製します。これに対して私たちは独自に設計した成膜装置を用いて、蒸気の入射方向に対して基板を 70° 以上の角度に傾斜して配置して成膜します。基板や成長中の薄膜の表面に凸部ができると、その後ろに蒸気が直接到達できない長い影ができ、凸部が選択的に成長するため、斜めに傾斜した柱状あるいは繊維状の組織（コラム構造といいます）が成長します。図3に示すように成長の途中で基板の面内方位を 180° 反転すると、コラム構造の成長方向も反転するためにジグザグの形態をつくることができます。一方、蒸着中に基板の面内方位を連続的に回転すると、図4に示す様にコラム構造の

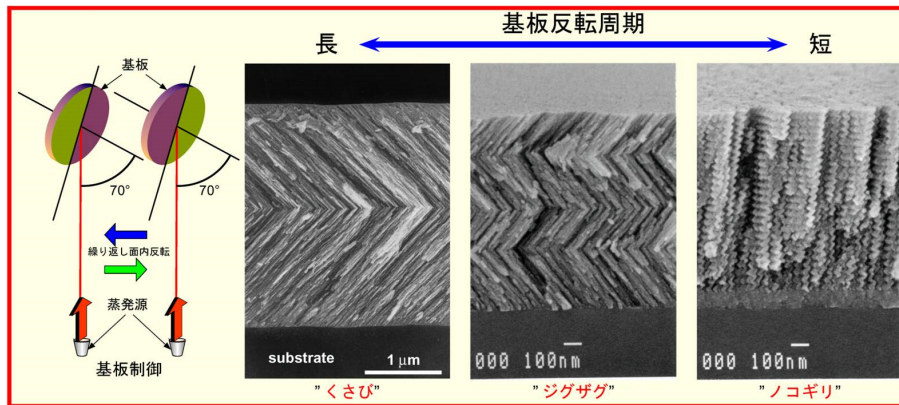


図3 2方向斜め蒸着の配置とジグザク形態の制御例。

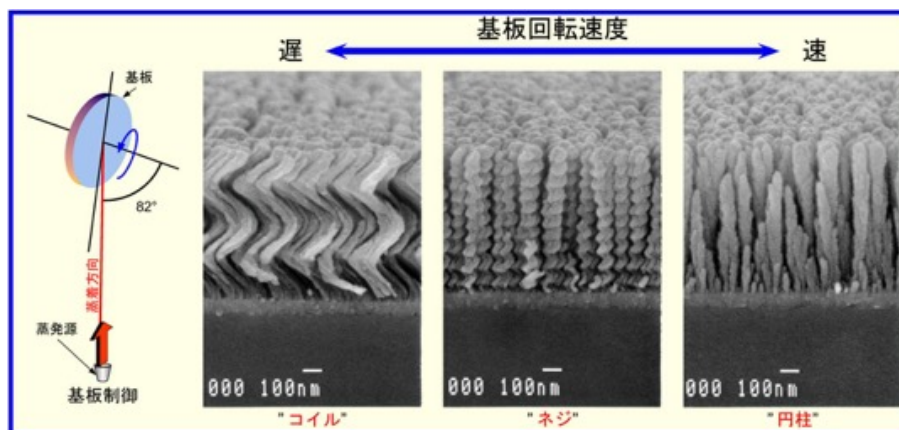


図4 回転斜め蒸着の配置とらせん形態の制御例。

成長方向が連続的に変化してバネやネジのような、らせん型のコラム構造を作り出すことができます。このようなユニークな形をつくり出すために、エッチングやリソグラフィーは必要ありません。また、蒸着できるものであれば基本的にどんな材料でも形態を制御することができます。形態形成のメカニズムは比較的よく理解されており、私が開発したモンテカルロシミュレータによって、表面積や屈折率を定量的に設計することも可能です[2,3]。

2. 2. 新しい形態創成技術の開発

前節で述べたように、斜め蒸着では表面の凸部で選択的に蒸着が進んだり、その影では成膜が止まったりします。あらかじめ基板表面にデザインされた凹凸をつくっておくことで、従来のトップダウンプロセスではつくることができなかったユニークな構造を実現することや、大幅なコストダウンが期待できます。例えば、図5(a)は自己集積化したマイクロビーズをテンプレートにして完全ボトムアップで作製した周期的なマイクロピラーアレイです[4]。大面積・低コストのフォトリソグラフィ技術への応用が期待できます。図5(b)は、マイクロビーズの影

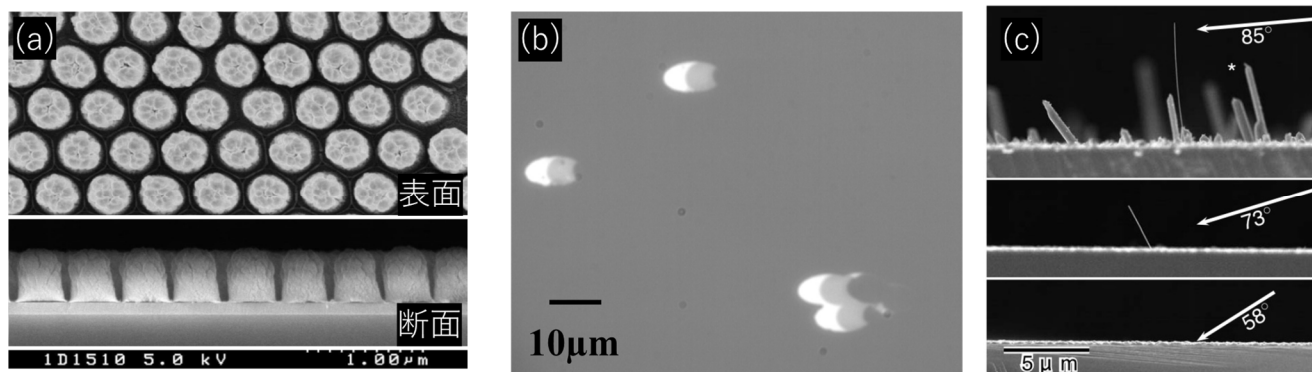


図5 (a) マイクロビーズをひな形にして形成した周期的な非稠密円柱配列。(b) マイクロビーズの影を利用して形成したマイクロペタル。明るい部分は光をあまり吸収せず、暗い部分は光をよく吸収する。(c) 高温斜め蒸着法によって成長したAlのナノワイヤ。

を利用して形成したマイクロペタル（花卉）です[5]。μmレベルの花弁状のパターン中の半分に光をよく吸収する部分（暗い部分）と光をあまり吸収しない部分（明るい）を作り出すことに成功しました。このパターンに水中で光を照射することでマイクロバブルを生成し、バブル周辺の微小な領域に急峻な温度勾配を作り出すことで、バブル周辺に一方向の流れを誘起するために開発されました（詳細は3節参照）。

図2、3に示したコラム構造は、基板の温度が比較的低いときに形成されるのに対して、温度が高くなると表面での原子の拡散が活発になり、コラム構造は消失すると考えられていましたが、実際にそれを確かめる実験は誰もやっていませんでした。ところが、実際に基板を加熱して斜め蒸着を行うと、図5(c)に示したように、これまでの様なコラム構造とは全く異なる単結晶のナノワイヤがまばらに成長することを発見しました[6,7]。不思議なことに、金属、半導体、酸化物など、結晶性や原子間の結合の性質などが大きく異なる材料でナノワイヤ成長が確認されており、まだ明らかになっていない結晶成長の本質的なメカニズムが関わっているかもしれないと期待しています。

このようにして生み出された新しいナノ形態は次節で紹介するように様々な有用な性質を示します。新しい形態創成技術の研究と、形態に起因する性質の応用研究は、私たちの研究室の車の両輪となっています。

2. 3. 形態に起因する性質の応用

京機会の皆さんには釈迦に説法ですが、歯車やネジなどの機械要素の機能は形によって決まります。私たちが扱っているナノ形態制御薄膜は、細長い要素の集

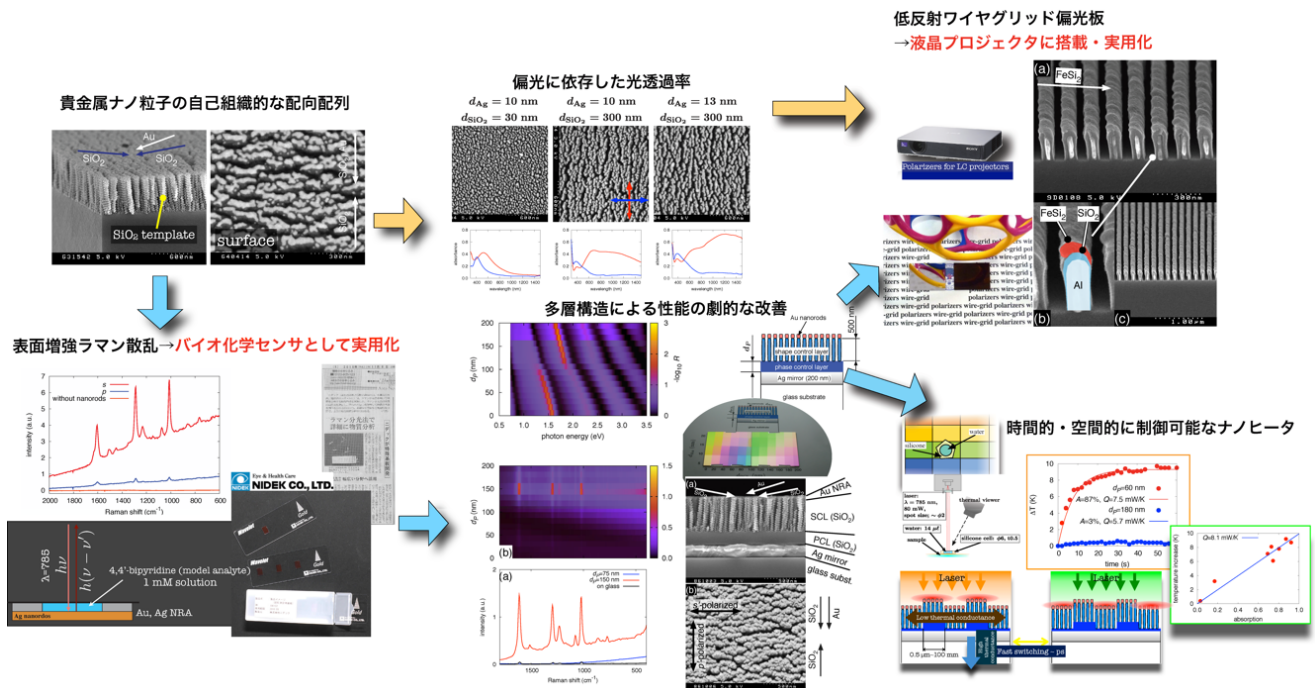


図6 貴金属ナノ粒子の形態制御から出発した研究の流れ。

まりなので、機械的に柔らかな性質を持つはずですが、私が京大に移った直後から、北村隆行名誉教授、平方寛之教授、澄川貴志教授に注目していただき、材料力学的な観点から形態と機械的性質の関係について研究が進められています。

一方、細長い形は電氣的・磁氣的な応答に強い影響を及ぼします。細長い形の中にある電子や分子は、長手方向には電場や磁場で容易に動きやすく、逆に短手方向には動きにくくなるため、コラム構造を有する薄膜は電気・磁気・光学的な異方性を示す様になります。平成14年に京大に移った直後には、金や銀の貴金属ナノ粒子の形態を制御して光吸収の異方性を偏光板に応用する研究に取り組みましたが、その後この研究は図6に示すように、材料や形を変えて現在まで継続しています[8-12]。この間、化学系の研究者や電気メーカー関連の会社など、異分野の共同研究者との出会いもあり、表面増強ラマン散乱(SERS)測定用Auナノロッドアレイ基板”Wavelet”[9]と低反射ワイヤグリッド偏光板[11]が実用化されました。

さらに図6の技術から派生して、環境半導体として注目されているβ-FeSi₂の高い屈折率やVO₂の金属-半導体相転移を利用して太陽光を選択的に吸収する薄膜や、特定の波長の赤外線を選択的に放射する薄膜を実現し、太陽熱発電や排熱リサイクルにも取り組んでいます。

3. 新しい研究分野：表面界面機械工学の創設にむけて

名村今日子助教が4回生で配属されてきたとき、私は金ナノ粒子に照射した光による発熱に興味を持っており、彼女に「時間的・空間的に制御可能なナノヒーター」(図6右下)の研究

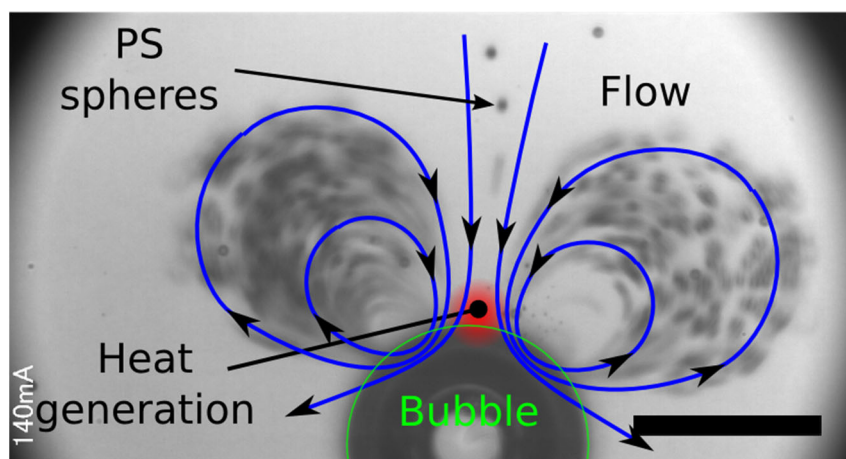


図7 Auナノ粒子に水中で光を照射して生成したマイクロバブルとその周辺に誘起された流れ。

研究に取り組んでもらうことにしました[12]。名村さんは修士課程でこの熱によって超音波を発生すること[13,14]に成功し、博士課程では音波による水中の物体の駆動に取り組んでいました。その過程において、レーザーの集光によって金ナノ粒子の表面にバブルが形成された際に、レーザースポットを少しバブルの中心からずらすと、バブルの周辺に激しい流れが起きることを発見しました(図7)[15]。百分は一見に如かずです。ぜひYouTubeに登録した動画をご覧ください(<https://www.youtube.com/watch?v=lnuQhN9rVY0>)。

この特異な流れは、気液界面に急峻な温度勾配が生じることで、温度に依存する表面張力の釣り合いが崩れ、バブル表面がベルトコンベヤのように動くために生じていることが分かりました。この発見がきっかけになり、脱気した水中ではさらに微小なバブルが発生して劇的に速い流れが発生すること[16]、バブル周辺に温度勾配をつくると流れの方向を制御できること[17]など、名村さんによって大きく研究が発展しています[18-21]。水冷効率の劇的な効率向上や、流体駆動のための新しい動力源としての応用も期待できます。

本年、名村さんはJSTの創発的研究支援事業に採択され、既存の枠組みにとらわれない自由で挑戦的・融合的な多様な研究を推進することになりました。このマイクロバブルと周辺の流れの研究をきっかけに、多くの研究者を巻き込んで「表面界面機械工学の創設」を目指しています。京機会の皆様にも若い研究者が活躍できるよう守り立てていただければ幸いです。

4. おわりに

私が京大に着任する前に、木村健二先生が、「実験屋がオリジナリティの高い研究を継続するためには、『他の人がつくることのできないよい試料をつくる技術をもっている』か『他の人がはかることのできない独自の評価技術をもっている』ことが重要だ」とおっしゃったことが私の記憶に強い印象とともに残っています。独自の装置を持っていたおかげで新しい形態を作り出し、形態に起因する新しい機能性を実現することができました。加えてこれまで出会った学生諸君の柔軟な発想や、時にはプロの研究者が絶対に選ばない実験条件によって、たくさんの新しい発見がありました。大学の研究者の醍醐味のひとつだと思います。今後も学生諸君とともに、ナノ形態制御薄膜を武器に、新しい研究に挑戦していきたいと思います。

最後に、私たちの研究に関わっていただいた全ての方々に感謝して本稿を閉めたいと思います。ありがとうございました。

参考文献

- [1] 鈴木基史, "物理的蒸着法による薄膜のナノ形態制御," *Journal of the Vacuum Society of Japan* **55** (3), 91-96 (2012).
- [2] M. Suzuki and Y. Taga, "Numerical study of the effective surface area of obliquely deposited thin films," *J. Appl. Phys.* **90** (11), 5599-5605 (2001).
- [3] K. Kaminska, M. Suzuki, K. Kimura, Y. Taga, and K. Robbie, "Simulating structure and optical response of vacuum evaporated porous rugate filters," *J. Appl. Phys.* **95** (6), 3055-3062 (2004).
- [4] M. Suzuki, S. Suganuma, and Y. Kaneko, "Bottom-up fabrication of non-close-packed nanopillar arrays for photonic applications," *Proc. SPIE* **9172**, 91720W-91720W-91725 (2014).
- [5] 花井竣矢, 京都大学マイクロエンジニアリング専攻修士学位論文, 2021.
- [6] M. Suzuki, K. Nagai, S. Kinoshita, K. Nakajima, K. Kimura, T. Okano, and K. Sasakawa, "Vapor phase growth of Al whiskers induced by glancing angle deposition at high temperature," *Appl. Phys. Lett.* **89** (13), 133103 (2006).
- [7] M. Suzuki, H. Minamitake, R. Kita, K. Hamachi, H. Hara, K. Nakajima, K. Kimura, C.-W. Hsu, and L.-J. Chou, "Growth of Nanowires by High-Temperature Glancing Angle Deposition," *Japanese Journal of Applied Physics* **52**, 110116 (2013).
- [8] M. Suzuki, W. Maekita, Y. Wada, K. Nakajima, K. Kimura, T. Fukuoka, and Y. Mori, "In-line aligned and bottom-up Ag nanorods for surface-enhanced Raman spectroscopy," *Appl. Phys. Lett.* **88** (20), 203121 (2006).

- [9] M. Suzuki, K. Nakajima, K. Kimura, T. Fukuoka, and Y. Mori, "Au Nanorod Arrays Tailored for Surface-Enhanced Raman Spectroscopy," *Analytical Sciences* **23** (7), 829-833 (2007).
- [10] M. Suzuki, Y. Imai, H. Tokunaga, K. Nakajima, K. Kimura, T. Fukuoka, and Y. Mori, "Tailoring coupling of light to local plasmons by using Ag nanorods/structured dielectric/mirror sandwiches," *Journal of Nanophotonics* **3** (1), 031502 (2009).
- [11] M. Suzuki, A. Takada, T. Yamada, T. Hayasaka, K. Sasaki, E. Takahashi, and S. Kumagai, "Low-reflective wire-grid polarizers with absorptive interference overlayers," *Nanotechnology* **21** (17), 175604 (2010).
- [12] K. Namura, M. Suzuki, K. Nakajima, and K. Kimura, "Heat-generating property of a local plasmon resonator under illumination," *Opt. Lett.* **36** (18), 3533-3535 (2011).
- [13] K. Namura, M. Suzuki, K. Nakajima, and K. Kimura, "Highly localized photothermal conversion in two-dimensional Au nanoparticle arrays," *J. Appl. Phys.* **114** (7), 074308-074304 (2013).
- [14] K. Namura, M. Suzuki, K. Nakajima, and K. Kimura, "Photoacoustic emission from Au nanoparticles arrayed on thermal insulation layer," *Opt. Express* **21** (7), 8689-8700 (2013).
- [15] K. Namura, K. Nakajima, K. Kimura, and M. Suzuki, "Photothermally controlled Marangoni flow around a micro bubble," *Appl. Phys. Lett.* **106** (4), 043101 (2015).
- [16] K. Namura, K. Nakajima, and M. Suzuki, "Quasi-stokeslet induced by thermoplasmonic Marangoni effect around a water vapor microbubble," *Scientific Reports* **7**, 45776 (2017).
- [17] K. Namura, S. Imafuku, S. Kumar, K. Nakajima, M. Sakakura, and M. Suzuki, "Direction control of quasi-stokeslet induced by thermoplasmonic heating of a water vapor microbubble," *Scientific Reports* **9** (1), 4770 (2019).
- [18] K. Namura, S. Okai, S. Kumar, K. Nakajima, and M. Suzuki, "Self-Oscillation of Locally Heated Water Vapor Microbubbles in Degassed Water," *Advanced Materials Interfaces* **7** (18), 2000483 (2020).
- [19] N. Kyoko, N. Kaoru, and S. Motofumi, "Investigation of transition from thermal- to solutal-Marangoni flow in dilute alcohol/water mixtures using nano-plasmonic heaters," *Nanotechnology* **29** (6), 065201 (2018).
- [20] K. Namura, K. Nakajima, K. Kimura, and M. Suzuki, "Microfluidic control on nanoplasmonic thin films using Marangoni effect," *Journal of Nanophotonics* **10** (3), 033006-033006 (2016).
- [21] K. Namura, K. Nakajima, K. Kimura, and M. Suzuki, "Sheathless particle focusing in a microfluidic chamber by using the thermoplasmonic Marangoni effect," *Appl. Phys. Lett.* **108** (7), 071603 (2016).