

## TODAY

## 今こそ「材料への人材回帰」のチャンス



京都大学大学院工学研究科

教授 村上正紀

日本は耕作地も少なく、地下資源にも乏しい。海外からの輸入が全くなければ、3000万人くらいが（現在より生活レベルを格段に下げ）やっと自活できるくらいの島国である。残りの9000万人分の生活は、日本からの輸出による外貨獲得に頼らねばならぬのが現状である。鉄鋼業をはじめとする素材産業は外貨の稼ぎ頭であり、われわれはその恩恵を被り、今日でも豊かな生活が可能である。もちろん、日本には資源が乏しいために、素材産業の繁栄は日本の優秀な人材が「材料を制する者が技術を制し、未来を拓く」との精神で、材料に集結した結果である。

「鉄は国家なり」と謳われた素材産業最盛期には、どの業種より鉄鋼業には非常に優秀な人材が職を求め、終戦後の日本の経済繁栄に貢献してきたし、現在も貢献している。しかし、バブル経済崩壊後は、日本の不景気の波が素材産業を直撃し、若者の材料への憧れを啓発するシナリオは存在せず、大学では若者の物づくり離れ、特に材料離れが激しく、材料工学を専攻した学生ですら、素材産業への就職希望者が激減していた。このように優秀な人材が材料に関心が薄いことが大学での材料研究を弱体化させ、素材産業が外貨の稼ぎ頭であり続けられるか否かが懸念された。

しかし、ここ2、3年鉄鋼業をはじめとする素材産業の業績が種々の要因が上手く噛み合わさり改善してきた。最近の素材企業の株価の高騰を反映して、

大学院生にも素材産業を希望する学生が少しずつ増えつつある。株価が人材確保にも一役担っている証である。今こそ本腰を入れ、「優秀な人材の材料への回帰」の実践のチャンスであると思う。アルミ業界では人材回帰の具体的な企画がなされているとの朗報がある。7月7日に開催された材料戦略会議の席でアルミ業界を代表していただいている委員から「若い頃より業界発展のため全力を尽くし、そろそろ定年を迎える時期になった。後継者は？ と振り返ると自分の後ろについて来てくれている者は僅かである。これは、アルミ業界全体の共通点である。既存の学協会に頼らず、数社の企業で資金を調達し、大学に直接助成し、アルミ研究・開発に興味をもつ人材の育成を促進する」とのご発言があり、アルミ企業が直接人材育成に力を入れ始めたあらわれである。

日本金属学会でも材料への人材の回帰の重要性を唱え、「材料分野のプレゼンスの向上」、「高度化社会を牽引する材料立国の構築」、「専門家集団としての地位向上」のスローガンを掲げ活動している。

現在は、過去と異なった材料を取り巻く環境の相違（例えば資源枯渇）から、材料研究・開発の方向性もおのずから異なってくる。次世代でも日本が素材産業で世界をリードするには、時代の流れに整合し、かつ他国とは異なった「日本独自の材料」を創成してくれる人材を確保せねばならない。今までは、大学生に向けての人材回帰活動が主であったが、大学生では少し遅すぎる感がする。今こそ、産官学が一体となり、中学・高校時代から「材料の面白さ」を教えるために、教科に「材料」を取り込む強力な働きかけをすべきである。材料に順風が吹きつつある今を逃せば人材回帰の時期はないと思う。

「ナノメタル技術 実用金属材料分野ナノメタル技術開発」中間報告

非鉄材料研究部 有我誠芳

1 はじめに

本研究開発は科学技術基本計画に基づく重点化方針で、国自らが重点的に行う課題の一つとして位置づけられたナノテクノロジープログラム ナノマテリアル・プロセス技術の一環として、新エネルギー・産業技術総合開発機構（NEDO技術開発機構）から委託を受け、JRCMが平成13年度から17年度の5年計画で実施しているプロジェクトである。

本プロジェクトは構造材、機能材として工業的に重要な金属材料である鉄系材料、アルミニウム系材料、銅系材料を対象とし、金属材料の組成・組織を超精密、超微細に制御することで機械的特性（強度、延靱性等）機能特性（電気特性、磁気特性、耐食性）を飛躍的に向上させるとともに、計算機シミュレーションを活用したナノ領域における金属材料の設計技術の体系的

な解明、及びその手法の確立を目標に研究開発を進めている(図-1)

本レポートでは銅、アルミニウム（計算科学）関係の研究成果の途中経過について報告する。

2 ナノメタル(銅系)研究開発

ナノメタル銅系には大きく分けて2つのテーマがあり、一つは小型高密度電子機器に使用される高機能銅合金板材に関し、ナノサイズの結晶粒及び析出物を制御することで、高導電性と高強度の両者を向上させることを目的とする「ナノ銅バルク研究テーマ」と、もう一つは次世代Si半導体中のナノスケールの配線材料として、Alより低抵抗のCu配線材の実用化に関する「ナノ銅薄膜研究テーマ」である。

(a) ナノ銅バルク研究テーマ

東北大学の石田清仁教授をリーダーに、ヤマハメタニクス(株)、日鉱金属(株)、東北大学金属材料研究所、多元物質科

学研究所に参加していただき、銅合金の組成、組織をナノレベルで制御することにより、高強度、かつ高電気伝導度を併せもつ銅合金を開発することを目的として、ナノクラスター・ナノ析出制御技術、粒界・界面構造制御、ナノ結晶粒創製技術の3つのテーマで研究開発を進めている(図-2)。

ナノクラスター・ナノ析出制御技術

Cu-Ni-Si系合金で、固溶する元素を最大限析出させて、マトリックスの純度を上げることにより電気伝導度を向上させ、同時に析出物をナノサイズに制御して強度向上する技術を研究開発している。

これまでに析出相(Ni<sub>2</sub>Si)をナノサイズで析出させるための時効温度や加工率等のプロセス条件を見いだすことができ、現在は合金組成と添加元素が析出相組織に与える効果の調査を続け、高強度、高電気伝導度を両立させるメカニズムの解明を目指している。

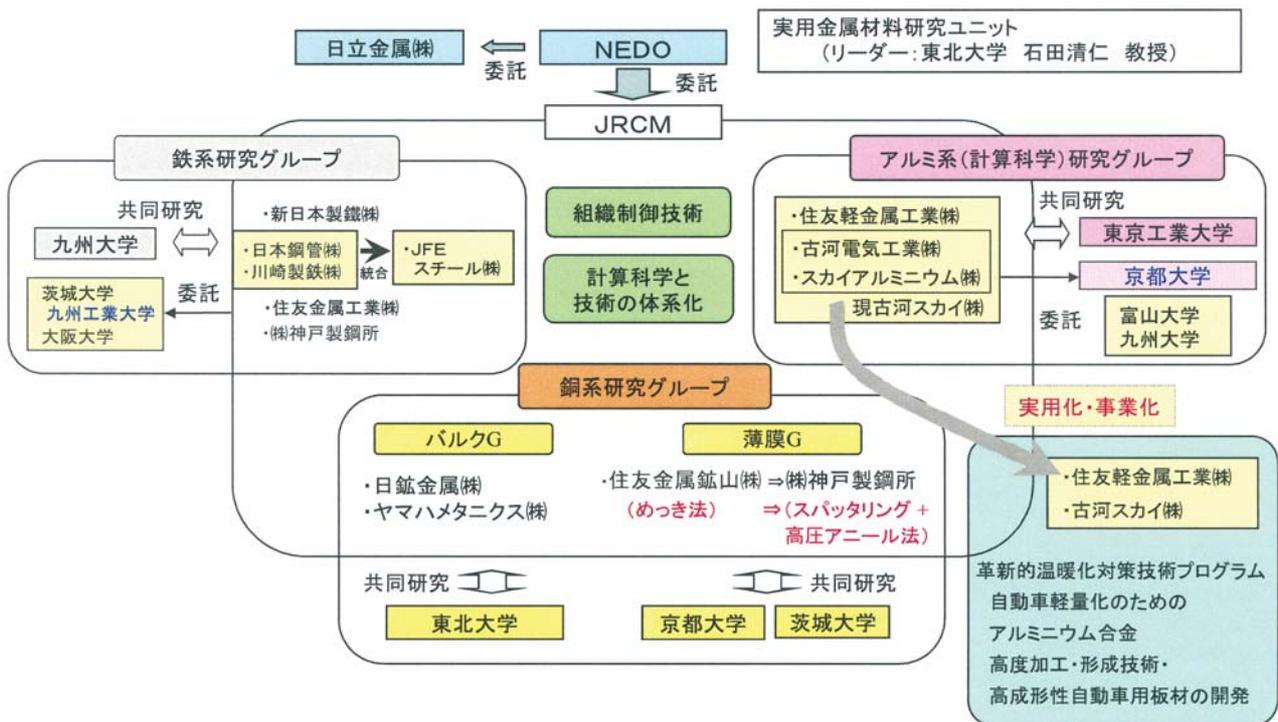


図-1 実用金属材料分野ナノメタル技術 研究体制

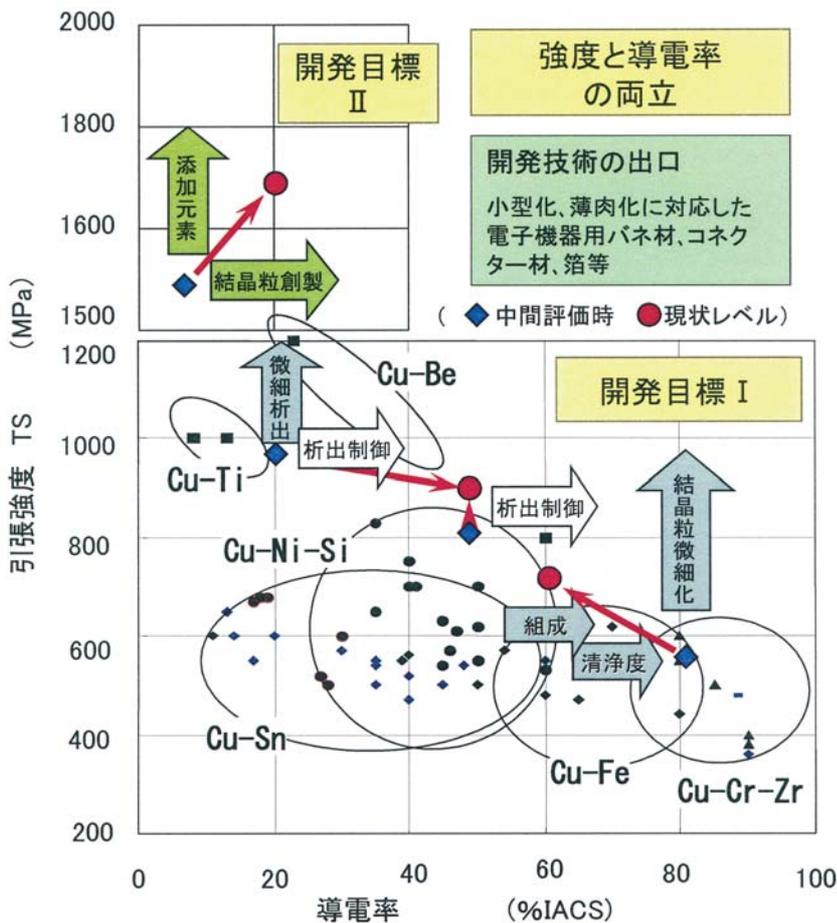


図-2 ナノ銅バルク系開発目標

また、銅合金の材料設計支援を目的に、「スピノーダル型銅合金の相安定性の予測システムの構築」を目標として、スピノーダル分解や2相分離が出現する銅基系の相平衡についてこれまでにCu-Cr-Fe-Ni-Si-Sn-Zn-P 8元系データベースを完成させた。Ti、B、C等のマイクロアロイング元素を含んだ系についても熱力学解析を行い、11元系データベースの構築を進めている。

#### 粒界・界面構造制御

強加工した銅合金を再結晶させる際に、ナノスケールで析出させた第二相粒子を利用して、再結晶時の粒成長を抑制し、ナノサイズの結晶粒微細化を図り、純銅マトリックスによる電気伝導度向上、微細結晶粒による強度向上を同時に達成する技術を研究開発している。

Cu-Cr-Zr系合金を中心にCr、Zrのナノ(微細粒子)析出制御による数10nm

レベルの微細組織の実現に取り組み、引張強度 740MPa、導電率 60% IACSの特性が得られている。

現在はCu-Cr-Zr系合金で引張強度1000MPa以上、導電率60% IACS以上の特性に加工性を併せもつ微細組織の最適化と絞り込みを、組成、時効条件、加工条件の最適化の観点から実施している。

また、めっき法によりパネ材としての材料開発を検討しているCu-Sn合金では、成膜するための電解めっき条件を決定し、成膜速度並びにSn濃度が制御できるようになった。種々のSn濃度並びに熱処理条件の試料において導電率とナノインデンテーション硬度を測定し、最大導電率19% IACS、最大硬度3GPa(換算降伏応力1GPa)が得られた。現在は、高温での応力緩和耐性や弾性率等、パネ材としての総合

的な性能の評価、研究を行い、Sn濃度と熱処理条件をさらに最適化することによって高性能化を目指している。

#### ナノ結晶粒創製技術

急冷凝固した非晶質材料を熱処理して得られるナノコンポジット組織のうち、「粒界なし結晶+ナノ非平衡粒」は適度の電気伝導度と高強度の銅合金材料が期待されるため、合金設計、及び液体急冷技術を駆使して高強度導電性銅合金開発の指導原理の確立を目指している。

これまでに急冷凝固技術の開発等を行い、>1700MPaと導電率 >20% IACSを兼ね備えた組織制御銅2元合金の創製に成功した。今後、最終目標である >1800MPa、>20% IACSを達成し、本開発銅合金の実用化研究まで進める予定でいる。

また、ラインスペースが50μm以下の次世代実装技術に対応するパネ材としての用途展開を目的として、Cu-Sn合金を成膜するための電解めっき条件を検討し、成膜速度、Sn濃度の制御が可能となった。さまざまなSn濃度並びに熱処理条件で作製した試料で導電率とナノインデンテーション硬度を測定し、最大導電率19% IACS、最大硬度3GPa(換算降伏応力1GPa)が得られた。この材料はCu-Sn固溶体とCu<sub>3</sub>Sn金属間化合物の2相組織から成っており、高強度の原因が粒径100~500nmの微細結晶粒が安定に存在することに起因することを明らかにした。

現在は、合金膜の特性を向上するために、Sn濃度と熱処理条件の最適制御によって30%の導電率を達成する。さらに、研究終了後の実用化を見据えて、膜表面の平滑化、パネ特性(弾性率)の評価、加熱時の応力緩和の評価と向上に関する研究を行っている。

#### (b) ナノ銅薄膜研究テーマ

デバイス性能の(飛躍的)向上のため、高い信号伝播速度(電気抵抗率に

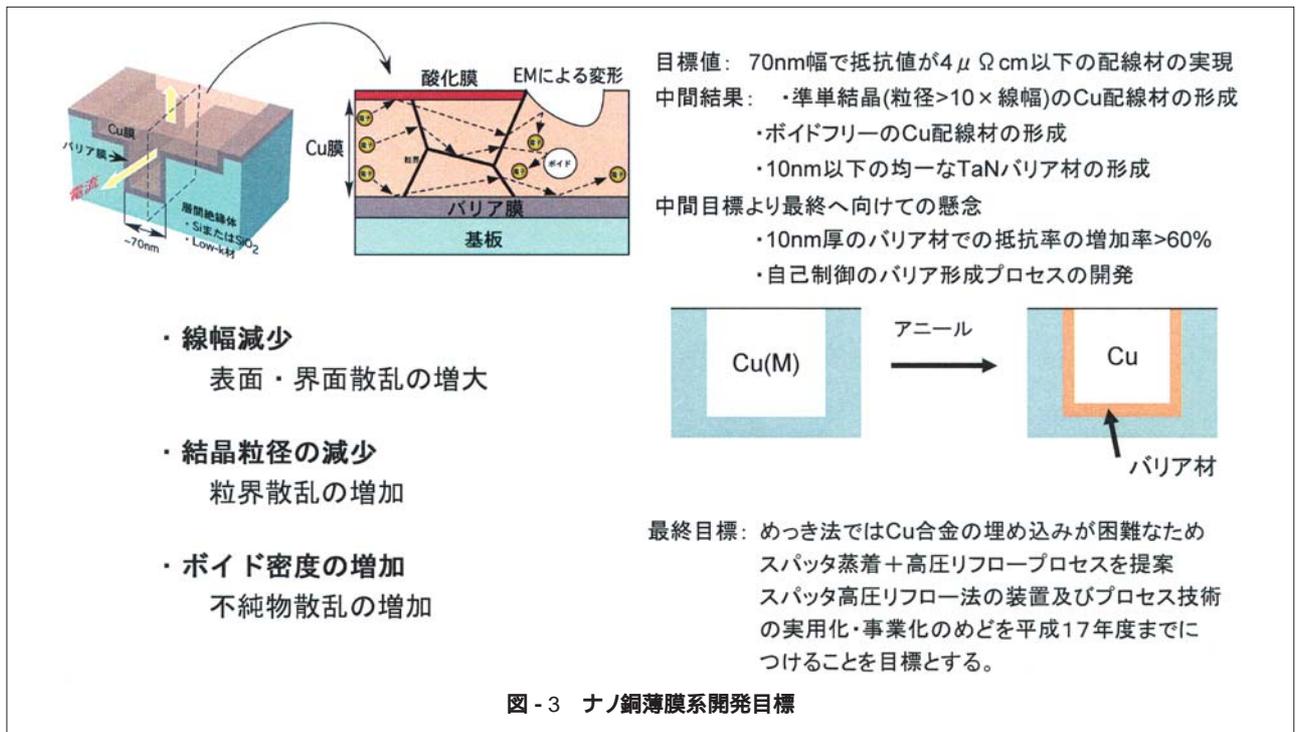


図-3 ナノ銅薄膜系開発目標

逆比例)が要求され、Al配線からさらに低抵抗なCu配線材への変換が必須だが、配線の微細化が進むとバルクCuより比抵抗が大きくなることが予想されている。このため、京都大学の村上正紀教授をリーダーに茨城大学、(株)神戸製鋼所に参加していただき、Cu薄膜配線材の使用限界を物性、信頼性の点から解明することを目標としてCu配線に対して材料科学的課題の解明・解決を主体に進め、単結晶Cu薄膜配線及び種々の結晶粒径を有する多結晶Cu薄膜配線を作製し、サイズ効果によるCu配線の特性限界を明らかにした。

得られた知見をもとに、次世代ULSIに必要とされる電気抵抗率を予測し、配線の低電気抵抗率を確保できる新しい配線技術として「バリア層自己形成を実現する銅合金材」の開発に着手し、Cu-Ti合金薄膜が有望であることを見いだしたが、実用化に向け目標をシフトし、研究開発実施項目、共同研究体制を見直し、平成16年度以降「スパッタリング+高圧リフロー法」による高品質のCu配線材の実用化に向け、

Al配線材と同等以上の性能を得ることを目標に研究を進めている(図-3)。

#### ナノCu薄膜組織制御技術

銅合金薄膜配線の開発を進め、Cu-Ti合金薄膜材は400℃で熱処理することでCu配線部とバリア層部の2相分離が生じ、基板との界面部に自己組織形成したTi-rich層(界面反応によるTiシリサイド及び酸化物)が銅拡散に対するバリアになることを検証した。

一方、Cu薄膜中へのTiの固溶は高温高圧リフロー性(ダマシン配線形成の埋め込み性)を阻害するため、リフロー性改善を目的として成膜時の雰囲気条件等のプロセスの最適化、及び有効な添加元素を検討し、Sb、N等の添加により、流動性が改善されることを確認した。

また、開発材の特性評価のために技術ノード35-50nmに相当する、配線幅50-80nm、深さ150-200nmの超微細溝形成プロセスを検討し、それに基づきTEG(Test Element Group)を設計・製作した。また、並行して超微細配線のSM耐性、EM耐性の予備検討し、耐性向上に有効なプロセス、サ

イズパラメータに関する知見を得ることができた。

今後は、高圧アニール埋め込み法によるバリア層自己形成超微細銅合金配線材の実現を目指し、Cu-Ti合金薄膜材に対して、(1)合金組成の決定(400℃熱処理において「バリア層自己形成+低抵抗( $4 \mu\Omega\text{-cm}$ 以下)+高埋め込み性」を有すること)(2)埋め込みプロセスの最適化(設計径:180nm、ピッチ:450nm、アスペクト比:3.0~4.0のピアを有するTEGへの100%埋め込み)を目指し、埋込配線に対して、埋め込み性、微細構造(バリア層自己形成)、性能(電気抵抗率)信頼性評価を行い、開発した技術の効果の検証を進める。

### 3 ナノメタル(アルミニウム系(計算科学))研究開発

当初、自動車用アルミニウム合金板材のバークハード性の向上を達成するため、ナノスケールのクラスターを適切に制御することとおして、高性能を発揮するナノマルチ組織制御技術の指導原理の確立を目的として、東京工

業大学里 達雄教授をリーダーにして、住友軽金属工業株、古河スカイ株(平成15年10月にスカイアルミニウム株)と古河電気工業株の軽金属部門が統合) 富山大学、九州大学、大阪大学、京都大学、静岡大学の協力のもとに研究を開始した。

平成15年度に行われた中間評価の結果、技術的には高い評価を得たが、実用化を促進する観点から、自動車軽量化プロジェクトのなかの高成形性板材グループと一緒に、自動車用板材の開発を目指すほうが効率的であるとの指導を受け、平成16年度からは、高成形性板材のr値向上の研究を支援する形でバークハード性向上のナノアルミ研究を継続することとなった。ただし、計算によるシミュレーションの研究は、鉄系、銅系との材料系を越えた金属材料設計技術の体系的な手法確立のため、ナノメタル技術プロジェクトのなかで、自動車軽量化プロジェクトのナノアルミ研究グループと密接に情報交換をしながら東京工業大学と京都大学が中心となり研究を継続している。

現在は、ナノクラスター・ナノ析出制御、粒界・界面構造制御の実験

結果を再現予測するため、主としてモンテカルロ法を用いて、ナノスケールのクラスター形成、PFZ形成のシミュレーションモデルの開発を行っている(図-4)。

ここでは、平成16年度以降のアルミニウム系の計算によるシミュレーションに関する研究成果の概要を紹介する。

### ナノクラスター・ナノ析出による組織予測シミュレーション

原子間相互作用パラメータの計算範囲を拡張し、第2近接以遠の2体間並びに多体間の相互作用を系統的に評価した。これらは計算機シミュレーションだけでなく、構造安定性の評価にも活用できるデータベースとしても有効である。また、Al-Mg-Si合金をはじめ、種々の3元合金のクラスター形成のシミュレーションが可能となった。さらに、原子間相互作用パラメータの拡張により、これまでは不十分であったクラスター内の溶質濃度を評価できる見通し、及び格子ひずみを考慮したパラメータ評価を可能とし、クラスター安定形状の予測ができる見通しを得ることができた。一方、低温断熱型比熱測定装置により、室温付近でのクラスタ

ー形成の発熱ピークが検出され、活性化過程の解析が可能となった。

現在は、パラメータデータベースとしての拡充を進め、パラメータを活用してクラスターの組織予測、並びにマイクロアロイング元素の含有量の予測。また、これらに対応して種々の合金系のナノクラスター擬平衡状態図を構築。さらに、低温断熱型比熱測定装置により得られるナノクラスター形成にかかわるエネルギー変化の実測値を考慮してシミュレーション手法の高精度化を進めている。

### 粒界構造制御によるシミュレーション

原子間相互作用パラメータの拡充結果を活用し、PFZ形成挙動を計算機シミュレーションするモデルを発展させた。特に、PFZ幅の時間変化のシミュレーションが可能となった。また、種々のマイクロアロイング元素によりPFZ幅が複雑に変化する挙動をシミュレーションできる手法を構築し、さらにPFZ近傍での析出粒子のサイズ分布をシミュレーションするモデルの構築の見通しを得た。

また、本年度は焼入れ過程での溶質枯渇効果を調べた結果、焼入れ中に比較的長範囲の溶質枯渇領域

が形成される場合、その枯渇範囲に対応したPFZが形成されること、また、PFZの位置では溶質濃度が固溶限でもスピノーダル点でもない、温度と濃度勾配で決まる一定の濃度になることを明らかにする等、組織制御に必要なメカニズムについての知見を得ることができた。

現在は、PFZ幅の時間変化を予測できる計算機シミュレーションを系統的に進めている。焼入れ時に空孔濃度や溶質濃度が偏在する

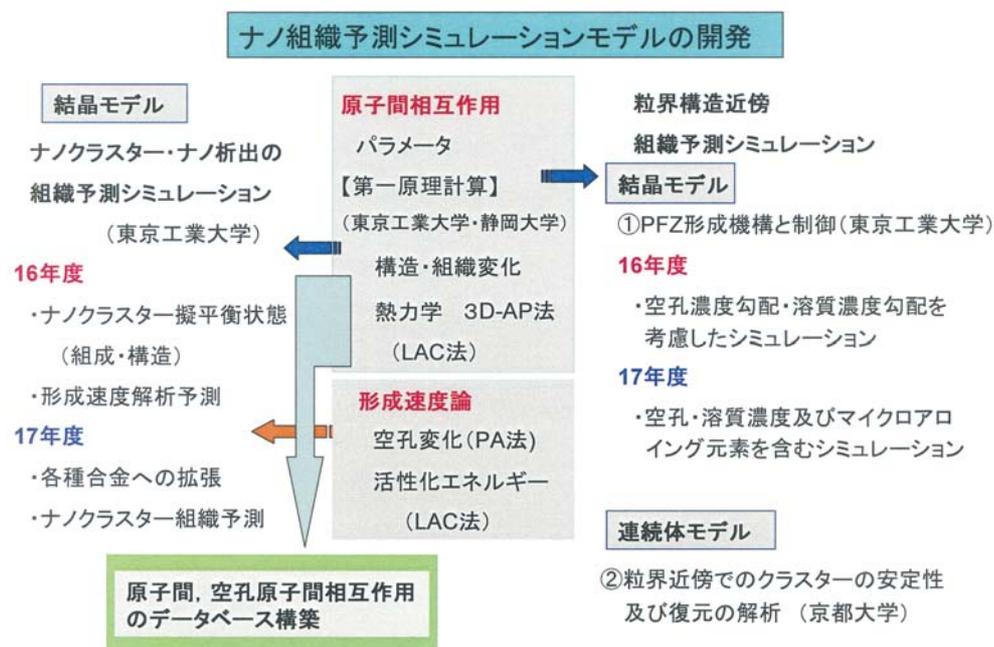


図-4 計算科学(アルミニウム系)開発内容

ことを想定して初期設定条件を変化させ、PFZの時間変化の再現。また、PFZ幅に大きく影響するマイクロアロイング元素の影響について、系統的に予測するモデルの構築を進めている。

## 4 おわりに

JRCMが委託を受けている「実用金属材料分野ナノメタル技術開発」プロジェクトは平成17年度末で終了するた

め、現在研究開発の最終段階にあり、各研究グループともプロジェクト終了期間後の展開を念頭において、最終目標の達成、成果の取りまとめに向けて活動を続けている。

### セミナー案内

#### 第186・187回西山記念技術講座 「表面処理鋼板の技術展開と 防錆機構解明の最前線」

主催：(社)日本鉄鋼協会

第186回

日時：11月9日(水) 9:00～17:00

場所：【神戸】西山記念会館 大ホール  
第187回

日時：11月30日(水) 9:00～17:00

場所：【東京】東京電機大学 7号館  
1階丹羽ホール

問い合わせ先：(社)日本鉄鋼協会

学会・生産技術部門事務局

育成グループ 植田、金子

TEL：03 - 5209 - 7012

FAX：03 - 3257 - 1110

#### 環境技術の研究開発に関する講演会 - CDM運用の現状と今後の方向 -

主催：東京大学大学院工学系研究科マ  
テリアル工学専攻 環境マネジ  
メントセンター

日時：11月16日(水) 13:00～17:30

場所：東京大学山上会館 大会議室

参加費：講演会無料

(意見交換会：5,000円)

定員：150名

問い合わせ先：東京大学

松野泰也助教授

TEL：03 - 5841 - 1194

FAX：03 - 5841 - 1282

The Japan Research and Development Center for Metals  
JRCM NEWS / 第228号

内容に関するご意見、ご質問はJRCM 総務企画部までお寄せください。  
本誌は地球環境保全を考慮し再生紙を使用しています。  
本書の内容を無断で複写・複製・転載することを禁じます。

発行 2005年10月1日

発行人 小島 彰

発行所 財団法人 金属系材料研究開発センター

〒105-0003 東京都港区西新橋一丁目5番11号 第11東洋海事ビル6階

TEL (03) 3592-1282(代) / FAX (03) 3592-1285

ホームページURL <http://www.jrcm.or.jp/>

E-mail [jrcm@oak.ocn.ne.jp](mailto:jrcm@oak.ocn.ne.jp)