

学位論文の要旨

氏名

柿内 茂樹

学位論文題目

ナノ構造金および銅薄膜のマイクロ波加熱

本論文は、「ナノ構造金および銅薄膜のマイクロ波加熱」をまとめたものである。

バルク金属はマイクロ波の大半を反射するため、加熱にマイクロ波を利用した例はほとんどない。しかし、近年、金属粉末の加熱焼結にマイクロ波が利用され始めている。マイクロ波によって特定の金属薄膜のみを選択的に加熱できれば、デバイス等を含めマイクロ波の応用はさらに拡大すると予想される。しかし、金属薄膜のマイクロ波加熱については報告が無く、そのメカニズムについても不明な点が多い。本研究では、酸化物を形成しない金薄膜と酸化物を形成する銅薄膜を用いて、マイクロ波加熱挙動を調べた。

第一章は序論であり、マイクロ波加熱特性、金属薄膜の成膜過程、マイクロ波のプラズマ振動数と表皮効果および、本研究の目的と意義について述べた。

第二章では、バイオセンサー技術として注目されている表面プラズモン共鳴法（SPR法）で用いられている金属薄膜チップの表面改質にマイクロ波加熱を試みた。その結果、金薄膜はマイクロ波加熱され、転写法によって表面粗さ1nmを持つ金チップが作成できることが明らかになった。マイクロ波加熱は主にマイクロ波が金属薄膜内部に侵入・吸収されたことによる加熱（吸収加熱）である。これには表皮深さが密接に関与しており、最も加熱されやすい膜厚が存在することがわかった。

第三章では、真空蒸着法とスパッタ法の二種類の成膜法を用い、石英基板上に厚さと微細構造を種々に変えた金薄膜を成膜し、大気中でマイクロ波を照射した(周波数:2.45GHz、照射量:563W、照射時間:600s)ときの加熱挙動を調べた。その結果、金薄膜はいずれの成膜法においても連続的にマイクロ波加熱することが可能であり、その昇温速度は金薄膜の抵抗率と膜厚の比に依存することが明らかとなった。薄膜の微細組織を一定にして膜厚のみを増加させると、金薄膜の抵抗率と膜厚の比 L/ρ は、 L の増加だけでなく表面散乱に起因する ρ の減少により大幅に増加し、結果的に昇温速度は減少すること、一方、薄膜の厚さを一定にして結晶子サイズのみを増加させると、粒界散乱に起因する ρ の低下により L/ρ は増大するため、結果的に昇温速度は減少することがわかった。

第四章では、真空蒸着法を用い、石英基板上に厚さと微細構造を種々に変えた銅薄膜を作成し、大気中でマイクロ波を照射した(周波数:2.45 GHz、照射量:563 W、照射時間:600 s)ときの加熱挙動を調べた結果、以下のことが明らかになった。銅薄膜は不規則なマイクロ波加熱挙動を示す。マイクロ波照射初期において、温度は一旦急速に上昇するが、その後急速に低下する。その後温度が上昇しないものもあれば、連続的に加熱されるものもある。これらの温度変化は、膜厚や微細構造だけでなく、酸化銅の量、抵抗率の温度依存性、マイクロ波加熱中における銅粒子の成長、銅薄膜表面からの熱放射など種々の要因に関係することがわかった。

第五章では、本研究の総括を行った。

論文審査の要旨

報告番号	理工研 第 252 号	氏名	柿内 茂樹
審査委員	主査	末吉 秀一	
	副査	小原 幸三	隅田 泰生

学位論文題目 ナノ構造金および銅薄膜のマイクロ波加熱

(Microwave Heating of Thin Gold and Copper Films with a Nano-Structure)

審査要旨

提出された学位論文及び論文目録等を基に学位論文審査を実施した。本論文は、ナノ構造金および銅薄膜のマイクロ波加熱についてまとめたもので、全文5章より構成されている。

第1章は序論であり、マイクロ波工学の背景、金属薄膜の製造方法、マイクロ波プラズマ振動数と表皮深さ、マイクロ波加熱に関する従来の研究とその問題点および本研究の意義、目的を述べている。

第2章では、真空蒸着法を用いてスライドガラス上に成膜した金および銅薄膜にマイクロ波を照射したときの加熱挙動を調べた。その結果、いずれの薄膜においてもマイクロ波加熱が可能であることが明らかになった。また、表面プラズモン共鳴法で用いられている金薄膜チップの表面改質にマイクロ波加熱を試み、表面粗さ1 nmの金薄膜チップが作成できることを示した。

第3章では、真空蒸着法とスパッタ法を用いて石英基板上に成膜した金薄膜にマイクロ波を照射したときの温度変化を放射温度計で測定すると共に、金薄膜の表面形態の変化を原子間力顕微鏡、結晶構造の変化をX線回折、抵抗率の変化を直列四端子法でそれぞれ調べた。その結果、金薄膜は成膜法によらずマイクロ波照射によって連続的に加熱されること、その加熱速度はマイクロ波吸収量に依存し、それは薄膜の厚さ、薄膜の微細構造、マイクロ波加熱中の結晶粒成長、抵抗率の温度依存性および熱伝導率と密接に関係していることが明らかとなった。

第4章では、真空蒸着法を用いて石英基板上に銅薄膜を成膜し、マイクロ波を照射したときの温度変化、表面形態の変化、抵抗率の変化を調べると共に、X線光電子分光分析を用いて薄膜中の酸化物的変化についても調べた。その結果、マイクロ波照射初期において温度は一旦急速に上昇した後急速に低下するが、その後の挙動は薄膜によって異なり、温度が上昇しないものもあれば、温度が連続的に上昇するものもあるなど、銅薄膜は不規則な加熱挙動を示すこと、また、これらの温度変化は、上記の要因だけでなく、薄膜中の銅酸化物も密接に関係していることが明らかとなった。

第5章は総括である。

以上本論文は、ナノ構造金および銅薄膜にマイクロ波を照射したときの加熱挙動およびそれにおよぼす諸因子の影響について明らかにしており、マイクロ波加熱を新しい加熱技術の一つとして確立していく上で、工学上有用な指針を提供している。

よって、審査委員会は学位（博士）の学位論文として合格と判定した。

最終試験結果の要旨

報告番号	理工研 第 252 号	氏 名	柿内 茂樹
審査委員	主 査	末吉 秀一	
	副 査	小原 幸三	隅田 泰生

平成19年2月9日に行われた論文発表会において、学位論文の内容について質疑応答を行った。以下に質疑応答の主なものを示す。

1. 「薄膜材料として金と銅の2種類を選んだ理由は」
 答：金薄膜は表面プラズモン共鳴法のチップとして用いられていること、金は酸化物を作らないので純粋に金属薄膜のみのマイクロ波加熱挙動が調べられるという意味で選択した。銅薄膜は電子デバイス等で広く利用されていること、銅は金と同属の元素であり、物理的性質は似ているが、酸化物を作りやすく、誘電体のような不純物を含む薄膜のマイクロ波加熱挙動を調べるのに適しているという意味で選択した。
2. 「マイクロ波加熱において最も重要なファクターは何か」
 答：薄膜の厚さ L と薄膜の抵抗率 ρ の比 (L/ρ) である。この値が大きくなると加熱されにくくなる。薄膜の膜厚、薄膜の微細構造、マイクロ波加熱中の結晶粒成長および抵抗率の温度依存性がこのファクターに直接関係してくる。
3. 「薄膜の抵抗率 ρ に関して表面散乱と粒界散乱を考慮しているが、後者における粒界での反射率が金薄膜と銅薄膜で大きく異なるのはなぜか」
 答：材料による粒界構造の違いもあるが、金薄膜と異なり銅薄膜中には酸化物が分散していることも関係していると考えられる。
4. 「マイクロ波加熱によって結晶粒の成長が起こると加熱されにくくなるので、長時間の加熱はできないのではないか」
 答：結晶粒が成長すると ρ は低下するので、加熱されにくくなる。一方、温度が高くなると ρ は大きくなるので、逆に加熱されやすくなる。このように、いろいろな要因がからみあって加熱速度が決まる。しかし、長時間マイクロ波照射すると、温度は次第に一定となる。これは、薄膜の加熱と薄膜から周囲への放熱がバランスして熱的平衡状態に達するためである。
5. 「マイクロ波加熱した場合の結晶粒の成長は、普通の加熱炉で加熱した場合のそれと異なるのか」
 答：結晶粒の成長に関して比較は行っていない。マイクロ波の力学的作用の1つとして動重力効果というものも提案されているが、本研究では確認してはいない。マイクロ波加熱による結晶粒の成長は、単なる熱振動による成長挙動とは異なることも考えられる。今後の課題としたい。
6. 「X線光電子分光分析におけるO 1 s スペクトルのピークは、吸着している酸素のピークではないのか」
 答：O 1 s スペクトルは表面のチャージシフトを考慮して書き直している。このピークの結合エネルギーの値から判断すると、このピークは銅酸化物によるものと考えられる。
7. 「銅酸化物の影響としてはどのようなものを考えているのか」
 答：Fe₂O₃ 粉末や CuO 粉末は誘電ロスが大きいので、マイクロ波加熱されやすいことが報告されている。銅薄膜中の銅酸化物も同様の挙動を示すと考えている。

その他多くの質疑応答が行われたが、いずれに対しても明瞭かつ適切な回答がなされた。

以上の結果から、3名の審査委員は、申請者が大学院博士後期課程の修了者として十分な学力ならびに見識を有するものと認め、博士（工学）の学位を与えるに足る資格を有するものと認定した。