

静電引上成長におけるMo線先端部の構造変化

西村 高志^{*, 1}, 松本 乃武^{*}

(2026年3月9日受付; 2026年5月25日受理)

Structural Changes at the Tip of a Molybdenum Wire During Electrostatic-Stress-Driven Pull-up Growth

Takashi NISHIMURA^{*, 1} and Nobu MATSUMOTO^{*}

(Received March 9, 2026; Accepted May 25, 2026)

The structural changes in the tip of a polycrystalline Mo wire were observed using a long-focus microscope whilst applying a high voltage during laser heating. Most regions of the Mo wire tip remained in a softened state below the melting point without melting. The softened Mo repeatedly moved up and down due to electrostatic stress and surface tension. Applying above -24 kV resulted in the formation of a Taylor cone-jet at the tip of the Mo wire. After laser heating at high voltage, the tip of the Mo wire was sharpened. This study clarified the behavior of the Mo wire tip during electrostatic-stress-driven pull-up growth and also demonstrated the potential for sharpening the Mo wire tip.

1. はじめに

金属・半導体融液の流れの電磁力による制御は鉄鋼プロセスや高熔点金属の溶融 casting, CZ 法による Si 単結晶製造に適用されている。ただし多くの場合、電磁力として主に磁場によるローレンツ力が用いられている¹⁾。電場は融液へ電流を通電するために用いられ、静電応力は融液成長の制御へ応用されてこなかった。その大きな理由は静電エネルギーが磁気エネルギーより小さいためである。例えば真空中において静電場 ($E=10$ kV/mm) の静電エネルギーは下記式 (1) のように計算される。

$$\frac{E \cdot D}{2} = 4.4 \times 10^2 \left[\frac{\text{J}}{\text{m}^3} \right] \quad (1)$$

また磁場 ($B=1$ T) の磁気エネルギーは下記式 (2) のように計算される。

$$\frac{H \cdot B}{2} = 4.0 \times 10^5 \left[\frac{\text{J}}{\text{m}^3} \right] \quad (2)$$

つまり静電エネルギーは磁気エネルギーより上記条件では3桁程度小さい。

一方で著者らは金属や半導体融液を凸状にし、そこへ高電界を印加することで、融液が静電応力により引き上げられ、一軸方向に結晶成長する現象 (静電引上成長) を発見し、金属探針の製作への応用を研究している^{2,4)}。これま

で静電引上成長によりシリコン (Si) とチタン (Ti)、白金イリジウム合金 (Pt/Ir) の結晶成長を研究した。金属融液や半導体融液を静電引上成長するためには表面張力より強い静電応力を印加する必要がある。そのため、融液を凸状にして強い電界を集中させる必要がある。Si は凝固すると体積が膨張するため、平坦な Si ウェーハを局所加熱することで融液が凸状になるが、金属融液は凝固すると体積が減少するため、平坦な金属面の局所溶融では凸状の融液は形成できない。そこで著者らは金属線の先端部をレーザー局所加熱することで、その先端部に金属凸融液を形成し、高電圧を印加することで静電引上成長の研究を進めている。

Si (001) ウェーハ上における静電引上成長では基板より Si 融液がエピタキシャル結晶成長し、成長した突起結晶の先端部は (001) 面であった。また、多結晶 Ti 線または多結晶 Pt/Ir 合金線の静電引上成長では先端部がファセット面で囲まれた単結晶グレイン構造を形成した。このような先端部が単結晶のプロープ構造はファセット面稜線の交点を利用し極めて鋭く先鋭化できる。従来、ナノスケールで鋭い金属プロープは高価な単結晶線材を電解研磨法で先鋭化して製造されていたが⁵⁾、表面が酸化膜や電解液で汚染されその除去プロセスが必要であり、真空プロセスとの相性が悪かった。また、電解研磨が難しい化学耐性の強い Pt/Ir 合金線などの貴金属線を先鋭化することは難しかった。静電引上成長法は全て真空プロセスであり製作する探針は汚染が無く、さらに金属材料の種類を選ばずに安価な多結晶線材から先端部がファセット面で囲まれた鋭い構造を形成できる。

一方で静電引上成長のように液体を静電応力で引き上げる手法として液体金属イオン源やエレクトロスプレー法⁶⁾が研究されており、高電圧を印加した液体では Taylor cone

キーワード: 静電引上成長, Mo 探針

^{*} 鈴鹿工業高等専門学校

(〒510-0294 三重県鈴鹿市白子町)

National Institute of Technology, Suzuka College, Shirakomachi, Suzuka-shi, Mie 510-0294, Japan

¹ takashi@elec.suzuka-ct.ac.jp

DOI: <https://doi.org/10.34342/iesj.2026.50.4.146>

が形成し、その先端部から液体がエミッションすることが知られている。本論文では静電引上成長におけるモリブデン (Mo) 線先端部の融液のエミッション現象などの融液挙動を長焦点顕微鏡によりその場観察し研究した。鋭いMoプローブは高融点金属であるために、酸化膜除去に必要な高温加熱プロセスに耐えることができ、走査型トンネル顕微鏡の探針や電子顕微鏡の電子銃として応用されている⁷⁾。走査型トンネル顕微鏡では観察分解能は探針先端部の曲率半径に依存するため、先端が単原子スケールで鋭い探針で高分解能観察が可能となる。電子顕微鏡では電子銃先端が鋭すぎるとクーロン効果により電子銃から放出される電子線が広がってしまうため先端部が数十 nm² のファセット面である電子銃が適している。本論文で議論する静電引上成長におけるMo線先端部の構造変化は、Mo線の先端構造を制御するための基礎データとなりうる。

2. 実験方法

実験系の模式図と光学写真を図1に示した。多結晶Mo線 ($\phi 0.05$ mm, 99.95%, ニラコ社製) は長さ5 mmに切断しアセトンによる超音波洗浄を10分行い脱脂した。その片端を、サンプルホルダに設置したU字型に曲げたタングステン線 ($\phi 0.4$ mm) にスポット溶接して固定し (図1(c)), 研究室で開発したレーザ加熱真空装置 (図1(b)), Base pressure 1×10^{-5} Pa) 内に設置した。Mo線先端部へ円筒形の高電圧電極 (直径10 mm, 厚さ5 mm, SUS304) を距離2.5 mm近づけた。高電圧電極には高電圧電源 (ELS30-30K1PNSK1, エレメント社製) により0 V ~ -27 kVの電圧を印加した。その後、Mo線の先端部をレーザ ($\phi 1.6$ mm) 照射し溶融した。レーザ中心の位置はMo線先端部から0.1 mm下げた (図1(a))。Mo融液の結晶成長過程は長焦点顕微鏡 (UWZ-300F; Union Optical Co., Ltd., Tokyo, Japan) により100 fpsにて観察した。Mo線の加熱に用いたレーザ照射装置 (L13920-511, Hamamatsu Photonics, Hamamatsu, Japan) は940 nmの連続波レーザでトップハット型光束であった。レーザ照射位置をカメラで観察可能な同軸観察光学ユニットを用いて調整した。レーザ強度は0 Wより70 Wまで7 Wステップずつ加熱し、7 W増加するごとに100 msの間レーザ強度を一定にし、70 Wに到達後に0 Wへ下げた。56 Wにレーザ出力が到達した時刻を0 sとした (図2)。レーザの出力制御はシーケンサ (FX3U-32MR/ES, 三菱電機社製) とアナログ制御ユニット (FX3U-4DA-ADP, 三菱電機社製) にて行った。なお、レーザ中心をMo先端部から0.1 mm下げたが、もしレーザ中心とMo先端部が一致して加熱するとMoは70 Wでは軟化または溶融できなかった。そのため、レーザ照射面積を増やすために0.1 mm下げて調

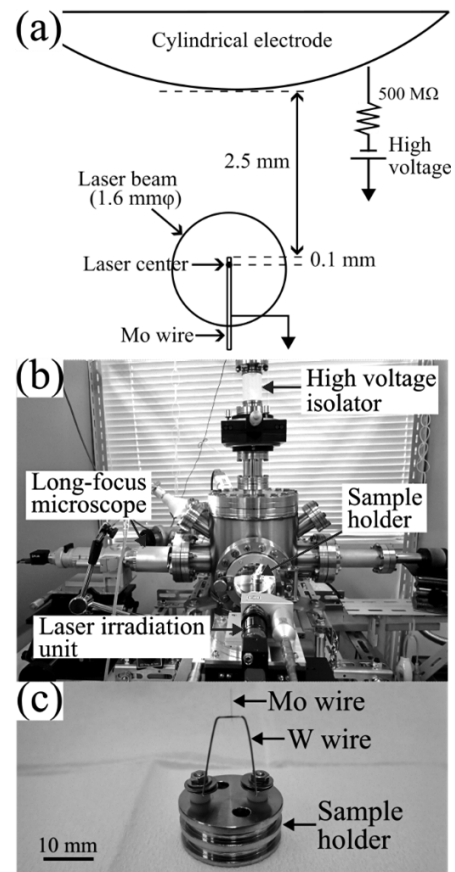


図1 Mo線の静電引上成長のための実験系。(a) 実験系模式図, (b) レーザ加熱真空装置, (c) Mo線固定用のサンプルホルダ

Fig.1 Experimental setup for electrostatic-stress-driven pull-up growth of Mo wires. (a) Schematic diagram of the experimental setup, (b) Vacuum apparatus for laser heating, (c) Sample holder for fixing Mo wires.

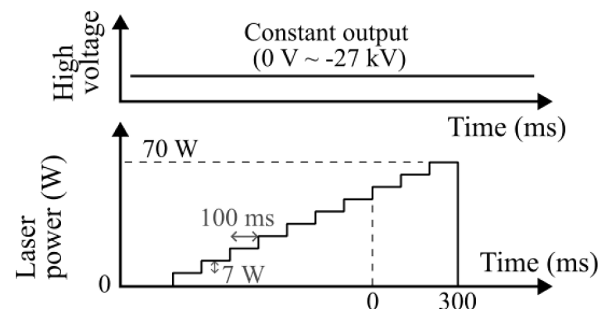


図2 レーザ強度と高電圧の時間変化

Fig.2 Time-dependent variations of the applied high voltage and laser power.

整した。また、円筒形の高電圧電極にはMo線に対して負の高電圧を印加した。正の高電圧を印加するとレーザ加熱時にMo線先端部より熱電子がエミッションし放電するため、この放電を防ぐために本実験では負の高電圧を印加した。

本実験では高電圧電源の電流計 (最小検出電流100 nA) で電流は測定されず、さらに長焦点顕微鏡観察にて放電時に観察される発光現象も観察されなかった。よって静電引

上成長過程では放電は起こっていないと考えるが、上記の手法で観測できない微小な放電が Mo 線先端部で生じていた可能性も考えられる。

3. 実験結果と考察

図 3 に -27 kV を印加したレーザ加熱時の Mo 線先端部の構造変化の長焦点顕微鏡による観察像を示す。レーザ出力は 0 ms では 56 W、210 ms から 300 ms では 70 W、310 ms では 0 W であった。レーザは Mo 線の図 3 右側から照射されており、レーザ径の中心位置を図 3 中の矢印 (Laser center) で示した。また、図 3 の白点線は 0 ms における Mo 線の先端部の位置を示している。0 ms の Mo 線先端部の形状はレーザ加熱前から変化していなかった。

レーザ加熱により Mo が高温になると長焦点顕微鏡による観察像は輝度の大きな白緑色となる。ただし、Mo 熔融領域と、Mo が熔融していない領域の温度が等しい場合、Mo 熔融領域の方が暗く観察される。この原因は Mo 融液と固体 Mo では放射率が違うためである。本実験で使用している長焦点顕微鏡の観察波長は 500 nm 付近であり、この波長付近で融点前後の Mo の放射率は、固体で 0.47、融液で 0.36 である⁸⁾。放射率は固体が熔融すると一気に小さくなるため、Mo は熔融するとその部分は暗く観察される。図 3 では Mo 表面の輝度は 210 ms から 300 ms までほぼ等しかった。一方で、290 ms の Mo 線先端部の矢印 d の領域は暗

く観察された。この観察結果より、レーザ加熱により Mo 線先端部はほとんど熔融しておらず、290 ms の先端部 (矢印 d) に熔融した Mo が引き上げられていることが分かった。

レーザ加熱により Mo 線はほとんど熔融していないことが分かったが、図 3 の矢印 a, b, c, e で示したように Mo 線先端部の形状は変化している。この変化はレーザ加熱により融点より低い温度で軟化した Mo が静電応力や表面張力により変形したことが原因だと考えられる。図 3 では 230 ms までは Mo 線先端部の構造変化はほとんどないが、260 ms ではレーザ照射面が凹み (矢印 a)、270 ms では白点線より上方に Mo が引き上げられ (矢印 b)、280 ms では Mo 線先端部が白点線より引き上げられ丸くなった (矢印 c)。290 ms では Mo は白点線より引き上げられ鋭くなり先端部にて Mo 融液がエミッション (矢印 d) したが、300 ms になると Mo は白点線付近まで下がり丸くなった。310 ms では再び Mo が白点線より上方に引き上げられ鋭くなり、レーザ出力が 0 W のために温度が低下し輝度が低下した。レーザ加熱後に Mo 線先端部が引き上げられた距離 (ΔH) は 12.8 μm であった。以上のように Mo 先端部はレーザ加熱中に上下に繰り返す動き、丸くなったり鋭くなったり形状が変化していた。

図 4 に -27 kV を印加したレーザ加熱時の Mo 線先端部の 290 ms における長焦点顕微鏡の拡大像を示した。図 4 の矢印 a で示した領域は輝度が大きく白緑色の像であり、Mo は熔融しておらず軟化した状態と考えられる。この軟化 Mo の先端曲率半径 (r) は 14.2 μm であり、先端曲率半径を測定した円は図 4 中の黒点円で示した。また、図 4 において矢印 b と矢印 c で示した黒緑色の領域は熔融した Mo と考えられる。矢印 b で示した領域は白点線で示したコーン形状となっており、その先端の角度は 96.2° であった。液体金属イオン源 (LMIS) において、タングステン探針先端部をガリウム (Ga) で濡らし高電圧を印加すると、

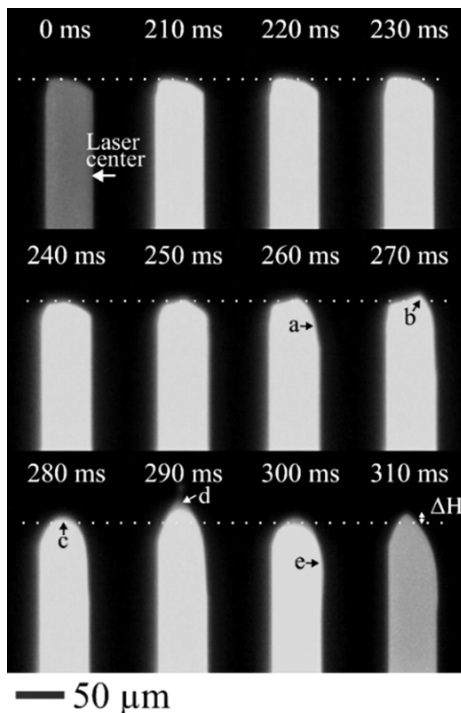


図 3 -27 kV を印加したレーザ加熱時の Mo 線先端部の構造変化の長焦点顕微鏡像

Fig.3 Sequential in-situ optical microscopy images of structural changes at the tip of Mo wire during laser heating with -27 kV.

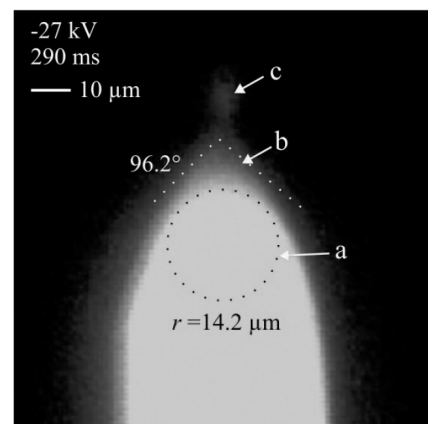


図 4 -27 kV を印加したレーザ加熱時の Mo 線先端部の 290 ms における長焦点顕微鏡の拡大像

Fig.4 In-situ optical microscopy images at the tip of Mo wire during laser heating with -27 kV at 290 ms.

液体 Ga が静電応力により引き上げられ、液体 Ga の表面張力と静電応力がバランスすることで 98.6° のコーンが形成することが知られており Taylor cone と呼ばれる⁹⁾。図 4 の先端部の Mo 融液の角度 96.2° は Taylor cone 98.6° に近い。ため、Mo 線先端部では Taylor cone が形成されていたと推測される。図 4 矢印 c で示した Mo 融液は Taylor cone の先端部から放出されていた。このような融液の放出は Taylor cone-jet と呼ばれ⁶⁾、Mo 線先端部の Taylor cone の先端部からも Taylor cone-jet が生じていたと推測される。

レーザの最大出力を 70 W より強くすると、Mo 線先端部の軟化領域（図 4 矢印 a）が広く溶融し、先端部が表面張力により丸くなり、自重により下方へ落下する傾向がある。本研究では LMIS⁹⁾ のように線材表面を薄く溶融し、その融液を静電応力で引き上げ先鋭化する手法を検討する。そのために Mo 線先端を広く溶融せずに軟化に止め、その最先端部で融液が引き上げられる程度にレーザ強度を調整している。

本実験では高電圧 0 kV, -6 kV, -12 kV, -15 kV, -18 kV, -21 kV, -24 kV, -27 kV をそれぞれ高電圧電極へ印加し、Mo 線先端部のレーザ加熱時の挙動を観察した。Taylor cone-jet の形成は -24 kV と -27 kV でそれぞれ観察された。また、Mo の引上距離が $\Delta H > 0$ となる電圧は -12 kV 以上であった。

高電界を印加した Mo 線先端部には静電応力 (P_E) と表面張力 (P_σ) が生じていると推測される。Mo 線の先端部を半径 r の半球と仮定すると P_E と P_σ は次の式で計算される¹⁰⁾。

$$P_E = \frac{1}{2} \epsilon_0 E^2 \left[\frac{\text{N}}{\text{m}^2} \right] \quad (3)$$

$$P_\sigma = \frac{2T}{r} \left[\frac{\text{N}}{\text{m}^2} \right] \quad (4)$$

E は Mo 線先端部へ印加される電界強度、 ϵ_0 は真空の誘電率である。また T は表面張力、 r は先端部の先端曲率半径である。 r を Mo 線の半径 $25 \mu\text{m}$ とし、 T を Mo の融点付近の値 2.29 N/m 、 E を電界計算ソフト（HiPhi, Field Precision LLC, New Mexico, USA）にて計算した。その結果、 $P_E = P_\sigma$ となる電圧は -8.1 kV であった。

本実験系ではレーザで軟化した Mo には P_E と P_σ が生じている。そのため Mo を静電応力により引き上げる閾値電圧は $P_E = P_\sigma$ となる電圧（-8.1 kV）であると考えられる。よって本実験において -12 kV 以上の印加電圧で Mo が引き上げられ $\Delta H > 0$ となったと推測される。また、軟化 Mo 表面で溶融した Mo 融液が Mo 線先端部へ静電応力により引き上げられ、Taylor cone を形成し、-24 kV 以上では Taylor cone-jet が生じていた。Mo 先端部の軟化 Mo には引き上げる方向に P_E が、引き下げる方向に P_σ が生じていたため、図 3 で示したように軟化 Mo が上下に繰り返し動き、

丸くなったり鋭くなったり形状が変化していたと考えられる。

4. まとめ

本論文では多結晶 Mo 線の先端部をレーザ加熱しつつ高電圧を印加したときの、Mo 線先端部の構造変化を長焦点顕微鏡により観察した。Mo 線先端部のほとんどの領域では溶融せずに融点以下の軟化状態であった。軟化 Mo は静電応力と表面張力により上下に繰り返し動き、-24 kV 以上を印加すると Mo 線の最先端部で Mo 融液が静電応力により引き上げられ Taylor cone や Taylor cone-jet が形成した。レーザ加熱後は Mo 線の先端部は先鋭化されていた。本研究により静電引上成長時の Mo 線先端部の挙動が明らかにになり、Mo 線の先鋭化の可能性も示すことができた。

謝辞

本研究は JKA KEIRIN RACE（grant no. 2024M-421）と JSPS 科研費（25K08497）より助成を受けて実施した。

参考文献

- (1) (社)日本鉄鋼協会：材料電磁プロセッシング，p. 80，東北大学出版会（1999）
- (2) T. Nishimura and N. Matsumoto: Fabrication of Pt/Ir Probe by Electrostatic Stress-driven Pull-up Crystal Growth. *J. Inst. Electrostat. Jpn.*, **50** (2026) 26
- (3) T. Nishimura: Electrostatic stress-driven pull-up growth of molten Titanium via laser irradiation. *Jpn. J. Appl. Phys.*, **64** (2025) 055506
- (4) T. Nishimura: Electromagnetic force-driven pull-up growth of surface-melted silicon by laser irradiation and resistive heating current. *Jpn. J. Appl. Phys.*, **64** (2025) 035502
- (5) T. Nishimura, A. M.-A. Hassan and M. Tomitori: Electrochemical etching of metal wires in low-stress electric contact using a liquid metal electrode to fabricate tips for scanning tunneling microscopy. *Appl. Surf. Sci.*, **284** (2013) 715
- (6) A. M. G. Calvo, J. M. L. Herrera, M. A. Herrada, A. Ramos and J. M. Montanero: Review on the physics of electrospray: From electrokinetics to the operating conditions of single and coaxial Taylor cone-jets, and AC electrospray. *J. Aerosol Sci.*, **125** (2018) 32
- (7) P. Carrozzo, F. Tumino, A. Facibeni, M. Passoni, C. S. Casari and A. Li Bassi: Fabrication and characterization of molybdenum tips for scanning tunneling microscopy and spectroscopy. *Rev. Sci. Instrum.*, **86** (2015) 016112
- (8) C. Cagran, G. Pottlacher, M. Rink and W. Bauer: Spectral Emissivities and Emissivity X-Points of Pure Molybdenum and Tungsten. *Int. J. Thermophys.*, **26** (2005) 1001
- (9) L. Bischoff, P. Mazarov, L. Bruchhaus and J. Gierak: Liquid metal alloy ion sources-An alternative for focussed ion beam technology. *Appl. Phys. Rev.*, **3** (2016) 021101
- (10) P. Lozano, M. M. Sánchez and J. M. L. Urdiales: Electrospray emission from nonwetting flat dielectric surfaces. *J. Colloid Interface Sci.*, **276** (2004) 392