

(独) 科学技術振興機構
戦略的創造研究推進事業
チーム型研究 (CREST)
追跡評価用資料

研究領域「高度情報処理・通信の実現に向
けたナノファクトリーとプロセス観測」
(2002 - 2007年度)

研究総括 蒲生 健次

2013 年 10 月

目次

要旨	1
第1章 追跡調査概要.....	5
1.1 研究領域概要.....	5
1.1.1 戦略目標.....	5
1.1.2 研究領域概要.....	5
1.1.3 研究総括.....	5
1.1.4 領域アドバイザー.....	5
1.1.5 研究課題および研究代表者.....	5
1.2 研究領域終了後の進展と波及効果.....	7
1.2.1 研究成果の発展状況や活用状況.....	7
1.2.2 研究成果の科学技術的および社会・経済的な波及効果.....	8
第2章 追跡調査	13
2.1 追跡調査について.....	13
2.1.1 調査の目的.....	13
2.1.2 調査の対象.....	13
2.1.3 調査の方法.....	13
2.2 アウトプット概要.....	15
2.2.1 研究助成金.....	15
2.2.2 論文	18
2.2.3 特許	20
2.3 アウトカム.....	26
2.3.1 科学技術的アウトカム.....	26
2.3.2 社会・経済的アウトカム.....	26
第3章 各研究課題の主な研究成果および波及効果.....	29
3.1 2002 年度採択課題	29
3.1.1 カーボンナノ材料を用いた量子ナノデバイスプロセスの研究（石橋 幸治）	29
3.1.2 超高密度・超微細ナノドット形成とナノ物性評価技術（市川 昌和）	34
3.1.3 高信頼性ナノ相分離構造テンプレートの創製（彌田 智一）	38
3.1.4 超高速・超並列ナノメカニクス（川勝 英樹）	42
3.1.5 位相差極端紫外光顕微鏡による機能性材料表面観察・計測技術（木下 博雄）	45
3.1.6 ナノ構造解析のための立体原子顕微鏡の開発（大門 寛）	49
3.1.7 高機能ナノ立体構造デバイス・プロセス（松井 真二）	53
3.2 2003 年度採択課題	58
3.2.1 カーボンナノチューブ形成過程その場観察と物性制御への展開（本間 芳和）	58

第4章 科学技術イノベーションに資する研究成果の状況.....	63
4.1 研究領域からの研究成果事例.....	63
4.1.1 位相差極端紫外光顕微鏡による機能性材料表面観察・計測技術（木下博雄）	63
4.1.2 高機能ナノ立体構造デバイス・プロセス（松井真二）.....	66
4.1.3 カーボンナノチューブ形成過程その場観察と物性制御への展開（本間芳和）	70
4.2 外部有識者からの所見等.....	73
4.3 まとめ.....	74

要旨

本資料は、戦略的創造研究推進事業のチーム型研究 CREST の研究領域「高度情報処理・通信の実現に向けたナノファクトリーとプロセス観測」（2002-2007 年）において、研究終了後一定期間を経過した後、副次的効果を含めて研究成果の発展状況や活用状況等を明らかにし、独立行政法人科学技術振興機構(JST)事業及び事業運営の改善等に資するために、追跡調査実施した結果をまとめたものである。

第 1 章では、本研究領域終了後の進展と波及効果についてまとめた。

まず、本研究領域の研究成果の発展状況や活用状況については、各研究代表者とも、本プロジェクトの「研究のねらい」を継続して追求し、本研究領域の成果の発展と活用を図り、多くの成果を挙げている。

次いで、研究成果の科学技術の進歩への貢献については、本研究領域の戦略目標である新しいナノデバイス・材料・システムの創製につながる可能性のある新知見が得られている。特に、インパクトがある成果としては、石橋の「グラフェンから結合量子ドット素子の作製」および「カーボンナノチューブを用いた量子ナノデバイスの開発」、木下の「高次高調波 EUV（極端紫外線）コヒーレントスキャトロメトリー顕微鏡の開発」、本間の「単層カーボンナノチューブ光物性の解析」、松井の「高スループットナノインプリントリソグラフィ技術の開発」、彌田の「垂直配向ナノシリンダーアレイをテンプレートに用いた転写・複合化プロセスの開発」などが挙げられる。

研究成果の社会・経済的波及効果については、特筆すべき波及効果として木下が長年実用化に向けて牽引してきた「極端紫外線リソグラフィ量産化への適用」が 2013 年に実現の見込みがあることである。同時に、木下が開発した「位相差極端紫外線顕微鏡システム」、「高次高調波 EUV コヒーレントスキャトロメトリー顕微鏡」、「極端紫外線リソグラフィ用レジスト」なども実用化の可能性がある。波及効果が期待される成果として、松井の「ナノ立体構造の形成ができる高速集束イオンビーム装置の市販の実現」、大門の「ゲーム機ニンテンドー 3DS を使って原子構造の立体画像の体験の実現」、「広角対物レンズや回転楕円体メッシュレンズ二次元表示型分析計の実用化の推進」、川勝の「原子分解能液中原子間力顕微鏡および超高真空透過電子顕微鏡内走査型力顕微鏡の実用化の推進」、彌田の「垂直配向ナノシリンダーアレイをテンプレートに実用化の推進」、「高分子ミクロ相分離膜を用いたフィルターの開発」、石橋の「CNT 単電子トランジスタを利用した新規テラヘルツ波検出機構の発明」、本間の「ダイヤモンド微小ナノ粒子を触媒に用いた高純度カーボンナノチューブの成長」などが挙げられる。

第 2 章では、8 名の研究代表者を対象にして本研究領域終了後の動向を把握するため、「研究助成金獲得」、「原著論文発表」、「特許出願」、「受賞」、「報道」について追跡調査した結果を、主として表にまとめて示した。

研究助成金の獲得、および研究助成金による研究の発展状況については、各研究代表者とも研究助成金を獲得して、研究の進展を図っている。大型の助成金の獲得としては、彌田（ERATO、科研費基盤研究（S））、松井（CREST、科研費新学術領域研究）、木下（CREST）、

石橋（科研費特定領域研究、科研費基盤研究（S））、本間（科研費特定領域研究）、大門（科研費基盤研究（S）、科研費基盤研究（A））、川勝（科研費基盤研究（A））が挙げられる。なお、上記の各助成金による研究発展の概要も示した。

原著論文の発表状況については、本研究領域期間中の研究代表者の論文数は228報である。本研究領域終了後の研究代表者の論文数は254報であり、本研究領域期間中の論文数と同等以上であることから、本研究領域終了後も本期研究領域間中と同様に研究が活発に推進されたと推測される。なお、各研究代表者別に見ると松井124報（うち期間終了後80報）、石橋71報（うち期間終了後33報）、大門65報（うち期間終了後32報）の順である。

特許出願状況については、本研究領域期間中の研究代表者の出願数は46件（国内出願28件、国際出願18件）であり、国際出願の比率が約40%と高い。本研究領域終了後の出願数は28件（国内出願23件、国際出願5件）と減少している。本研究領域期間中の出願の特許登録件数は、国内特許登録件数22件、海外特許登録件数が31件と非常に多く大きな成果と考えられる。全期間を通じての特許の登録件数について、各研究代表者別に見ると、川勝23件（国内6件、海外17件）、彌田11件（国内4件、海外7件）、松井10件（国内5件、海外5件）の順である。

受賞については、本研究領域の研究成果を含む優れた業績に対して十数件の受賞があった。主な受賞として山崎貞一賞（木下）、市村学術賞（川勝）、文部科学大臣表彰科学技術賞（大門、木下）、高分子学会学会賞（彌田）、日本表面科学会学会賞（本間、大門）などが挙げられる。学会への貢献に関しては、応用物理学会フェロー表彰（松井、木下、本間）、日本表面科学会フェロー表彰（本間）が挙げられる。

報道、社会活動については、ゲーム機「ニンテンドー3DS」を使って原子構造の立体画像を見ることができる技術を開発して、グラファイト結晶などの画像をホームページから無料でダウンロードできるようにした（大門）ことは、一般の人々のナノテクノロジーへの興味と理解の増進に寄与した。他に、「グラフェンを用いた結合量子ドット素子」、「カーボンナノチューブ用いた超高感度テラヘルツ波センサ」（石橋）、「ブロックコポリママイクロ相分離膜を利用したフィルターやナノ立体配線」（彌田）、「ダイヤモンド微粒子を触媒としたカーボンナノチューブの成長」（本間）などの報道があった。

第3章では、各研究課題について主な研究成果と波及効果についてまとめた。本研究領域期間中の達成状況については、研究終了報告書および研究領域事後評価書をベースにして、「研究のねらい」、「主な研究成果」、「主な成果論文3報のリスト」にまとめた。本研究領域終了後の継続と発展状況については、追跡調査結果をベースにして、「科学技術進歩への貢献」、「社会・経済波及効果」、「主な成果論文4報のリスト」等にまとめた。

各研究代表者別の本プロジェクト終了後の主な研究成果は下記の通りである。なお、特に顕著な成果については、第1章の要旨に記載した。

石橋：「CNT（カーボンナノチューブ）を用いた量子ナノデバイスの開発」、「グラフェンから結合量子ドット素子の作製」、「CNTを利用した新規テラヘルツ波検出技術の開発」

市川：「Si基板上への薄膜形成法の開発」、「Si基板上へのFe₃Siナノドット形成技術の開発」、「ブロック共重合薄膜テンプレートを応用した規則配列ナノドットの形成技術の開発」

彌田：「高分子マイクロ相分離構造形成プロセスのダイナミクスの解析」、「単細胞微細藻類をテンプレートとする電磁波応答材料の開発」、「垂直配向ナノシリンダーアレイをテンプレートに用いた転写・複合化プロセスの開発と規則配列ナノ構造体の作製」、「ナノテンプレートの利用による超集積材料の創出」

川勝：「原子分解能液中原子間力顕微鏡の完成度の向上」、「超高真空透過電子顕微鏡内走査型力顕微鏡の完成」

木下：「高次高調波極端紫外線コヒーレントスキャトロメトリー顕微鏡の開発」、「線幅20nm以下のレジストパターン形成のためのEUV干渉露光系の開発」、「EUVリソグラフィ用レジストの開発」

大門：「立体光電子顕微鏡の完成度の向上」、「楢円メッシュ二次元分析器の完成」、「光電子ホログラフィーの完成度の向上」

松井：「集束イオンビームによるバイオナノツールの作製と評価」、「立体ナノ構造をモールドとしたナノインプリント複製転写技術の開発」、「ナノインプリントによる光反応性高分子液晶へのL&Sパターン転写と配向制御技術の開発」、「高スループットナノインプリントリソグラフィ技術の開発」

本間：「機能性カーボンナノチューブの光物性解析」、「固体ナノ粒子を触媒に用いたSWNTの成長技術の開発と成長機構の解明」

第4章では、追跡調査時点において、科学技術イノベーション創出に資する展開をしていると思われる事例について、3名の研究代表者にインタビューをして伺った本研究領域及びその後の研究活動の成果の科学技術及び社会経済への波及と展望について、1名の外部有識者にインタビューして伺った外部から見た観点も取り入れてまとめた。

近い将来に実用化が期待される波及効果の非常に大きい成果としては、EUVマスク検査技術およびレジスト材料技術が挙げられる。これらの技術はEUVリソグラフィ実用化のための基盤技術としてNEDOプロジェクトに採択されて、半導体分野の関連企業からなるコンソーシアムであるEIDECと共同で実用化開発が推進されており、イノベーション（実用化目標達成）への期待も大きく、高く評価されている。

上記に次ぐ近い将来に実用化が期待される波及効果の非常に大きい成果としては、PFP（ペンタフルオロプロパン）ガスを用いる高スループットナノインプリントリソグラフィ技術が挙げられる。ナノインプリントリソグラフィ技術を半導体リソグラフィに適用するためには必須とされていて現在開発が進められている欠陥の改善に成功すれば、有力な技術になることが期待される。

科学技術のブレークスルーとして大きな波及効果が期待される成果としては、本研究領域で成長技術を確立した架橋CNTを試料に用いることによりCNT表面には大気中では水分子の2層の吸着層があることを世界で初めて発見したことが挙げられる。この発見は、実環境における実表面科学として従来の超高真空中で観察されたクリーンな表面科学に対する大きなブレークスルーであり、多くの分野の表面科学への波及が期待される。

また、CNT形成過程のその場観察はCNT成長メカニズムの解明につながると共に、電顕メーカーと共同開発した環境制御型TEM（ETEM）が世界的に普及したこともあり、ETEMによる原子分解能でのその場観察手法がナノカーボン分野および他の分野にも波及している

ことも科学技術のブレークスルーとして挙げられる。

小規模ではあるが実用化が始まっていて今後の進展が期待される成果としては、FIB-CVD (Focused-Ion-Beam Chemical-Vapor-Deposition) によるナノ立体構造形成技術が挙げられる。表面粗さ・輪郭形状測定機のプローブ針や細胞採取ナノツールなどへの実用化が始まっており、今後ナノバイオナノツール等への進展が期待される。

以上のように、本研究領域終了後も研究領域の戦略目標である「情報処理・通信における集積・機能限界の克服実現のためのナノデバイス・材料・システムの創製」に向かって活発な研究活動が進められており、今後のさらなる発展と本研究領域およびその後の研究で得られた多くの成果が実用化に結びつく可能性がある。

第1章 追跡調査概要

1.1 研究領域概要

1.1.1 戦略目標

情報処理・通信における集積・機能限界の克服実現のためのナノデバイス・材料・システムの創製

1.1.2 研究領域概要

この研究領域は、高度情報処理・通信に資するナノデバイス等の実現に向けた新しいプロセス技術、ナノ構造体の機能を観察・計測・評価する新しい計測評価技術等に係わる研究を対象とする。なお、本研究領域は戦略目標「非侵襲性医療システムの実現のためのナノバイオテクノロジーを活用した機能性材料・システムの創製」および「環境負荷を最大限に低減する環境保全・エネルギー高度利用の実現のためのナノ材料・システムの創製」にも資するものとなる。

新たなプロセス技術の確立に向けた、ナノ構造を作り出す光・X線・電子ビーム・イオンビーム等の新たな活用に係わる研究、分子・原子を制御することにより結晶・組織等をナノレベルで形成する技術に係わる研究、および、構築されたナノ構造体の機能を計測・評価、検証する技術に係わる研究等が含まれる。

1.1.3 研究総括

蒲生 健次（大阪大学 名誉教授／（独）情報通信研究機構関西先端研究センター 専攻研究員）

1.1.4 領域アドバイザー

表 1-1 領域アドバイザー

領域アドバイザー	所属	役職	任期
青柳 克信	立命館大学	招聘教授	2002 年 7 月～2008 年 3 月
石原 直	東京大学	教授	2002 年 7 月～2008 年 3 月
大泊 巖	早稲田大学	教授	2002 年 7 月～2008 年 3 月
小川 正毅	名古屋大学	教授	2002 年 7 月～2008 年 3 月
古室 昌徳	(独)新エネルギー・産業技術総合開発機構	プログラマ ネジャー	2002 年 7 月～2008 年 3 月
志水 隆一	国際高等研究所	上席研究員	2002 年 7 月～2008 年 3 月

（註）所属と役職は本研究領域 終了時点

1.1.5 研究課題および研究代表者

研究課題(研究者)は2002年度から2年間、2期にわたり公募して、総計8件を採択した。表 1-2 に各期の研究課題、研究代表者、採択当時の所属機関と役職、終了時の所属と役職ならびに現在の所属と役職を示した。

表 1-2 研究課題と研究代表者

採択 年度	研究課題	研究代表者	採択時の所属・役職	終了時の所属・役職	追跡調査時の所属・役職
2002 年度	カーボンナノ材 料を用いた量子 ナノデバイスプ ロセスの研究	石橋 幸治	(独) 理化学研究所半 導体工学研究室 主任 研究員	(独) 理化学研究所 石橋極 微デバイス工学研究室 主 任研究員	(独) 理化学研究所 基幹研究 所 石橋極微デバイス工学研 究室 主任研究員
2002 年度	超高密度・超微細 ナノドット形成 とナノ物性評価 技術	市川 昌和	東京大学大学院工学系 研究科 教授	東京大学大学院工学系研究 科 教授	東京大学大学院工学系研究科 上席研究員
2002 年度	高信頼性ナノ相 分離構造テンプ レートの創製	彌田 智一	東京工業大学資源化学 研究所 教授	東京工業大学資源化学研究 所 教授	東京工業大学資源科学研究所 集積分子工学部門 教授
2002 年度	超高速・超並列ナ ノメカニクス	川勝 英樹	東京大学生産技術研究 所 助教授	東京大学大学院工学系研究 科 教授	東京大学大学院工学系研究科 精密工学専攻 教授
2002 年度	位相差極端紫外 光顕微鏡による 機能性材料表面 観察・計測技術	木下 博雄	姫路工業大学 高度産 業科学技術研究所 教 授	兵庫県立大学 高度産業科 学技術研究所 教授	兵庫県立大学 高度産業科学 技術研究所 教授
2002 年度	ナノ構造解析の ための立体原子 顕微鏡の開発	大門 寛	奈良先端科学技術大学 院大学 物質創成科学 研究科 教授	奈良先端科学技術大学院大 学 物質創成科学研究科 教 授	奈良先端科学技術大学院大学 凝縮系物性学研究室 教授
2002 年度	高機能ナノ立体 構造デバイス・プ ロセス	松井 真二	姫路工業大学 高度産 業科学技術研究所 教 授	兵庫県立大学 高度産業科 学技術研究所 教授	兵庫県立大学 高度産業科学 技術研究所 教授
2003 年度	カーボンナノチ ューブ形成過程 その場観察と物 性制御への展開	本間 芳和	NTT 物性科学基礎研究 所 グループリーダー	東京理科大学理学部 教授	東京理科大学理学部 物理学 科 教授

1.2 研究領域終了後の進展と波及効果

1.2.1 研究成果の発展状況や活用状況

本研究領域終了後も、主として大型の研究助成金により本研究領域の成果の発展と活用が図られ、本研究領域の戦略目標である「情報処理・通信における集積・機能限界の克服実現のためのナノデバイス・材料・システムの創製」が継続して推進されている。個々の研究代表者については、以下に示すとおりである。

石橋は、成果を「CNT 量子ナノデバイスの集積化技術」、「CNT・分子ヘテロ構造を用いた分子スケールナノ構造の作製技術」、「グラフェンから結合量子ドット素子の作製技術」などの開発に発展させた。同時に、成果を活用して「CNT 単電子トランジスタを利用した新規テラヘルツ波検出技術」を開発した。

市川は、成果を「Si 基板上への薄膜形成法」、「Si 基板上への Fe_3Si ナノドット形成技術」などの開発に発展させた。また、彌田チームの成果も合わせて「ブロック共重合薄膜テンプレートを応用した規則配列ナノドットの形成技術」の開発に活用した。

彌田は、成果を「高分子マイクロ相分離構造形成プロセスのダイナミクスの解析」、「集束イオンビームによるバイオナノツールの作製と評価」、「ナノテンプレートの利用による超集積材料の創出」などに発展させた。同時に、成果を「垂直配向ナノシリンダーアレイをテンプレートに用いた転写・複合化プロセスの開発」に活用し、多くの規則配列ナノ構造体作製プロセスを開発した。

川勝は、成果を「原子分解能液中原子間力顕微鏡」、「超高真空透過電子顕微鏡内走査型力顕微鏡」などの完成度向上に発展させた。同時に、「原子分解能液中原子間力顕微鏡および超高真空透過電子顕微鏡内走査型力顕微鏡」の実用化を推進した。

木下は、成果を「高次高調波 EUV コヒーレントスキャトロメトリー顕微鏡」、「線幅 20nm 以下のレジストパターン形成のための EUV 干渉露光系」、「高分解能・高感度・アウトガスの少ないレジスト」などの開発に発展させた。さらに、これらの開発成果と本プロジェクトの成果を含めた EUV マスク検査技術及び EUV レジスト材料技術について実用化開発を関連企業のコンソーシアムと共同で推進中であり、近い将来に実用化が実現する可能性がある。

大門は、成果を「立体光電子顕微鏡」、「楕円メッシュ二次元分析器」、「光電子ホログラフィー」などの完成度の向上に発展させた。同時に、成果を活用した「広角対物レンズ」や「回転楕円体メッシュレンズ二次元表示型分析器」の実用化を推進した。また、ゲーム機「ニンテンドー3DS」を使って原子構造の立体画像を見ることができる技術を開発し、グラフィック結晶などの画像をホームページから無料でダウンロードできるようにして、一般の人々が原子構造の立体画像を体験できるようにした。

松井は、成果を「集束イオンビーム 3 次元ナノ構造形成によるバイオナノツールの作製と評価」や「FIB-CVD による立体ナノ構造をモールドとしたナノインプリント複製転写技術」、「ナノインプリントによる光反応性高分子液晶への L&S パターン転写と配向制御技術」、「高スループットナノインプリントリソグラフィ技術」などの開発へ発展させた。また、成果を活用した「ナノ立体構造形成に使える高速集束イオンビーム装置」及び「ナノインプリント装置」が市販された。

本間は、成果を「機能性カーボンナノチューブの光物性評価：単層カーボンナノチューブ

ブ（SWNT）の発光に対する吸着分子や内包物質の効果の解析」、「固体ナノ粒子を触媒に用いた SWNT の成長技術の開発と成長機構の解明」などへ発展させ、分子吸着を利用した SWNT の光学特性制御の可能性を見出すなど SWNT をナノデバイスへ応用するための基本的な技術・知見を深めた。さらに、大気中の CNT 表面に 2 層の水分子の吸着層が存在することを発見し、CNT 表面科学のブレークスルーに結びつけた。

1.2.2 研究成果の科学技術的および社会・経済的な波及効果

(1) 科学技術の進歩への貢献

特に、新しいナノデバイス・材料・システムの創製につながる可能性のあるインパクトの大きい科学技術の進歩への貢献としては、下記のものが挙げられる。

①グラフェンから結合量子ドット素子の作製と新機能ナノエレクトロニクスの実現の可能性（石橋）

グラフェンから 2 つの近接した量子ドットと電気伝導を制御する電極などのデバイス構造を作製した。量子ドットの中に電子が 1 個ずつ入る単一電子デバイス動作の実証と量子ドット間の電子の結合をグラフェンゲート電極によって変化させることに成功し、最も基本的な集積化ナノデバイスである結合量子ドット素子を実現した。これにより、グラフェンを用いた単電子エレクトロニクスや量子コンピュータなどの新機能ナノエレクトロニクスのデバイス実現の可能性を示した。

②CNT を用いた量子ナノデバイスの開発：量子ナノデバイス集積化技術の開発、および CNT・分子ヘテロ構造を用いた分子スケールナノ構造の作製（石橋）

CNT の他基板への貼り付け技術の開発を行い、貼り付けた CNT を用いて作製した単電子トランジスタ（SET）で単一量子ドットの形成を示す結果が得られ、量子ナノデバイス集積化技術が開発できた。また、CNT の両端を化学修飾し、その両端を化学結合してリング構造を作製した。電子状態を調べた結果、金属的な CNT がリング構造になることによりバンドギャップが形成されたことが確認でき、CNT のナノ構造を分子スケールナノデバイスへ発展させる可能性を示すことに成功した。

③高次高調波 EUV コヒーレントスキャトロメトリー顕微鏡の開発によりサブナノ精度のパタン寸法計測および露光用マスク欠陥観察技術を構築（木下）

スキャトロメトリー（CSM）顕微鏡の開発と高出力フェムト秒レーザを用いた高出力の高次高調波発生器の開発とを行い、両装置の融合により「高次高調波 EUV コヒーレントスキャトロメトリー顕微鏡」を完成した。L/S パタン中の線欠陥検出限界を、放射光 CSM の検出限界が 10nm であったのを、本装置により 2nm まで大幅に向上することに成功した。本技術は、光学の原理原則で散乱をコンピュータで処理することでレンズを使わなくても微細欠陥を検知できる世界初の革新的な技術と考えられる。

④単層カーボンナノチューブ（SWNT）光物性の解析：発光に対する吸着物質や内包物質の効果の解析と分子吸着を利用した SWNT 光学特性制御の可能性（本間）

酸化により先端を開いた SWNT を用い、水分子やエタノール分子の吸着に伴う SWNT の光学遷移エネルギーの変化が、チューブの外だけでなくチューブの内側への吸着においても現れること、および吸着位置がチューブの内か外かに依存して光学遷移エネルギーのシフト量が異なることを見出した。さらに、水を内包した SWNT について、水の相（固・液・気）に応じた誘電率の変化により、SWNT の励起・発光波長がシフトすることなども明らかにし、分子吸着を利用した SWNT 光学特性制御の可能性を見出した。

⑤大気中の CNT 表面に 2 層の水分子の吸着層の存在を発見（本間）

通説では CNT は疎水性とされていたが、大気中で CNT 表面に水分子の吸着が観測される。水分子が吸着しているのに疎水性であることは一見矛盾するように思われるが、この不思議な現象を解明することができた。水分子は、CNT 表面の分子間力ポテンシャルの谷間にトラップされるが、水分子同士が CNT の表面に沿って水素結合を作って平面的な分子厚みの吸着層を形成する。吸着層は 2 層まで増加するが、外向きの水素結合がほとんどないため水の 2 重層となって完結する。そのため CNT の表面は水で薄く濡れているにも関わらず疎水性となる。超高真空中での観察と水が吸着した大気中での観察結果の違いは、実表面が汚れているためと考えられていたが、実際は水分子が存在していることが証明できた。本成果は、実環境における実表面科学として従来の超高真空中で観察されたクリーンな表面科学に対するブレークスルーと考えられる。

⑥高スループットナノインプリントリソグラフィ技術の開発と 23nm ラインパタンの形成（松井）

ナノインプリントの高スループット化を目標に、UV ナノインプリントプロセスにおいて、繰り返しナノインプリントを行う際に必須となる離型性の向上と樹脂の高速充填を可能とする技術として、凝縮性ガス（ペンタフルオロプロパン：PFP）雰囲気中でのナノインプリント技術を開発した。さらに、樹脂が PFP を吸収しやすいと硬化収縮が大きくなり成形樹脂表面が粗くなることから、PFP を吸収しにくいラジカル重合型アクリレート系光硬化性樹脂を開発し、23nm ラインパタンの形成に成功した。

⑦垂直配向ナノシリンダーアレイをテンプレートに用いた転写・複合化プロセスの開発（彌田）

垂直配向 PEO（ポリエチレンオキシド）ナノシリンダーアレイをテンプレートに用いて、PEO ナノシリンダーを選択的にドーピングするプロセスによりシリカナノピラー配列体や金・銀・鉛・酸化鉄・RuO_x などのナノ微粒子配列体の作製、PEO ナノシリンダーを反応の場とするプロセスによりシリンダー形状の導電性高分子アレイの作製、PEO ナノシリンダーをエッチングマスクとして用いるプロセスによりシリコンウエハ表面への規則配列ピットの形成など多くの転写・複合化プロセスの開発に成功した。

(2) 社会・経済的波及効果

本研究領域の成果、及び本研究領域終了後にさらに発展された成果の実用化に向けた検討が継続的に推進されており、成果の実用化の実現の可能性が高まっている。特に、木下が推進してきた「極端紫外線リソグラフィ」が2013年に実現すれば、大きな社会・経済的波及効果があると予想される。また、松井の成果が実用化されて、ナノ立体構造形成に使える「高速集束イオンビーム装置」が計測機メーカーから市販された。実用化の可能性が高い成果として下記が挙げられる。

①極端紫外線リソグラフィの実用化開発が2013年から開始（木下）

木下は、1984年に露光光源に極端紫外光（EUV）を用いる反射型露光システムを世界で初めて提案し、以来、極端紫外線リソグラフィの実現に向けて、「位相差極EUV顕微鏡システムの開発」や「高次高調波EUVコヒーレントスキヤトロメトリ顕微鏡の開発」など多くの成果を挙げてきた。EUVマスク検査技術及びEUVレジスト材料技術がNEDOプロジェクト「次世代半導体微細加工・評価基盤技術の開発」（2011年～2015年）に採択され、2013年度中間目標ハーフピッチ（hp）16nm、2015年度最終目標hp11nm対応した技術の確立を目標に実用化開発を進めている。EUVリソグラフィの実露光機を用いた実用化開発が2013年から開始されており、近い将来に量産化が実現すれば、非常に大きな社会・経済的波及効果となる。

②ナノ立体構造形成に使える「高速集束イオンビーム装置」の市販（松井）

2007年8月30日の日経産業新聞に「ナノ立体構造物、観察しながら作製、兵庫県立大学など開発、微小部品向け装置」という記事が掲載された。その中に「SII ナノテクノロジー株式会社が販売中の『集束イオンビーム・SEM 複合装置』に組み込んで立体構造物を作れるようにするユニットを三年以内に製品化したい考え」と記載があったが、その後同社から新製品としてナノ立体構造形成に使える「高速集束イオンビーム装置 SMI4050」の販売が行われた。

③ナノインプリント装置の市販（松井）

企業と共同で装置の開発を行い2004年～2006年に数機種を開発して同企業で装置が作製・市販された。装置の普及を図るため価格を数百万円程度に抑えたこともあり、大企業の研究所を含めて数十台以上売れるなどナノインプリントの実用化促進に貢献した。

④ゲーム機「ニンテンドー3DS」を使って原子構造の立体画像の体験（大門）

ゲーム機「ニンテンドー3DS」を使って原子構造の立体画像を見ることができる技術を開発して、グラフィック結晶などの画像をホームページから無料でダウンロードできるようにした。これにより、これまで一部の研究者に限られていた原子の立体視を、より多くの人が体験できるようになった。本技術では元素ごとの構造解析が直接できるので、ニーズが高まるレアメタルの代替物質など新物質の開発にも役立つ。大門は、小学生でも原子の世界を体験できるようになり、理科好きな若者の増加に貢献することを期待している。

⑤「広角対物レンズ」や「回転楕円体メッシュレンズ二次元表示型分析器」の実用化の推進（大門）

本研究領域期間中に依頼した特許の成立件数が5件（国内3件、海外2件）となっている。研究終了報告書には、「広角対物レンズ」については外国企業と特許実施準備契約を結んだことや「回転楕円体メッシュレンズ二次元表示型分析器」についてはベンチャー企業を設立して実用化を進めていることもあり、実用化への動きが活発である。

⑥原子分解能液中原子間力顕微鏡および超高真空透過電子顕微鏡内走査型力顕微鏡の両方の特許に日米の複数の装置メーカーが注目（川勝）

本研究領域期間中に依頼した特許の成立件数が23件（国内6件、海外17件）と非常に多い。また本研究領域終了後の依頼についても3件が成立している（国内1件、海外2件）。研究終了報告書には、原子分解能液中原子間力顕微鏡および超高真空透過電子顕微鏡内走査型力顕微鏡の両方について、日米の複数の装置メーカーからライセンスに基づく新しい顕微鏡の実現の希望があると記載があり、ライセンスに基づく新しい顕微鏡の実現の可能性がある。

⑦高分子マイクロ相分離構造膜をテンプレートに用いた転写・複合化プロセスの開発、及びテンプレートの提供による共同研究などによるテンプレート実用化の推進（彌田）

テンプレートに用いた転写・複合化プロセスの開発によるシリカナノピラー配列体、金・銀・鉛などのナノ微粒子配列体、導電性高分子アレイ、シリコンウエハ表面への規則配列ピットの作製、及び他研究機関へのテンプレートの提供などテンプレートの応用展開が精力的に推進されている。特に、企業へのテンプレートの提供等を通じた共同研究・共同依頼等も積極的に推進されており、実用化への活動が活発である。

⑧高分子マイクロ相分離膜を用いたフィルターの開発（彌田）

高分子マイクロ相分離膜に紫外線を当てた後アセトンと水に浸して膜を基板からはがして、フィルターに利用する技術を開発し、水溶性の液体がシリンドー部を通過することを確認できた。開発した膜は親水性のシリンドー部が貫通しているため、目詰まりし難く連続して高効率な分離が可能である。さらに、シリンドー部の直径を数～数十 nm まで変えることにより目的に応じた物質だけを分離することが可能となるので、DNA やタンパク質などの分離への応用の可能性がある。

⑨カーボンナノチューブ量子ドットを利用したテラヘルツ波の新規検出技術の開発（石橋）

テラヘルツ波は、バイオ研究、医療検査、宇宙観測用テラヘルツ望遠鏡、セキュリティ検査など多くの用途に役立つことが期待されている。例えば、テラヘルツ波を物質に照射して得られる反射強度あるいは透過強度を画像として得るテラヘルツイメージングは、空港のセキュリティチェックとして有用であり、医療分野では医薬品原料の分光スペクトル検査への応用もある。本プロジェクトの成果である CNT を量子ドットして用いた単電子トランジスタを活用して新規なテラヘルツ波の超高感度センサの開発に成功した。期間終了後に3件の国際特許依頼を行っており、今後さらに検討を進めてテラヘルツ波高感度検出

器の実用化を目指す動きがある。

⑩ダイヤモンド微小ナノ粒子を触媒に用いた高純度カーボンナノチューブの成長（本間）

ダイヤモンド微小ナノ粒子を触媒に用いた単層カーボンナノチューブ（CNT）の成長に成功した。従来の製法では鉄などの触媒を使い、不純物を完全に取り除けない問題があったが、炭素原子だけのダイヤモンドを使えば不純物は混入しない。電子素子の回路や配線幅は微細加工技術の限界で 10nm より細くすることは難しいため、素子の高集積化をさらに進めるため、CNT の利用が一つの候補である。CNT を様々な方向に配置する技術は確立しており、これからは不純物のない CNT を用いて新たな光素子などを開発することが可能である。

第2章 追跡調査

2.1 追跡調査について

2.1.1 調査の目的

追跡調査は、本研究領域終了から一定期間を経過した後、副次的効果を含めて研究成果の発展状況や活用状況を明らかにし、科学技術振興機構（JST）の事業および事業運営の改善に資するために行うもので、プロジェクト終了後の研究代表者の研究課題の発展状況等を調査した。

2.1.2 調査の対象

本追跡調査は CREST 研究領域「高度情報処理・通信の実現に向けたナノファクトリーとプロセス観測（2002～2007 年度）」の研究代表者全員を対象とする。表 2-1 に調査対象と調査対象期間を示す。

表 2-1 調査対象と調査対象期間

採択年度	本研究領域期間	本領域終了後調査対象期間	研究課題数
2002 年度	2002 年 11 月～2008 年 3 月	2008 年 4 月～2012 年 9 月	7
2003 年度	2003 年 10 月～2008 年 3 月	2008 年 4 月～2012 年 9 月	1

2.1.3 調査の方法

(1) 研究助成金

本研究領域終了以降に、研究代表者が代表もしくはそれに相当する立場（総括研究者、プロジェクトリーダー等）で獲得した外部研究資金を調査した。

対象となる外部研究資金と調査方法は以下の通りである。

① 科研費

科学研究費助成事業データベース (<http://kaken.nii.ac.jp/>) から、研究代表者が代表となっている研究課題を検索した。さらに、CREST 研究の規模から継続・発展が図られているかという観点から、大型（1 千万円／件 以上）のものを抽出した。

② JST 事業

JST ホームページ (<http://www.jst.go.jp/>) のサイト内検索で研究代表者の情報を検索し、プロジェクト終了以降に研究代表者が代表となって採択された事業もしくはプロジェクト（研究総括あるいは領域総括としての関与は含まない）を抽出した。

③ NEDO プロジェクト

NEDO ホームページ (<http://www.nedo.go.jp/>) のサイト内検索、および成果報告書データベース (<https://app5.infoc.nedo.go.jp/disclosure/Login> 利用には ID とパスワード

ドが必要) から、研究代表者の情報を検索し、プロジェクト終了以降に代表者、もしくはプロジェクトリーダー等として実施しているプロジェクトの有無を確認した。

④ 最先端・次世代研究開発支援プログラム

最先端研究開発支援プログラム (FIRST プログラム) のホームページ (<http://first-pg.jp/about-us/about-30.html>) および最先端・次世代研究開発支援プログラムのホームページ (<http://www.jsps.go.jp/j-jisedai/life.html>) から、研究代表者の採択実績を確認した。

(2) 論文

本研究領域期間中および本研究領域終了以降の研究代表者の発表論文について、Scopus (Elsevier) の名寄せ機能を用いて検索を行った。

終了以降の論文のうち、著者名だけでは研究代表者の論文と特定できない場合には、抄録を確認し、所属機関の情報や内容から絞り込みを行った。

次に、本研究領域期間中および本研究領域終了以降の論文数を求めた。本研究領域終了以降の論文については Article と Review に絞り込み、さらに研究代表者が筆頭著者 (1st Author) もしくは責任著者 (Last Author) となっている論文 (以下「責任著者論文」) の数を求めた。

(3) 特許

本研究領域期間中出願特許の成立および海外出願の状況と、本研究領域終了以降の国内・海外出願特許について調査した。国内特許の出願・成立状況の検索・確認には、国内特許公報 ATMS を、海外 (国際) 出願・成立状況の検索・確認には、欧州特許庁の esp@cenet を用いた。

本研究領域期間中出願特許については、まず国内出願特許の成立状況を国内特許公報 ATMS で確認した。次に、その出願を優先権とする国内・海外 (国際) 出願と成立状況を esp@cenet で確認した。

本研究領域終了以降の出願特許については、研究代表者が発明者に含まれる国内出願特許を検索し、成立状況を確認した。海外 (国際) 出願と成立状況については、本研究領域期間中出願特許の確認方法に準じ、esp@cenet を用いて行った。

2.2 アウトプット概要

2.2.1 研究助成金

研究助成金の獲得は、大幅な研究推進を図るために必須の要件であり、同時に、研究内容の重要性や実現性が外部から認められた証左と考えられる。各研究代表者の本研究領域期間終了後の主な研究助成金の獲得状況を表 2-2 に示した。

(1) 大型の研究助成金の獲得状況

彌田 (ERATO、科研費基盤研究 S)、松井 (CREST、科研費新学術領域研究)、木下 (CREST)、石橋 (科研費特定領域研究、科研費基盤研究 S)、本間 (科研費特定領域研究)、大門 (科研費基盤研究 S、科研費基盤研究 A)、川勝 (科研費基盤研究 A) が挙げられる。

(2) 大型の研究助成金による本プロジェクトの課題の発展状況

① 科研費特定領域研究「カーボンナノチューブナノエレクトロニクス」(2007～2011 年度)(石橋、本間)

CNT の研究は、「ナノテクノロジー分野別バーチャルラボ」のいくつかの分野で取り上げられ、多くの優れた成果が得られた。本領域でも、優れた成果を挙げて、上記研究プロジェクトの立ち上げに貢献すると共に、本研究領域研究成果の応用展開を推進した。

石橋は、課題「機能性カーボンナノチューブを用いた量子ナノデバイスの開発」において、CNT 量子ナノデバイスの集積化技術の開発や CNT・分子ヘテロ構造を用いた分子スケールナノ構造の作製技術の開発を進め、CNT を量子ドットとして用いた新機能ナノデバイスへの応用の可能性を示した。

本間は、課題「機能性カーボンナノチューブの光物性評価に関する研究」において、SWNT の特異な光学特性をデバイスへ応用することを目的として、SWNT の発光に対する環境の影響や内包物質の効果、および非線形光学応答などについての解析をおこない、SWNT の光学応答の理解と応用に有用な成果を得た。

② CREST 研究領域「次世代エレクトロニクスデバイス創出に資する革新材料・プロセス研究」(研究総括：渡辺久恒)(2008～2010 年度)(木下、松井)

木下は、課題「コヒーレント EUV 光を用いた極微パターン構造計測技術開発」において、高次高調波 EUV コヒーレントスキャトロメトリー顕微鏡の開発を行いサブナノ精度のパターン寸法計測および露光用マスク欠陥観察技術を確立し、本プロジェクトに引き続いて、極端紫外線 (EUV) リソグラフィの実用化に向けた計測技術の構築を推進した。

松井は、FIB-CVD による立体ナノ構造作製はスループットが低いことから、FIB-CVD によって作製した立体ナノ構造をモールドとしたナノインプリントによる複製転写技術の開発に課題を発展させ、本研究領域における課題「超高速ナノインプリントリソグラフィ技術のプロセス科学と制御技術の開発」において、高スループット化を目標に、繰り返しナノインプリントを行う際に必須となる離型性の向上と樹脂の高速充填を可能とする凝縮性ガス雰囲気中でのナノインプリント技術を開発した。

③科研費基盤研究（S）「カーボンナノチューブ量子ドットと電磁波の相互作用に関する研究」（2007～2011 年度）（石橋）

石橋は、本研究領域の成果を発展させて、CNT を用いたテラヘルツ波の検出技術の開発を進め、CNT 単電子トランジスタの超高感度エレクトロメータとしての機能を活用した新規なテラヘルツ波検出機構を見出すことに成功した。

④科研費基盤研究（S）「微小領域二次元電子分光」（2008～2012 年度）（大門）

大門は引き続き、微小領域の電子状態と原子構造を立体的に観測することを目的として、本研究領域で開発した立体光電子顕微鏡の完成度の向上、及び本研究領域で新しく発明した楕円メッシュ二次元分析器の完成を図った。

⑤科研費基盤研究（S）「超異方性ナノシリンドー構造形成・転写過程の X 線散乱—分光同時評価とダイナミクス」（2006～2010 年度）（彌田）

彌田は、本研究領域に継続して、ナノ構造製膜プロセスの最適化と指導原理を導くことを目指して、高分子マイクロ相分離構造形成プロセスのダイナミクスの解析を行うと共に高分子マイクロ相分離構造膜をテンプレートに用いた転写・複合化プロセスの開発を進めた。

さらに、ERATO「彌田超集積材料」（2010～2015 年度）の研究総括として、ナノテンプレートを利用することで、各構成成分の精密な配置・配列を実現し、各成分同士の相互作用を精密に制御することで、単なる成分の足し合わせ以上の性質をもつ材料（超集積材料）の創出を目指した開発を推進している。

⑥科研費基盤研究（A）「高周波微小振動子による元素同定、質量検出および液中原子間力顕微鏡の実現」（2009～2011 年度）（川勝）

川勝は、原子分解能液中原子間力顕微鏡の光熱励振の効率の向上、超高真空透過電子顕微鏡内走査型力顕微鏡のグリーンレンズの色収差改善による光励振と計測の両立の達成など、本研究領域で開発した計測装置の完成度の向上を図った。

表 2-2 研究代表者の研究助成金獲得状況

 : 科研費
 : JST
 : NEDO
 : その他

採択 年度	研究代表者	研究費名称	研究テーマ名	開始 年度	終了(予定) 年度	年度												金額 (百万円)
						00	01	02	03	04	05	06	07	08	09	10	11	
2002	石橋 幸治						研究期間中						研究終了以降					
		科研費 基盤研究(S)	カーボンナノチューブ量子ドットと電磁波の相互作用に関する研究	2007	2011											94.4		
		科研費 特定領域研究	機能性カーボンナノチューブを用いた量子ナノデバイスの開発	2007	2011											110.8		
2002	市川 昌和						研究期間中						研究終了以降					
		科研費 基盤研究(B)	ナノチャネル・ヘテロエピタキシャル薄膜成長法の開発と応用	2008	2010											18.7		
2002	彌田 智一						研究期間中						研究終了以降					
		科研費 基盤研究(S)	超異方性ナノシリンドラ構造形成・転写過程のX線散乱-分光同時評価とダイナミクス	2006	2010											109.9		
		JST ERATO	彌田超集積材料プロジェクト	2010	2015													
2002	川勝 英樹						研究期間中						研究終了以降					
		科研費 基盤研究(A)	高周波微小振動子による元素同定、質量検出および液中原子間力顕微鏡の実現	2009	2011											47.2		
2002	木下 博雄						研究期間中						研究終了以降					
		JST CREST「次世代エレクトロニクスデバイスの創出に資する革新材料・プロセス研究」	コヒーレント EUV 光を用いた極微パターン構造計測技術の開発	2008	2012													
2002	大門 寛						研究期間中						研究終了以降					
		科研費 基盤研究(A)	軌道角運動量軟X線の作成	2008	2008											12.1		
		科研費 基盤研究(S)	微小領域二次元光電子分光	2008	2012											171.9		
2002	松井 真二						研究期間中						研究終了以降					
		科研費 基盤研究(B)	集束イオンビーム3次元ナノ構造形成によるバイオナノツールの作製と評価	2008	2010											17.4		
		科研費 新学術領域研究(研究領域提案型)	ナノインプリントによる機能性分子のナノ空間自己組織化制御	2008	2012											67.3		
		JST CREST「次世代エレクトロニクスデバイスの創出に資する革新材料・プロセス研究」	超高速ナノインプリントリソグラフィ技術のプロセス科学と制御技術の開発	2008	2012													
2003	本間 芳和						研究期間中						研究終了以降					
		科研費 特定領域研究	機能性カーボンナノチューブの光物性評価に関する研究	2007	2011											110.8		
		科研費 基盤研究(B)	カーボンナノチューブのナノ表面・ナノ空間における水の構造と物性	2012	2014											8.7		

2.2.2 論文

原著論文発表数の推移は、研究者の研究活動状況を示す最も確かつ重要な指標の一つであると考えられるため、表 2-3 に、各研究代表者別に本研究領域開始時から現在までの原著論文数期間中と本研究領域終了以降の発表論文を期間等で分類して示した。表中、CR 本研究領域期間中の論文数を①に、うち研究代表者の論文数を②に、本研究領域終了後の研究代表者の論文数を③に、うち研究代表者が責任著者である論文数を④に示した。

本研究領域期間中の全論文数は、終了報告書に記載のある論文のうち、2009 年に行った調査で、データベース（使用データベースは Web of science）に収録のあるものをカウントした。領域全体として見ると、全研究代表者による本研究領域期間中の論文総数は 228 報である。本研究領域終了後の論文総数は 254 報であり、本研究領域終了後も本研究領域期間中と同様に研究が活発に推進されたと推測される。

各研究代表者別に見ると、本研究領域期間中の論文数と本研究領域終了後の論文数の合計数は、松井 122 報（うち終了後 80 報）、石橋 71 報（うち終了後 33 報）、大門 65 報（うち終了後 32 報）の順である。

表 2-3 研究者の論文（原著論文）数

採択 年度	研究課題	研究代表者	① 本研究領域期間 中の論文数	② ①のうち 研究代表者の論文数	③ 本研究領域終了後の 論文数	④ 本研究領域終了 後の責任著者論 文数
2002 年度	カーボンナノ材料を用いた量子ナノデバイスプロセスの研究	石橋 幸治	53	38	33	23
2002 年度	超高密度・超微細ナノドット形成とナノ物性評価技術	市川 昌和	22	19	21	16
2002 年度	高信頼性ナノ相分離構造テンプレートの創製	彌田 智一	43	36	22	9
2002 年度	超高速・超並列ナノメカニクス	川勝 英樹	15	15	9	7
2002 年度	位相差極端紫外光顕微鏡による機能性材料表面観察・計測技術	木下 博雄	16	16	30	25
2002 年度	ナノ構造解析のための立体原子顕微鏡の開発	大門 寛	34	33	32	22
2002 年度	高機能ナノ立体構造デバイス・プロセス	松井 真二	51	42	80	52
2003 年度	カーボンナノチューブ形成過程その場観察と物性制御への展開	本間 芳和	67	29	27	17
	合 計		301	228	254	171

データ取得日

①、②は 2009 年 10 月

③、④は 2012 年 9 月

2.2.3 特許

特許出願件数は、研究から産業への、ひいては社会への貢献度を示す重要な指標の一つであると考えられる。中でも、特許成立数は、独創性、進歩性、産業への活用の可能性を客観的に認められたものであり、特に重要な産業への貢献度を示す指標と考えられる。表 2-4 に、各研究代表者の出願特許について、本研究領域期間中、および本研究領域終了後の出願件数、登録件数を国内出願と国際出願に分けて示した。また、成立特許の一覧を表 2-5 に示した。

領域全体として見ると、本研究領域期間中の研究代表者の出願数は 46 件(国内出願 28 件、国際出願 18 件)であり、国際出願の比率が約 40%と高い。本研究領域終了後の出願数は 28 件(国内出願 23 件、国際出願 5 件)と減少している。本研究領域期間中の出願の特許登録件数は、国内特許登録件数 22 件、海外特許登録件数が 31 件と非常に多く大きな成果と考えられる。

全期間を通じての特許の登録件数を各研究代表者別に見ると、川勝 23 件(国内 6 件、海外 17 件)、彌田 11 件(国内 4 件、海外 7 件)、松井 10 件(国内 5 件、海外 5 件)の順である。

表 2-4 本研究領域期間中・終了以降の研究代表者の特許出願・成立状況

採択 年度	研究代表者	本研究領域期間中				本研究領域終了以降			
		出願件数		登録件数		出願件数		登録件数	
		国内	海外 (国際)	国内	海外 (国際)	国内	海外 (国際)	国内	海外 (国際)
2002 年度	石橋 幸治	3	0	0	0	2	3	0	3
	市川 昌和	3	0	2	0	0	0	0	0
	彌田 智一	5	3	4	7	3	1	0	0
	川勝 英樹	1	9	6	17	2	1	1	2
	木下 博雄	2	0	1	0	4	0	0	0
	大門 寛	2	3	3	2	0	0	0	0
	松井 真二	6	3	5	5	11	0	0	0
	本間 芳和	6	0	1	0	1	0	0	0
領域全体		28	18	22	31	23	5	1	5

データ取得日：2012 年 9 月

表 2-5 本研究領域期間中・期間後の登録特許リスト

石橋幸治

区分	出願番号	公開番号	登録 番号 (国内)	国際公開番号	海外成立	発明の名称	出願人	発明者／ 考案者
終了 以降	2008-178041	2010-019585		US2010006892	US8148688	近接場テラヘルツ光検 出器	(独) 理化学研 究所	河野 行雄 石橋 幸治

	2008-222980	2010-060284		US2010051812	US8253104	テラヘルツ光検出装置 とその検出方法	(独) 理化学研 究所	河野行雄 石橋幸治
	2010-001840	2010-206176		US2010200755	US7947955	テラヘルツ電磁波検出 装置とその検出方法	(独) 理化学研 究所	河野行雄 石橋幸治

市川昌和

区分	出願番号	公開番号	登録 番号 (国内)	国際公開番号	海外成立	発明の名称	出願人	発 明 者 / 考案者
期間 中	2004-218457	2005-303249	4508761			半導体デバイスの製 造方法(優先権主張： 特願 2004-79028)	(独) 科学技術 振興機構	市川昌和 中村芳明
	2006-122795	2007-294778	4989101			G e S n 半導体デバ イスの製造方法	(独) 科学技術 振興機構	中村芳明 市川昌和 正田明子

彌田智一

区分	出願番号	公開番号	登録 番号 (国内)	国際公開番号	海外成立	発明の名称	出願人	発 明 者 / 考案者
期間 中	2003-315420	2004-124088	3979470			ブロック共重合体、及 びマイクロ相分離構造 膜の製造方法	(財) 理工学振 興会	彌田 智一 田顔清, 孔祥興, 渡辺一史, 阿部二郎, 中川 勝, 植草 貴行
	2004-133301	2005-314526	4297831			配向の制御されたミ クロ相分離構造膜の 製法	(独) 科学技術 振興機構	彌田 智 一, 鎌田 香織
	2005-323060	2007-131653	4887486			カルコン類縁体	国立大学法人東 京工業大学	彌田 智 一, アナ ダナム ビー セシ ャ サイ ナス, 鎌 田 香織

	2007-227972	2009-057519	4403238	W02009031676		マイクロ相分離構造膜、及びその製造方法	国立大学法人東京工業大学、トヨタ自動車株式会社	彌田 智一，浅岡 定幸，鈴木 幸光，中西 治通，松本 信一，有川 英一
	W02005JP05180			W02005090443	CN1934167 EP1754738 KR100890296 US7985829	Process for Producing Polypyridinium(優先権主張：特願 2004-084518)	Japan Science & Tech Agency	Iyoda, Tomokazu, Kamata, Kaori, Suzuki, Yukimitsu)
	W02006JP322616			W02007055371	US8163189 EP1950799 CN101361170	Method for production of nano-porous substrate(優先権主張：特願 2005-115562)	Tokyo Institute of Technology	Iyoda, Tomokazu, Kamata, Kaori, Watanabe Ryoko

川勝英樹

区分	出願番号	公開番号	登録番号 (国内)	国際公開番号	海外成立	発明の名称	出願人	発明者／ 考案者
期間中	2004-150133	2005-333735	4519517			複合ピエゾ素子を用いた精密高速移動方法および装置	(独) 科学技術振興機構	川勝 英樹
	2004-314034	2006-125984		W0200604662	KR100947201 US7694347 RU2353918	デিজリー型カンチレバーホイールを有する計測装置	(独) 科学技術振興機構	川勝 英樹
	2006-513544		4567676	W005111563 RU2006139743	RU2334204	位相同期回路を用いた高感度力・質量検出装置(優先権主張：特願 2004-144751)	(独) 科学技術振興機構	川井 茂樹 川勝 英樹

	2006-513734		4658040	W005114825	EP1753120 EP179343 KR1008916 05 RU2341863 US7622847 US783451	精密高耐荷重移動方 法および装置(優先権 主張:特願 2004-150134)	独立行政法人科 学技術振興機構	川勝 英樹
	2006-546669		4264107	W006062048	KR1009128 53 RU2352002	機械的振動子及びそ の製造方法(優先権主 張:特願 2004-352728)	独立行政法人科 学技術振興機構	小林 大, 川勝 英 樹, 年吉 洋
	2007-505994		4485571	W006093209	US7719663	ヘテロダインレーザ ドップラープローブ 及びそれを用いた測 定システム(優先権主 張:特願 2005-056754)	独立行政法人科 学技術振興機構	川勝 英樹
	2007-505995		4489804	W006093210	US7847953	ホモダインレーザ干 渉計プローブ及びそ れを用いた変位計測 システム(優先権主 張:特願 2005-056753)	独立行政法人科 学技術振興機構	川勝 英樹
	W02005JP057 96			W02005095922	KR1008498 74 RU2330262	Nanogap series substance capturing, detecting and identifying method and device (優先権主 張:特願 2004-100735)	Japan Science & Tech Agency	Kawakatsu Hideki
	W02007JP642 37			W02008015916 (A1)	US7904966 (B2)	Scanning Probe Microscope(優先権主 張:2006-207297)	Japan Science & Tech Agency	Kobayashi Dai, Nishida Shuhei, Kawakatsu Hideki
終了 以降	2010-511923		4913242	W009139238	RU2456622 US8151368	ダイナミックモード A F M装置	独立行政法人科 学技術振興機構	川勝 英 樹, 小林 大

木下博雄

区分	出願番号	公開番号	登録番号 (国内)	国際公開番号	海外成立	発明の名称	出願人	発明者／考 案者
終了 以降	2005-360553	2007-163311	4855060			光学素子製造方法(出 願時「光学素子及び光 学素子製造方法」)	(独) 科学技術 振興機構	木下 博雄, 渡邊 健夫

大門寛

区分	出願番号	公開番号	登録番号 (国内)	国際公開番号	海外成立	発明の名称	出願人	発 明 者 / 考 案 者
期 間 中	2006-527778		4802340	W006008840	EP179341 US7655923	球面収差補正静電型 レンズ、インプットレ ンズ、電子分光装置、 光電子顕微鏡、および 測定システム(優先権 主張：特願 2004-208926)	国立大学法人 奈 良先端科学技術 大学院大学、日 本電子株式会社	大門 寛, 松田 博 之, 嘉藤 誠 工藤 政都
	2008-526810		4900389	W008013232		球面収差補正減速型 レンズ、球面収差補正 レンズシステム、電子 分光装置および光電 子顕微鏡(優先権主 張：特願 2006-203318)	国立大学法人 奈良先端科学技 術大学院大学	松田 博 之, 大門 寛

松井真二

区分	出願番号	公開番号	登録番号 (国内)	国際公開番 号	海外成立	発明の名称	出願人	発明者／ 考案者
期 間 中	2003-143099	2004-345009		W0200411344 2	EP1647575	微小立体構造マニピ ュレータ	(独) 科学技術振 興機構	松井真二, 米谷玲皇
	2004-122640	2005-305568	4368726			集束イオンビームを 用いた絶縁性被覆を 有するナノワイヤの 形成方法および絶縁 性被覆を有するナノ ワイヤ装置	(独) 科学技術振 興機構	松井 真 二, 藤田 淳一
	2004-320293	2006-129977	4485323			神経再生電極装置の 作製方法及びその神 経再生電極装置	独立行政法人科 学技術振興機構	松井 真 二, 星野 隆行, 満 渕 邦彦

	2005-343356	2007-149524	4672534			微小電子エミッタの 作製方法及びそれを 用いて作製される微 小電子エミッタ	独立行政法人科 学技術振興機構	松井 真 二, 米谷 玲皇
	2005-502830		4704911	W004077536	KR1007497 10	空中配線の製造方法	エスアイアイ・ナ ノテクノロジー 株式会社(出願時 は科学技術振興 機構)	星野 隆 行, 松井 真二, 近 藤 和茂
	2005-502831		4269028	W004076343	TWI244463 KR1007095 1 CN1004156 36	F I B-CVDによ る微小立体構造物の 製造方法及び微小立 体構造物の描画シス テム(優先権主張: 特 願 2003-54361)	エスアイアイ・ナ ノテクノロジー 株式会社	星野 隆 行, 松井 真二, 近 藤 和茂

本間芳和

区分	出願番号	公開番号	登録 番号 (国内)	国際公開番 号	海外成立	発明の名称	出願人	発明者/考 案者
期間 中	2004-084731	2005-272171	4465212			カーボンナノチュー ブの製造方法	日本電信電話株 式会社	神崎 賢一, 本間 芳和

2.3 アウトカム

2.3.1 科学技術的アウトカム

(1) 受賞

受賞は、研究者の成果が外部から高く評価されている重要な指標の一つである。本研究領域終了後の主な受賞は下記のとおりである。

木下は、「極端紫外線リソグラフィ技術の先駆的研究と工業化への継続的貢献」に対して、2010年に第10回山崎貞一賞、2012年度の文部科学大臣表彰科学技術賞（研究部門）と相次いで受賞している。

川勝は、業績「液中原子間力顕微鏡と水和構造可視化」に対して2008年に第40回市村学術賞功績賞を受賞している。

大門は「円偏光放射光を利用した立体原子写真法の研究」に対して、2008年度の文部科学大臣表彰科学技術賞（研究部門）を受賞している。

学会賞に関して、彌田が業績「高分子薄膜の構造制御と機能複合化に関する研究」に対して2008年度の高分子学会学会賞（科学）、本間が業績「超高真空SEMを用いた表面の基礎的な研究とナノ材料への応用」に対して2008年度の日本表面科学会学会賞、大門が業績「放射光二次元光電子分光の開発」に対して2010年度の日本表面科学会学会賞を受賞している。木下が、2012年に米国のThe Optical SocietyからJoseph Fraunhofer Awardを受賞している。

(2) 学会等への貢献

応用物理学会フェロー表彰を、2008年に松井が業績「電子・イオンビームを用いた超微細加工技術の研究」に対して、2010年に木下が業績「極端紫外線リソグラフィ技術の先駆的研究開発」に対して、本間が業績「その場計測を用いた表面構造およびナノ構造制御に関する研究」に対して受賞している。

日本表面科学会フェロー表彰を、2010年に本間が業績「走査電子顕微鏡を用いた表面の基礎的な研究とナノ構造制御への応用」に対して受賞している。

(3) 共同研究

市川は、彌田との共同研究によって、「ブロック共重合薄膜テンプレートを応用した規則配列ナノドットの形成技術」の開発を行い、規則配列したGeナノドットの形成に成功した（2010年に論文発表：市川の論文4）。

2.3.2 社会・経済的アウトカム

(1) 報道関係

本研究領域終了後の研究成果の報道について、主要な記事を下記に示した。内容的には、新規なナノデバイスの実現につながる可能性のある新知見に関するものが中心である。

①石橋

(i) 2009 年 7 月 10 日 日経速報ニュース「炭素原子層 1 層のシートを使って結合量子ドット素子の作製に成功」: グラフェンの三層シートに対して、電子線ビームリソグラフィと反応性イオンエッチング技術を用いてシートを直接加工することにより、2 つの近接した量子ドットと電気伝導を制御する電極などのデバイス構造を作製した。量子ドットの中に電子が 1 個ずつ入る単一電子デバイス動作の実証と量子ドット間の電子の結合をグラフェンゲート電極によって変化させることに成功し、最も基本的な集積化ナノデバイスである結合量子ドット素子を実現した。本研究によって、グラフェン材料を用いた単電子エレクトロニクスや量子コンピュータなどのいわゆる Beyond CMOS と呼ばれる新機能ナノエレクトロニクスのデバイスの開発の進展につながる可能性がある。

(ii) 2009 年 11 月 10 日 理化学研究所プレスリリース「光子レベルの分解能を持つ超高感度テラヘルツ波センサを開発」: CNT の単電子トランジスタと高電子移動半導体の新規なハイブリッド構造の検出器を開発し、極めて微弱なテラヘルツ波の強度と周波数を同時に検出することに成功。今後は、多数の検出器を 2 次元状に配置した高解像度カメラの開発を行い、基礎科学から産業応用に至る多くの用途に役立つことを目指すとのことである。

(iii) 2011 年 10 月 4 日 日刊工業新聞「独創研究集団・理研の最前線(210) ナノテクノロジーで拓く未来のエレクトロニクス」: CNT を利用した単電子トランジスタなどの作製、テラヘルツ波の吸収現象解明、CNT と分子で分子スケールナノデバイスの作製など研究室の活動状況の紹介。今後も、量子的な学理に基づくナノデバイスの研究を行い、IT 技術における超省エネルギーとエレクトロニクスのさらなる発展を目指すとしている。

②彌田

(i) 2008 年 12 月 4 日 日経産業新聞「10 ナノ以下、立体配線、東工大が基盤技術、LSI 集積度高める」: シリコン基板上に形成したブロックコポリママイクロ相分離膜をテンプレートに用いて、基板を塩化カリウム水溶液に漬け加熱する際に電圧を掛けることにより電極間を横断する方向に親水性の糸をそろえることに成功。親水性の糸に金属化合物をしみこませて高分子を除去して金属の糸だけを残すことにも成功。現在の LSI 製造技術では 10nm 以下の配線をつくることは難しいが、今回の手法を発展させることにより微細な立体配線を作製できる可能性がある。

(ii) 2011 年 1 月 19 日 日経産業新聞「ナノ材料、分離効率高く、東工大・慶大が膜開発、DNA など抽出」: 高分子マイクロ相分離膜に紫外線を当てた後アセトンと水に浸して膜を基板からはがして、フィルターに利用する技術を開発し、水溶性の液体がシリンダー部を通過することを確認できた。一方、油性の液体はシリンダーを取り巻く部分を通過する。開発した膜は親水性のシリンダー部が貫通しているため、目詰まりし難く連続して高効率な分離が期待できる。さらに、シリンダー部の直径を数～数 10nm まで変えることにより目的に応じた物質だけを分離することが可能となるので、DNA やタンパク質などの分離への応用の可能性がある。

③木下

2012年12月19日 日経産業新聞「極紫外線で欠陥発見 次世代LSI向け顕微鏡」：東北大学豊田助教と兵庫県立大学の木下教授がEUV基盤開発センターと共同で開発。波長13.5nmの極紫外線を用いる高解像度の光学顕微鏡であり、線幅が16nmより細い次世代LSI用の露光フォトリソマスクの欠陥の検査が可能となる。2014年春の実用化を目指す。

④本間

2009年10月6日 日経産業新聞「NTT・東京理科大、カーボンナノチューブ、ダイヤモンドからよきによき」：ダイヤモンド微小ナノ粒子を触媒に用いた単層カーボンナノチューブの成長に成功した。従来の製法では鉄などの触媒を使い、不純物を完全に取り除けない問題があったが、炭素原子だけのダイヤモンドを使えば不純物は混入しない。電子素子の回路や配線幅は微細加工技術の限界で10nmより細くすることは難しいため、素子の高集積化をさらに進めるため、カーボンナノチューブ（CNT）の利用が期待されている。CNTを様々な方向に配置する技術は確立しており、これからは不純物のないCNTを用いて新たな光素子などを開発することも可能である。

(2)アウトリーチ活動

アウトリーチ活動としては、大門が、本プロジェクト期間中に国立科学博物館における科学博で立体原子顕微鏡で観測した原子配列の写真を展示したのに引き続いて、ゲーム機「ニンテンドー3DS」を使って原子構造の立体画像を見ることができる技術を開発し、グラフィック結晶などの画像をホームページから無料でダウンロードできるようにしたことが挙げられる。これにより、これまで一部の研究者に限られていた原子の立体視を、広く一般の人々が体験できるようになり、ナノテクノロジーへの興味と理解の増進に寄与した。大門は、小学生でも原子の世界を体験できるようになり、理科好きな若者の増加につながることを期待しているとのことである。（2011年7月11日共同通信「3DSで原子の立体視体験 無料でダウンロード」）

第3章 各研究課題の主な研究成果および波及効果

3.1 2002 年度採択課題

3.1.1 カーボンナノ材料を用いた量子ナノデバイスプロセスの研究（石橋 幸治）

(1) 研究のねらいと研究期間中の達成状況

①研究のねらい

本研究は、新機能ナノデバイスの基本構造として量子ドットに注目し、CNT を用いたデバイス機能の実証およびデバイス・プロセスの開発を目指した。

②期間中の研究成果

(i) CNT 人工原子

CNT の量子ドットの離散準位の観測、電子殻構造の観測、ゼーマン分裂の観測、2 電子間相互作用など、世界で初めて明確な人工原子的振る舞いの直接観測に成功し、スピン型量子ビット素子としての可能性を示した。

(ii) テラヘルツ検出

CNT 人工原子で超高感度テラヘルツ検出が可能であることを世界で初めて示した。カーボンナノチューブ人工原子の特徴の一つは、人工原子としてのエネルギースケールがサブミリ波からテラヘルツ波の領域にあり、カーボンナノチューブ人工原子がテラヘルツ波に対して量子的に（光子として）応答すると考え、カーボンナノチューブ人工原子に 1.5K において様々な周波数のテラヘルツ波を照射することによって、量子ドットからドレイン電極への光アシストトンネルによる電流ピークを観測することに成功した。

(iii) 単電子デバイス

イオンビームを多層カーボンナノチューブに局所的に照射して形成したトンネル障壁を用いて単電子トランジスタを 2 個直列に形成した CMOS 型単電子インバータをカーボンナノチューブで実現することに世界で初めて成功した。

(iv) CNT と GaAs/AlGaAs 構造

CNT と GaAs/AlGaAs のハイブリッド化を初めて提案し、新しいデバイス応用の可能性を示した。GaAs/AlGaAs 2 次元電子ガス（2DEG）基板上にホールバーをメサエッチングにより作製し、量子ポイントコンタクトゲートとカーボンナノチューブ単電子トランジスタを作製し、2 次元電子ガスをゲートとして単電子トランジスタを動作させることに成功した。

(v) 単層カーボンナノチューブの高真空低温成長

一般にナノチューブの成長は 700℃程度以上の高温で行われる。このことは、将来の半導体デバイスとの融合を考えた場合にプロセス上問題となる。新しいカーボンナノチュー

ブの成長法として、従来のアルコールを用いた CVD 法の成長圧力よりも 2 桁から 3 桁低い圧力条件で成長する技術の開発を行った。

(vi) ナノインデント法による CNT の選択成長

インデント(局所的な圧力加工)法を用いて、Co/Si 基板上のインデント領域のみに CNT を選択的に成長するプロセスを開発した。顕微ラマン分光の結果、孤立した単層の CNT がインデント内部に選択成長でき、面内均一性も良好であり、基板上の任意の位置に CNT の選択成長できる可能性を示した。

(vii) フラーレン電子線重合

C60 フラーレン薄膜に加速電圧 3kV の電子線を照射すると、フルーレン分子同士が融合反応し、ピーナツ型構造をもつ新しいナノカーボンポリマーが生成していることを赤外振動分光および理論解析により見いだした。また、振動分光の結果、グラファイトやナノチューブに対応する振動ピークは観測されなかった。このピーナツ型ナノカーボンポリマーを室温・大気下で四端子測定した結果、電流電圧特性がオーミック特性をもつことから、ピーナツ型ナノカーボンが導電性を示す物質であることを発見した。

③研究成果に関連した主な成果論文リスト(3 報以内)

- 1) Ishibashi, K., Tsuya, D., Suzuki, M., Aoyagi, Y. “Fabrication of single electron inverter in multiwall carbon nanotubes”, *Appl. Phys. Lett.*, 82, 3307-3309 (2003)
- 2) Moriyama, S., Fuse, T., Suzuki, M., Aoyagi, Y., Ishibashi, K. “Four-electron shell structures and an interacting two-electron system in carbon nanotube quantum dots”, *Phys. Rev. Lett.*, 94, 186806(1-4) (2005)
- 3) Fuse, T., Kawano, Y., Yamaguchi, T., Aoyagi, Y., Ishibashi, K. “Quantum response of carbon nanotube quantum dots to terahertz wave irradiation”, *Nanotechnology* 18, 044001 (2007)

(2) 本研究領域終了後の継続と発展状況

①科学技術の進歩への貢献

(i) 本研究領域の最終年度から開始した科研費 特定領域研究「カーボンナノチューブ ナノエレクトロニクス」(2007～2011 年度) の中の課題「機能性カーボンナノチューブを用いた量子ナノデバイスの開発」の研究代表者として、CNT を量子ドットとして用いた新機能ナノデバイスへの応用の検討を進め、本研究領域の成果の発展を図った。

・CNT 量子ナノデバイスの集積化技術の開発と実証¹⁾

CNT の他基板への貼り付け技術の開発を行い、貼り付けた CNT を用いて単電子トランジスタ (SET) を作製したところ明瞭な単一量子ドットの形成を示す結果が得られ、貼り付けによる CNT のダメージの問題はないことを確認した。

この貼り付け技術を用いて、異なる CNT にそれぞれ作成した量子ドット (QD) を容量的に結合して単電子メモリを作製するプロセス開発を行った。一方の QD に電子が入ったことによる信号をもう一方の QD で検出できたので、メモリ動作の確認検討を進めている。

・CNT・分子ヘテロ構造を用いた分子スケールナノ構造の作製技術の開発

CNT の両端を化学修飾し、その両端を化学結合 (エステル結合) してリング構造を作製した。電子状態を調べた結果、金属的な CNT がリング構造になることによりバンドギャップが形成されたことが確認でき、CNT のナノ構造を分子スケールナノデバイスへ発展させる可能性を示すことに成功した。

さらに、両端を化学修飾した CNT にコラーゲン分子の結合を行い、CNT 内の状態密度を観察したところ、エステル結合を用いた場合は放物線型ポテンシャルに閉じ込められた自由電子的振る舞いが観察されたが、アミド結合を用いた場合は基底状態だけが観察された。このことから、分子による終端により CNT のポテンシャルを人工的に設計できる可能性を示すことができた。

(ii) 並行して、科研費基盤研究 (S) の課題「カーボンナノチューブ量子ドットと電磁波の相互作用に関する研究」(2007-2011 年度) の研究代表者として本研究領域の成果を活用して、CNT の量子ドットを利用したテラヘルツ波の新規検出技術の開発を進めた。

・CNT 単電子トランジスタを利用した新規テラヘルツ波検出技術の開発²⁾

CNT 単電子トランジスタ (SET) を GaAs/AlGaAs 2 次元電子ガス (2DEG) 基板上に作製したデバイスの低温度・強磁場下におけるテラヘルツ応答を調べる中で、テラヘルツ波が 2DEG に作用して生じる電荷分布の変化を CNT 単電子トランジスタが超高感度エレクトロメータとして読み取るという新規なテラヘルツ波検出機構を見出すことに成功した。

また、上記の結果をヒントにして、基板上に焦電材料である PZT を蒸着しテラヘルツ波照射によって生ずる局所温度上昇による誘電分極を CNT 単電子トランジスタのクーロン振動のピーク位置の変化として読み取る検出器の検討を行い、テラヘルツ波照射の検出に成功した。

(iii) 上記のように、本研究領域終了後も、CNT を量子ドットして用いた量子ナノデバイスやテラヘルツ波検出器の開発を推進すると共に、量子ドットの材料を CNT からグラフェンや半導体ナノワイヤ等に応じて結合量子ドット素子や単電子トランジスタなど量子ナノデバイスの開発を推進し、多くの成果を挙げた⁴⁾。

・グラフェンから結合量子ドット素子の作製³⁾

グラフェンの三層シートに対して、電子線ビームリソグラフィと反応性イオンエッチング技術を用いて電子を閉じ込める 2 つの近接した量子ドットと電気伝導を制御する電極などのデバイス構造を作製した。量子ドットの中に電子が 1 個ずつ入る単一電子デバイス動作の実証と量子ドット間の電子の結合をグラフェンゲート電極によって変化させることに成功し、最も基本的な集積化ナノデバイスである結合量子ドット素子を実現した。これに

より、グラフェンを用いた単電子エレクトロニクスや量子コンピュータなどの新機能ナノエレクトロニクスのデバイス実現の可能性を示した。

②社会・経済的波及効果

(i) カーボンナノチューブ量子ドットを利用したテラヘルツ波の新規検出技術の開発
(2009 年 11 月 10 日 理化学研究所プレスリリース、論文 2)

テラヘルツ波は、バイオ研究、医療検査、宇宙観測用テラヘルツ望遠鏡、セキュリティ検査など多くの用途に役立つことが期待されている。例えば、テラヘルツ波を物質に照射して得られる反射強度あるいは透過強度を画像として得るテラヘルツイメージングは、空港のセキュリティチェックとして有用であり、医療分野では医薬品原料の分光スペクトル検査への応用もある。本プロジェクトの成果である CNT を量子ドットして用いた単電子トランジスタを活用したテラヘルツ波の超高感度センサの検討を進め、新規な検出技術の開発に成功した。期間終了後に 3 件の国際特許出願を行っており、今後さらに検討を進めてテラヘルツ波高感度検出器の実用化を目指す動きがある。

(ii) グラフェンシートを使って結合量子ドット素子の作製 (2009 年 7 月 10 日 日経速報ニュース、論文 3)

グラフェンの三層シートに対して、電子線ビームリソグラフィと反応性イオンエッチング技術を用いてシートを直接加工することにより、2 つの近接した量子ドットと電気伝導を制御する電極などのデバイス構造を作製した。量子ドットの中に電子が 1 個ずつ入る単一電子デバイス動作の実証と量子ドット間の電子の結合をグラフェンゲート電極によって変化させることに成功し、最も基本的な集積化ナノデバイスである結合量子ドット素子を実現した。本研究によって、グラフェン材料を用いた単電子エレクトロニクスや量子コンピュータなどのいわゆる Beyond CMOS と呼ばれる新機能ナノエレクトロニクスのデバイスの開発の進展につながる可能性がある。

③上記、継続と発展状況を示す研究成果に関連した主な成果論文リスト (4 報以内)

- 1) Tabata, H., Shimizu, M., Ishibashi, K., " Fabrication of single electron transistors using transfer-printed aligned single walled carbon nanotubes arrays", *Applied Physics Letters*, 95, art.no.113107 (2009)
- 2) Kawano, Y., Uchida, T., Ishibashi, K., " Terahertz sensing with a carbon nanotube/two-dimensional electron gas hybrid transistor " , *Applied Physics Letters*, 95, art.no.083123 (2009)
- 3) Moriyama, S., Tsuya, D., Watanabe, E., Uji, S., Shimizu, M., Mori, T., Yamaguchi, T., Ishibashi, K., " Coupled quantum dots in a graphene-based two-dimensional semimetal " , *Nano Letters*, 9, 2891-2896(2009)
- 4) Huang, S., Shin, S.-K., Fukata, N., Ishibashi, K., " A single-electron transistor and an even-odd effect in chemically synthesized Ge nanowires", *Journal of Applied Physics*, 109, art.no.036101(2011)

④その他

河野行雄（理研・研究員⇒専任研究員⇒東京工業大学・准教授）、牧英之（理研・基礎特研⇒慶応大学・専任講師）、森山悟士（理研・基礎特研⇒NIMS・研究員）、森貴洋（理研・協力研究員⇒産総研・特別研究員）などの昇任・異動等が見られ、これらの研究者はそれぞれ科研費を獲得している。

3.1.2 超高密度・超微細ナノドット形成とナノ物性評価技術（市川 昌和）

(1) 研究のねらいと研究期間中の達成状況

①研究のねらい

本研究では、研究代表者が見出した極薄 Si 酸化膜を用いたナノドット形成技術を基礎にして、Si 光素子実現のための材料プロセス技術の開発とそれに必要なナノ構造材料の物性評価技術の開発を目標とした。

②期間中の研究成果

(i) Ge ナノドット構造の形成と発光特性評価

極薄 Si 酸化膜を形成した Si (001) 表面に Ge ナノドットを形成し、Si 薄膜に埋め込む構造や、これらのプロセスを繰り返して超格子構造を色々な条件で作製し、発光強度を評価した。Ge ナノドットを積層したナノドット超格子から、室温において $1.5\mu\text{m}$ の波長領域においてピークを持つ、大きな強度の EL (エレクトロルミネッセンス) の観測に成功した。

(ii) GeSn、 $\beta\text{-FeSi}_2$ ナノドット構造の形成と発光特性評価

極薄 Si 酸化膜の方法を用いて多数のサイズの異なる $\text{Ge}_{0.85}\text{Sn}_{0.15}$ ナノドットを作製し、走査トンネル分光法 (STS) によりバンドギャップを測定した。明瞭なキャリアの量子閉じ込め効果を観測し、ナノドットの直径が 10nm 程度のときにバンドギャップが光通信波長帯の 0.8eV に増大することを明らかにした。

(iii) 個々のナノドットの電子・光物性の評価

STM を用いて半導体試料の近赤外領域の光吸収スペクトルを、極めて高いエネルギー分解能 (0.01eV) と空間分解能 (数 nm) をもって測定することのできる複数の方式の顕微分光技術 (STM-PAS) を開発した。2 種類のナノドット試料に対し応用し、GeSn ではサイズ閉じ込めによる離散化準位間の光吸収遷移を、 $\beta\text{-FeSi}_2$ では間接遷移吸収端の観測に成功した。

(iv) ナノドット間の伝導特性の評価

マイクロ 4 端子法や 4 探針 STM 法によりマイクロ・ナノスケール領域の電気伝導特性を評価する方法を発展させ、ナノドット間の伝導特性の評価を実施した。マイクロ 4 端子法により、エピタキシャルナノドットにおいては、Ge ナノドットと Si 基板の間で電子とホールのがやり取りが起こり、伝導特性を支配していることを明らかにした。さらに、4 探針 STM 法により、探針間の距離を変化させた伝導度の測定から、エピタキシャルナノドット間の伝導特性は 3 次元的であり、Si 基板と極薄 SiO_2 により分離している非エピタキシャルナノドットにおいては、伝導特性はドット間のみで電流が流れる 2 次元的であることを明らかにした。

(v) ナノドットの結晶構造観察

投射型の透過電子顕微鏡 (TEM) や走査型の TEM (STEM) を開発・利用することにより、

ナノドットの結晶構造と発光特性の関連を調べた。Ge ナノドットに関しては、成長後は Si 薄膜中において安定に存在すること、GeSn ナノドットでは、一様な混晶化が起こり格子歪が緩和していること、鉄シリサイドナノドットでは、界面に格子不整合転位を形成することなく歪んでおり、直接遷移化の可能性があることを明らかにした。また、球面収差を補正した 0.1nm の像分解能を持つ STEM を開発し、エネルギー損失分光法や特性 X 線分光法により、Si 薄膜中の Ge ナノドットの組成分布を 1nm の分解能で明らかにした。

③研究成果に関連した主な成果論文リスト（3 報以内）

- 1) Shklyayev, A., Cho, S-P., Nakamura, Y., Tanaka N., Ichikawa, M. “Influence of growth and annealing conditions on photoluminescence of Ge/Si layers grown on oxidized Si surfaces”, *Journal of Physics: Condensed Matter*, 19, 136004-1~8(2007)
- 2) Nakamura, Y., Masada, A., Ichikawa, M. “Quantum-confinement effect in individual $\text{Ge}_{1-x}\text{Sn}_x$ quantum dots on Si(111) substrates covered with ultrathin SiO_2 films using scanning tunneling spectroscopy”, *Applied Physics Letters*, 91, 013109-1~3 (2007)
- 3) Naruse, N., Mera, Y., Fukuzawa, Y., Nakamura, Y., Ichikawa, M., Maeda, K. “Fourier transform photo-absorption spectroscopy based on scanning tunneling microscopy”, *Journal of Applied Physics*, 102, 114301-1~6 (2007)

(2) プロジェクト終了後の継続と発展状況

①科学技術の進歩への貢献

(i) 本研究領域終了後に開始した科研費基盤研究 (B) の課題「ナノチャンネルヘテロエピタキシャル薄膜成長法の開発応用」(2008~2010 年度) の研究代表者として、本研究領域の成果である Si 基板上への Ge ナノドット (ND) 形成技術を発展させて、Si 基板上への Ge 等の薄膜成長技術の開発を行った。

・超高密度 Ge ナノドットを種結晶に用いた Si 基板上への薄膜形成法の開発¹⁾

Si 基板上に作製した極薄 Si 酸化膜を利用して形成した超高密度 Ge・ND を種結晶に用いて薄膜を形成するナノチャンネルヘテロエピタキシャル薄膜成長法の開発を行い、Ge, GeSn, GaSb, GaAlSb などについて平坦で欠陥の少ない良質の薄膜成形成に成功した。これらについて発光特性の評価を行いホトルミネッセンス (PL) やエレクトロルミネッセンス (EL) が観測できた。

(ii) 上記の科研費 基盤研究 (B) および中村芳明が代表研究者である科研費 若手研究 (B) 「 Fe_3Si 強磁性体ナノドットの形成とその磁性測定」(2007- 2008 年度) において、本プロジェクトの成果である Si 基板上への FeSi_2 ナノドット形成技術を発展させて Si 基板上への Fe_3Si ナノドット形成技術の開発を行った。

・Si 基板上への Fe₃Si ナノドット形成技術の開発²⁾

Si 基板上に作製した極薄 Si 酸化膜を利用して、数 nm 程度のエピタキシャル Fe₃Si ナノドットを超高密度に形成することに成功した。また、Fe₃Si・ND は扁平化すると強磁性—超常磁性転移温度が室温まで上昇することを発見した。室温で強磁性にできれば、将来、磁気メモリへの応用が可能である。

(iii) 上記の科研費基盤研究 (B) および中村芳明が研究代表者である科研費若手研究 (A) 「規則配列ナノドットを用いた歪制御した極小転位ヘテロエピタキシー」(2009– 2011 年度)において、本研究領域末期に開始した彌田チームとの共同研究であるブロック共重合体薄膜テンプレートを経たマスクとして活用した規則配列ナノドット (ND) の形成技術の開発を進めた。

・ブロック共重合体薄膜テンプレートを経た規則配列 ND の形成技術の開発⁴⁾

Si 基板上に作製した極薄 Si 酸化膜の上に、ブロック共重合体 (PEO-PMA(Az)) をスピコートして、PEO のシリンダー配列部を選択的にエッチング処理して、Si 酸化膜に規則配列したナノ開口を形成して、Ge の蒸着を行うことによって規則配列した Ge・ND の形成に成功した。本 ND には不整合転位が生じていないことや、積層によって三次元ナノ配列形成技術への展開の可能性のあることが分かった。将来、量子ドット太陽電池などへの応用の可能性がある。

上記のように、本研究領域終了後も、Si 基板上へ発光効率の大きい薄膜デバイスを開発して、Si 電子デバイスと Si 光デバイスの融合を目指した開発を推進した。また、測定技術の開発に関して、本プロジェクトの末期に装置が完成した STM-EL を STM-PL/EL 技術として完成し、GaAs/AlGaAs ヘテロ構造の蛍光解析等への活用を進めた³⁾。

②社会・経済的波及効果

大目標である、Si 基板上へ発光効率の大きいデバイスを開発して、Si 電子デバイスと Si 光デバイスの融合を目指した開発が地道に進められており、例えば将来 Si 基板上に発光効率の高い発光素子やレーザを作製できるようになれば、半導体間の光配線や論理演算や画像情報を一括して高速で処理可能な Si 光電子集積回路の実用化につながる可能性がある。

③上記、継続と発展状況を示す研究成果に関連した主な成果論文リスト (4 報以内)

- 1) Nakamura, Y., Miwa, T., Ichikawa, M., "Nanocontact heteroepitaxy of thin GaSb and AlGaSb films on Si substrates using ultrahigh-density nanodot seeds" *Nanotechnology*, 22(26), (2011), art.no. 265301
- 2) Nakamura, Y., Amari, S., Cho, S.-P., Tanaka, N., Ichikawa, M., "Formation and magnetic properties of ultrahigh density Fe₃Si nanodots epitaxially grown on Si(111) substrates covered with ultrathin SiO₂ films", *Japanese Journal of Applied Physics*, 50, art.no. 015501 (2011)

- 3) Watanabe, K., Nakamura, Y., Kuboya, S., Katayama, R., Onabe, K., Ichikawa, M., "Development of novel system combining scanning tunneling microscope-based cathodoluminescence and electroluminescence nanospectroscopies" *Japanese Journal of Applied Physics*, 50, art.no. 08LB18 (2011)
- 4) Nakamura, Y., Murayama, A., Watanabe, R., Iyoda, T., Ichikawa, M. "Self-organized formation and self-repair of a two-dimensional nanoarray of Ge quantum dots epitaxially grown on ultrathin SiO₂-covered Si substrates", *Nanotechnology*, 21, art.no.109803(2010)

④その他

市川は、2010 年 3 月で東京大学大学院工学系研究科を定年退官した。東京大学新領域創成科学研究科（特任教授）へ異動した（2010 年 10 月発行「物工同窓会誌」の「産官学の職場を体験して」）。さらに、2012 年 4 月に東京大学大学院工学系研究科（上席研究員）に異動し、人材育成に携わっている。

助教の中村芳明が、2008 年 10 月から大阪大学基礎工学研究科の准教授に昇任した。また、D2 の渡辺健太郎は、博士学位を取得後 NIMS 研究員として本研究領域から継続して計測技術の開発を行っている。

3.1.3 高信頼性ナノ相分離構造テンプレートの創製（彌田 智一）

(1) 研究のねらいと研究期間中の達成状況

①研究のねらい

本研究は、精密合成技術分野でトップダウンの超微細加工技術では実現困難であるデカナノ（～10nm）領域の構造を、機能分子から自在に形作る自己組織化材料作製プロセスを開発することを目的とした。

②期間中の研究成果

(i) ナノ相分離構造の製法確立

側鎖液晶型ブロック共重合体からなる高信頼性ナノ相分離テンプレート薄膜をマイクログラビア法により、大面積連続作製することに成功した。自己組織化という現象の利点である簡便性かつ大量生産性を最大限に活かした本手法により、高信頼性ナノ相分離テンプレートを誰にでも扱える形で提供するプロセスを確立した。

(ii) 合成材料のデータベース化

側鎖液晶型ブロック共重合体による垂直配向シリンダー型ナノ相分離構造の高配向・高配列性の起源を明らかにするために、分子構造同定、ナノ相分離構造評価(SAXS 等)、示差走査熱量計(DSC)測定による熱力学的解釈を行った。本研究領域期間内に得られた100種類以上にのぼる第1世代・第2世代ブロック共重合体に対し、上記測定を系統的に行うことにより、分子構造、ナノ構造、熱力学データのデータベース作製を行った。データベースの情報を基に、目的とするナノ構造を形成するための試料の選択、構造形成条件が選択されるようになっている。

(iii) ナノ相分離テンプレートの展開と応用

ナノ相分離テンプレート機能発現にむけた新ナノプロセスの開発として、①垂直配向PEO（ポリエチレンオキシド）ナノシリンダードメインの選択的ドーピング、②各種ナノ粒子のナノ相分離膜表面への位置選択的配置、③垂直配向PEOナノシリンダードメイン内をナノリアクターとして、ナノシリンダーに閉じこめた機能物質の化学反応の誘起、④垂直配向PEOナノシリンダーをエッチング剤のチャンネルとした基板表面へのヘキサゴナル配列の転写プロセスの開発を行った。

(iv) 多光束ビームによる屈折率周期ナノ構造体形成

多光束ビーム干渉では、その照射本数および入射角などにより様々な干渉パターンが発現する。光応答性と液晶性を有するモノマーに3本のレーザ干渉光を照射し、光重合することによって、周期的な光学的異方性を有する新しいタイプの高分子周期構造体フィルムの作製に成功し、その光学特性について評価した。

③研究成果に関連した主な成果論文リスト（3報以内）

- 1) Tian, Y., Watanabe, K., Kong, X., Abe, J., Iyoda, T. “Synthesis, Nanostructures, and Functionality of Amphiphilic Liquid Crystalline Block Copolymers with Azobenzene Moieties”, *Macromolecules*, 35, 3739-3747 (2002)
- 2) Watanabe, S., Fujiwara, R., Hada, M., Okazaki, Y., Iyoda, T. “Site-Specific Recognition of Nanophase-Separated Surfaces of Amphiphilic Block Copolymers by Hydrophilic and Hydrophobic Gold Nanoparticles”, *Angew. Chem. Int. Ed.*, 46, 1120-1123 (2007)
- 3) Komura, M., Iyoda, T. “AFM Cross-Sectional Imaging of Perpendicularly Oriented Nanocylinder Structures of Microphase-Separated Block Copolymer Films by Crystal-like Cleavage”, *Macromolecules*, 40, 4106-4108 (2007)

(2) 本研究領域終了後の継続と発展状況

①科学技術の進歩への貢献

(i) 本研究領域期間中から開始した科研費 基盤研究(S)「超異方性ナノシリンダー構造形成・転写過程のX線散乱一分光同時評価とダイナミクス」(2006- 2010 年度)の研究代表者として、高分子マイクロ相分離構造形成を“なすがまま”から“思い通り”の自己組織化プロセスに進化させ、ナノ構造製膜プロセスの最適化と指導原理を導くことを目指して、本研究領域の研究成果をさらに発展させた。具体的には、材料作製などにリアルタイムで効率よくフィードバックできる実験室仕様の薄膜小角 X 線散乱-分光同時測定システムを開発し、その活用により、高分子マイクロ相分離構造形成プロセスのダイナミクスの解析や高分子マイクロ相分離構造膜をテンプレートに用いた転写・複合化プロセスの開発を進めた。

・薄膜小角X線散乱一分光同時測定システムの開発²⁾

市販の薄膜X線小角散乱測定装置をベースに、同時測定用温度制御試料ステージの開発や光学系や検出器の改造等を行い、同時測定を可能とするとともに、シンクロトロンX線を用いなくても実験室装置のX線源を用いて測定できる装置を完成した。

・高分子マイクロ相分離構造形成プロセスのダイナミクスの解析¹⁾

ブロックコポリママイクロ相分離構造形成プロセスの解析を行い、液晶部位の配向・配列形成が垂直配向ナノシリンダーアレイ構造(NCA)を誘起することを明らかにした。同時に、液晶部位の化学構造の影響について検討し、NCA 構造の配向性・配列性の向上技術を開発した。

・垂直配向ナノシリンダーアレイをテンプレートに用いた転写・複合化プロセスの開発³⁾

- ・ 垂直配向 PEO (ポリエチレンオキシド) ナノシリンダーに選択的にドーピングするプロセスにより、シリカナノピラー配列体や金・銀・鉛・酸化鉄・RuO_x などのナノ微粒子配列体の作製に成功した。
- ・ 垂直配向 PEO ナノシリンダーを反応の場とすることにより、シリンダー形状の導電

性高分子アレイの作製に成功した。

- ・ 垂直配向 PEO ナノシリンダーをエッチングマスクとして用いることにより、シリコンウエハ表面への規則配列ピットの形成に成功した。

(ii) 科研費挑戦的萌芽研究「バイオテンプレート法によるマイクロコイル電波応答材料」(2010～2011 年度)の研究代表者として、単細胞微細藻類「スピルリナ」をテンプレートとする電磁波応答材料の開発を行い、テンプレートの範囲を本プロジェクトの成果であるブロック共重合体などの人工物からバイオ材料にまで広げた。

- ・ 単細胞微細藻類「スピルリナ」をテンプレートとする電磁波応答材料の開発⁴⁾

らせん形状の単細胞微細藻類「スピルリナ」をテンプレートとして、金属メッキによる微小マイクロコイルの作製に成功した。微小マイクロコイルは、直径・長さ・ピッチを関数として決定される特定周波数に共鳴する電磁誘導特性を得ることができる。

(iii) ERATO「彌田超集積材料」(2010～2015 年度)の研究総括として、ナノテンプレートを利用することで、各構成成分の精密な配置・配列を実現し、各成分同士の相互作用を精密に制御することで、単なる成分の足し合わせ以上の性質をもつ材料(超集積材料)の創出を目指した開発を開始している。

- ・ ナノテンプレートを利用による超集積材料の創出

ナノテンプレートを利用により、単なる成分の足し合わせ以上の性質をもつ超集積材料の開発を行う。なお、ナノテンプレートとしては人工的なものだけでなく微生物がもつような複雑な構造も利用し、より高度な相互作用の制御を目指すとしている。さらに、ナノテンプレートを利用した分子配線技術を開発し、分子で回路を作ることで、その回路自体が1つの新材料であるという概念も提唱している。

上記のように、本プロジェクト終了後も、本プロジェクトの成果である垂直配向ナノシリンダーアレイ(NCA)の創成およびそのテンプレートとして応用展開を、さらに範囲を広げて発展させている。

②社会・経済的波及効果

(i) 高分子ミクロ相分離構造膜をテンプレートに用いた転写・複合化プロセスの開発、およびテンプレートの提供による共同研究などによるテンプレート実用化の推進(2008 年 12 月 4 日 日経産業新聞、論文 3)

テンプレートに用いた転写・複合化プロセスの開発によるシリカナノピラー配列体、金・銀・鉛などのナノ微粒子配列体、導電性高分子アレイ、シリコンウエハ表面への規則配列ピット、ナノ立体配線の作製、並びに他の研究機関や企業へのテンプレートの積極的提供など、テンプレートの応用展開が推進されている。特に、企業へのテンプレートの提供等を通じた共同研究・共同出願等も積極的に行われており、実用化へ動きが活発である。

(ii) 高分子マイクロ相分離膜を用いたフィルターの開発 (2011 年 1 月 19 日 日経産業新聞)

高分子マイクロ相分離膜に紫外線を当てた後アセトンと水に浸して膜を基板からはがして、フィルターに利用する技術を開発し、水溶性の液体がシリンダー部を通過することを確認できた。一方、油性の液体はシリンダーを取り巻く部分を通過する。開発した膜は親水性のシリンダー部が貫通しているため、目詰まりし難く連続して高高率な分離が期待できる。さらに、シリンダー部の直径を数～数 10nm まで変えることにより目的に応じた物質だけを分離することが可能となるので、DNA やタンパク質などの分離への応用の可能性がある。

(iii) 本研究領域の成果を中心とする業績「高分子薄膜の構造制御と機能複合化に関する研究」に対して 2008 年度の高分子学会学会賞 (科学) を受賞した。

③上記、継続と発展状況を示す研究成果に関連した主な成果論文リスト (4 報以内)

- 1) Yoon, J., Jung, S.Y., Ahn, B., Heo, K., Jin, S., Iyoda, T., Yoshida, H., Ree, M., "Order-order and order-disorder transitions in thin films of an amphiphilic liquid crystalline diblock copolymer", *Journal of Physical Chemistry B*, 112, 8486-8495 (2008)
- 2) Komura, M., Watanabe, K., Iyoda, T., Yamada, T., Yoshida, H., Iwasaki, Y., "Laboratory-GISAXS measurements of block copolymer films with highly ordered and normally oriented nanocylinders", *Chemistry Letters*, 38, 408-409(2009)
- 3) Watanabe, S., Nakano, S., Imai, C., Laskar, I.R., Komura, T., Hadano, S., Iyoda, T., "A simple and convenient method to fabricate hexagonally ordered gold nanoparticle arrays using diblock copolymer micelle template", *Chemistry Letters*, 39, 902-904(2010)
- 4) Kamata, K., Suzuki, S., Ohtsuka, M., Nakagawa, M., Iyoda, T., Yamada, A., "Fabrication of left-handed metal microcoil from spiral vessel of vascular plant", *Advanced Materials*, 23, 5509-5513(2011)

④その他

浅岡定幸 (助教⇒京都工芸繊維大学 准教授)、小村元憲 (特任助教⇒助教)、鈴木幸光 (CREST 研究員⇒特任助教)、李晶澤 (CREST 研究員⇒中国電子科技大学(成都) 教授)、玉木亮子 (渡辺亮子) (学生⇒理研 研究員) と異動・昇任している。

中川勝 (准教授⇒東北大学多元物質科学研究所 教授)、渡辺茂 (高知大学 准教授⇒同教授)、吉田博久 (首都大学東京 准教授⇒同教授) に昇進している。

鎌田香織 (助教) がさがけ「構造機能と制御」2 期生として採択された (採択課題名:「高分子ナノシリンダーによるナノ回路・配線技術の開発」、2006～2009 年度)。

3.1.4 超高速・超並列ナノメカニクス（川勝 英樹）

(1) 研究のねらいと研究期間中の達成状況

①研究のねらい

振動検出方法としてヘテロダインレーザドップラー速度検出を提案し、走査型力顕微鏡（AFM）の高分解能化、高感度化、ならびに、AFM を用いた原子レベルの質量検出の実現を目標にした。

②期間中の研究成果

(i) 超高真空 AFM

カンチレバーの等価剛性の高い、高次モードを用いることにより、28pm(ピコメートル)のカンチレバーの振動振幅でシリコンの原子分解能撮像が可能であることを明らかにした。

(ii) 液中 AFM

液中において、光励振、光計測によって、原子分解能が達成可能であることを明らかにした。雲母表面に水が常温であっても数層の結晶構造をなしており、分のオーダーで水分子の吸着離脱が起こっていることを可視化した。カンチレバーのQ 値 (Quality factor) の極めて低い液中環境に適応した制御方法を実現し、ミクロンオーダーのステップ像と、原子分解能までの連続的ズームアップを可能にした。この成果は、生体試料の観察など、高いダイナミックレンジの要求される試料の観察に重要な技術になる。

(iii) カンチレバー

シリコンの異方性エッチングを用いて、幅 100nm 程度のナノワイヤから構成される、コンプライアントかつ高周波のカンチレバーを実現した。

原子数 10 層からなるグラフェン薄膜をカンチレバーおよび、四隅を支持した膜として実現し、光励振とドップラー計測でその振動を計測可能とし、カーボンナノチューブに代わる薄膜グラファイトによる質量計測の可能性を示した。

(iv) 超高真空 TEMA FM

走査型力顕微鏡を用いた原子レベルの質量検出を実現するために、透過電子顕微鏡内に AFM を配置した超高真空 TEMA FM を設計製作した。今後、TEMA FM を利用し、クラスターや分子を操作し、それに伴うカンチレバーの周波数変化から質量分解能を明らかにし、元素同定を可能にする予定である。

③研究成果に関連した主な成果論文リスト（3 報以内）

- 1) Kawai, S., Kitamura, S., Kobayashi, D., Meguro, S., Kawakatsu, H. “An ultrasmall amplitude operation of dynamic force microscopy with second flexural mode”, *Applied Physics Letters*, 86, 193107 (2005)
- 2) Kawaia, S., Kobayashi, D., Kitamura, S., Meguro, S., Kawakatsu, H. “An ultrahigh

vacuum dynamic force microscope for high resonance frequency cantilevers”,
Review of Scientific Instruments, 76, 083703 (2005)

(2) 本研究領域終了後の継続と発展状況

① 科学技術の進歩への貢献

(i) 科研費特別研究奨励費「走査型力顕微鏡の高度化」(2008～2009 年度)において、本プロジェクトで開発したヘテロダインレーザドップラー計と光熱励振を組み合わせた原子分解能液中原子間力顕微鏡の完成度の向上を行い、液中での脂質二重膜の高分解能観察を可能にした。特に、探針を横振りした場合も原子分解能の撮像が可能となっているため、その原理や制御系について検討を行った。さらに、フォースカーブを連続して取得し、3次元的にフォースマップを評価することによって、時間依存性、場所依存性を切り分けて評価するためのデータ取得プログラムも開発した^{1), 4)}。

(ii) 科研費基盤研究 (A)「高周波微小振動子による元素同定、質量検出および液中原子間力顕微鏡の実現」(2009～2011 年度)において、本研究領域で開発した計測装置の完成度の向上を図った。

・ 原子分解能液中原子間力顕微鏡の完成度の向上¹⁾

原子分解能液中原子間力顕微鏡の光学系の見直しを行い、光熱励振の効率の向上を図ると共に実効バネ定数の高い高次モードにおいても数オングストロームの探針先端振幅が得られるようにするなどの完成度の向上を行った。

・ 超高真空透過電子顕微鏡内走査型力顕微鏡の完成

本研究領域の末期に装置が完成した超高真空透過電子顕微鏡内走査型力顕微鏡に関して、グリーンレンズの色収差が大きく光熱励振と計測の両立が難しかった点を改善をするため、光学系の見直しを行い、適切な色消しレンズを選定することにより光励振と計測の両立を達成した。本装置を用いて、KBr の観察を行い探針を濡らす層が存在することや、シリコンの摩滅摺動の観察を行い抗力変調による摩滅が低減することなどを明らかにすることに成功した。

上記のように、本研究領域で開発した原子分解能液中原子間力顕微鏡および超高真空透過電子顕微鏡内走査型力顕微鏡について、そのハードウェア、ソフトウェア両面からの完成度の向上を図ると共に、液中での KBr や脂質二重層、あるいはグラファイト表面などの観察を進めている。また、並行して、カンチレバーの高性能化についても、Si 単結晶カンチレバーのエッチングによる極薄化の検討を行うなど、本プロジェクトから継続して推進している^{2), 3), 4)}。

② 社会・経済的波及効果

(i) 原子分解能液中原子間力顕微鏡および超高真空透過電子顕微鏡内走査型力顕微鏡の

両方の特許に日米の複数の装置メーカーが注目

本プロジェクト期間中に申請した特許の成立件数が 23 件（国内 6 件、海外 17 件）と非常に多い。また本研究領域終了後の出願についても 3 件が成立している（国内 1 件、海外 2 件）。本研究領域の終了報告書には、原子分解能液中原子間力顕微鏡および超高真空透過電子顕微鏡内走査型力顕微鏡の両方について、日米の複数の装置メーカーからライセンスに基づく新しい顕微鏡の実現の希望があると記載があり、ライセンスに基づく新しい顕微鏡の実現の可能性がある。

（ii）2008 年度の第 40 回市村学術賞功績賞を本研究領域の成果である業績「液中原子間力顕微鏡と水和構造可視化」に対して受賞した。水和は、生体分子の機能やダイヤモンドの電気特性など様々な物性に深く関わっているが、本成果により、その原子分解能観察が常温で可能になったことで、今後、様々な表面や分子に対する水の役割が高分解能の動的観察を通じて明らかになり、物性、材料、生体研究に大きく寄与することが期待されている。

（iii）本研究領域での業績に関連して、日本学術振興会（JSPS）より 2 度表彰を受けた。

・2006 年度 JSPS 167 委員会 ナノプローブテクノロジー賞 本賞 川勝英樹

「光励振機能を有するヘテロダイナミックドップラー計による高周波低振幅原子間力顕微鏡の実現」

③上記、継続と発展状況を示す研究成果に関連した主な成果論文リスト(4 報以内)

- 1) Nishida, S., Kobayashi, D., Sakurada, T., Nakazawa, T., Hoshi, Y., Kawakatsu, H., “Photothermal excitation and laser Doppler velocimetry of higher cantilever vibration modes for dynamic atomic force microscopy in liquid”, *Review of Scientific Instruments*, 79, art.no.123703(2008)
- 2) Nakagawa, K., Hashiguchi, G., Kawakatsu, H., ”Small single-crystal silicon cantilevers formed by crystal facets for atomic force microscopy”, *Review of Scientific Instruments*, 80, art.no.095104(2009)
- 3) Kawai, S., Kawakatsu, H., “Surface-relaxation-induced giant corrugation on graphite (0001)” , *Physical Review B - Condensed Matter and Materials Physics*, 79, art.no.115440(2009)
- 4) Hoel, A., Osaki, T., Takeuchi, S., Volz, S., Kawakatsu, H., ” Molecular resolution of a dioleoyl-Sn-glycero-phosphocholine lipid bilayer in liquid by phase modulation atomic”, *Applied Physics Letters*, 101, art.no.06117(2012)

④その他

川勝は現在、東京大学生産技術研究所の国際連携研究センター(フランス国立科学研究センターの国際共同研究組織)のセンター長に就任している。

3.1.5 位相差極端紫外光顕微鏡による機能性材料表面観察・計測技術（木下 博雄）

(1) 研究のねらいと研究期間中の達成状況

①研究のねらい

本研究は、2011 年までに次世代リソグラフィ技術である極端紫外線露光法を実用化するために、実マスク（吸収体パターンを有する最終マスク）上の欠陥ならびにマスクブランクス（6025 ガラス基板上に多層膜を形成した基板）の位相欠陥を 3 次元像として高精度に検出可能な位相差極端紫外光 (EUV) 顕微鏡システムを構築し、位相差極端紫外線リソグラフィ (EUVL) 用マスクの無欠陥化の道筋を明らかにすることを目的とした。

②期間中の研究成果

(i) 位相差極端紫外光顕微鏡システムの開発

照明光学系、顕微光学系、Mirau 干渉計、フォーカスセンサー、6 インチ角用試料ステージ、像観察用のズーム管とからなる EUV 顕微鏡システムを設計製作した。顕微光学系にはシュバルツシュルト光学系を採用し、30 μm 角の検査領域で 20nm の欠陥検出が可能となった。また、EUV 領域での Mirau 型の位相差干渉計を開発し、位相欠陥の 3 次元像形成を実現する。この方式では使用する波長の $\lambda/500$ の縦方向の分解能が得られるため、およそ 0.03nm の段差の 3 次元像を形成できる。X 線領域での干渉計測は今までに例がなく、この開発により新しい X 線応用が展開できる。さらに、ビームスプリッタを挿入したことで縦、横の NA が向上し、300nm のエルボパタンの解像を確認した。このように、EUV 領域で世界初のビームスプリッタの挿入による顕微光学系を実現した。

(ii) EUV ブランクスマスク評価

ガラス基板上に作成した高さ 1.5-10nm、幅 40 から 110nm、長さ 500 μm の擬似位相欠陥を観察した結果、幅 100nm、深さ 2.5nm の位相欠陥の観察は可能であった。このように極端紫外域での顕微鏡によりマスクの位相欠陥の検出が可能となり、高さ 1.5 nm から 2 nm の凹欠陥がガラス基板の凹欠陥の Critical Dimension であることが分かった。

(iii) 位相欠陥を有する実マスク評価

実マスクでの位相欠陥の影響を明らかにするために、予め位相欠陥をもつ多層膜基板上に吸収体パターンを形成したマスクを作成し、評価を進めた。この結果、位相欠陥の吸収体パターンに及ぼす影響を初めて、定性的にも定量的にも明らかにした。

位相欠陥と吸収体パターンとの幾何学的な係わり合いを定量的に評価した結果、Selete が同じマスクを用いた露光転写結果 (Berkeley MET-2) ともよく一致し、本装置が吸収体パターンの評価においても露光機並みの性能を示していることを証明した。

③研究成果に関連した主な成果論文リスト（3 報以内）

- 1) Kinoshita, H., Haga, T., Hamamoto, K., Takada, S., Kazui, N., Kakunai, S., Tsubakino, H., Shoki, T., Endo, M., Watanabe, T. "Actinic mask metrology for

extreme ultraviolet lithography”, *J. Vac. Sci. Technol.B*, 22, 264(2004)

- 2) Kinoshita, H., Hamamoto, K., Sakaya, N., Hosoya, M., Watanabe, T. “Aerial Image Mask Inspection System For Extreme Ultraviolet Lithography”, *Japanese Journal of Applied Physics*, 46, 6113-6117(2007)
- 3) Hamamoto, K., Tanaka, Y., Watanabe, T., Sakaya, N., Hosoya, M., Shoki, T., Hada, H., Hishinuma, N., Sugahara, H., Kinoshita, H., “Cleaning of extreme ultraviolet lithography optics and masks using 13.5 nm and 172 nm radiation”, *J. Vac. Sci. Technol.B*, 23, 247(2005)

(2) 本研究領域終了後の継続と発展状況

① 科学技術の進歩への貢献

(i) CREST 研究領域「次世代エレクトロニクスデバイス創出に資する革新材料・プロセス研究」(研究総括：渡辺久恒)の中の研究課題「コヒーレント EUV 光を用いた極微パターン構造計測技術開発」(2008～2012 年度)の研究代表者として、本研究領域に引き続いて、極端紫外線 (EUV) リソグラフィーの実用化に向けた計測技術の開発を推進している。

今回の研究領域では、より高精度な露光パタンの寸法計測ならびに欠陥観察が可能な計測技術の確立を目的に、スタンドアロン型の極短パルスレーザの高次高調波レーザからのコヒーレント EUV 光源と EUV スキャトロメトリー顕微鏡とを開発して融合することにより、サブナノ精度のパターン寸法計測および露光用マスク欠陥観察技術の構築を行っている。

・ 高次高調波 EUV コヒーレントスキャトロメトリー顕微鏡の開発⁴⁾

コヒーレントスキャトロメトリー (CSM) 顕微鏡の開発に関しては、CSM チャンバ、光学系、大面積 CCD カメラなどの開発を行い、高次高調波 EUV 光の発生と安定化に関しては、テーブルトップサイズの高出力フェムト秒レーザを用いて高出力の高次高調波発生の開発を行い、両装置の融合により完成した。L/S パタン中の線欠陥検出限界を、放射光 CSM の検出限界が 10nm であったのを、高次高調波 EUV コヒーレントスキャトロメトリー顕微鏡では 2nm まで大幅に向上することに成功している。

(ii) 科研費基盤研究 (B) 「EUV 干渉露光による 20nm 以下の極微パターン形成」(研究代表者：渡邊健夫) (2010-2012 年度)において、線幅 20nm 以下のレジストパターン形成を目的に、EUV 干渉露光系の開発を進めている。

・ 線幅 20nm 以下のレジストパターン形成のための EUV 干渉露光系の開発³⁾

2 光束干渉露光用透過型回折格子の高精度化、およびビームライン光学系のミラー枚数の低減等の開発や装置のクリーンルーム内への設置などにより、線幅 17.5nm のライン・アンド・スペースのレジストパタンの成形に成功した。

(iii) 位相差極端紫外光顕微鏡システムの展開

本研究領域で開発した位相差極端紫外光顕微鏡システムについて、本研究領域終了前後

から、Selete が開発した装置の利用実験を行い、各種欠陥の評価、ならびにイオンリペア装置での修正後のパタン検査などを進めた。

また、SEMATECH からの依頼を受けて、幅 20-200nm、深さ 1, 2, 4, 8nm の Pit 型欠陥マスク 4 枚を作成し提供した。この結果は SPIE の論文に掲載された。

さらに、2011 年度から東北大学の拡大系を本顕微鏡に取り付け、解像度の向上を図った。この成果は東北大学による EIDEC 向けの拡大系の試作に繋がった（2012 年 12 月 19 日 日経産業新聞他）。以上のように、本プロジェクトで開発した装置の展開を進めるとともに、今回の研究領域や科研費基盤研究(B)で、極端紫外線（EUV）リソグラフィの実用化に向けた新たな装置の開発を推進している。同時に、本研究領域に引き続いて、EUV リソグラフィ用の高感度・高解像度・低アウトガスレジストの開発・評価も着実に進めている²⁾。

②社会・経済的波及効果

(i) 極端紫外線リソグラフィの 2013 年から線幅 20nm 台のフラッシュメモリの量産化への適用の期待（木下博雄：応用物理 81(5), p391, (2012)、論文 1, 4)

木下は、1984 年に露光光源に極端紫外光（EUV）を用いる反射型露光システムを世界で初めて提案し、以来、極端紫外線リソグラフィの実現に向けて、本研究領域における「位相差極 EUV 顕微鏡システムの開発」や今回の研究領域における「高次高調波 EUV コヒーレントスキャトロメトリー顕微鏡の開発」など数々の開発成果を挙げた。

このような進展により EUV 露光システムは、2013 年から線幅 20 nm 台のフラッシュメモリへ適用できる技術レベルになり、量産化が実現すれば非常に大きな社会・経済的波及効果につながる。

(ii) 上記の状況に対応して、「極端紫外線リソグラフィ技術の先駆的研究と工業化への継続的貢献」に対して、2009 年に米国 EUVL 国際会議貢献賞、2010 年 9 月に応用物理学会フェロー表彰、11 月に第 10 回材料科学技術振興財団山崎貞一賞および兵庫県科学賞、2011 年 4 月に文部科学大臣表彰科学技術賞（研究部門）、2012 年に米国の The Optical Society から Joeseeph Fraunhofer Award と相次いで受賞するなど、大きな脚光を浴びている。

(iii) 兵庫県立大学高度産業科学技術研究所に「EUV リソグラフィ研究開発センター」が開設

EUV リソグラフィに関して、本研究領域におけるマスク検査の位相差 EUV 顕微鏡の開発、および今回の研究領域における高次高調波 EUV コヒーレントスキャトロメトリー顕微鏡の開発や継続的なレジストの開発を行ってきたが、日本企業の占有率が EUV のマスクは 100%、レジストは 70%と高いことなどから、今後の EUV のデバイス開発などの支援のため、2010 年 10 月に兵庫県立大学高度産業科学技術研究所に「EUV リソグラフィ研究開発センター」が開設され、木下がセンター長に就任した。次世代半導体デバイスの開発に大きな役割を果たすことが期待されている。

③上記、継続と発展状況を示す研究成果に関連した主な成果論文リスト(4 報以内)

1) Kamaji, Y., Takase, K., Yoshizumi, T., Sugiyama, T., Uno, T., Watanabe, T.,

- Kinoshita, H., "Study of critical dimensions of printable phase defects using an extreme ultraviolet microscope", *Japanese Journal of Applied Physics*, 48, 06FA071-06FA074 (2009)
- 2) Shiono, D., Hada, H., Sato, K., Fukushima, Y., Watanabe, T., Kinoshita, H., "Lithographic evaluation of chemically amplified molecular resist for below 22nm resolution", *Journal of Photopolymer Science and Technology*, 22, 737-741(2009)
 - 3) Fukushima, Y., Sakagami, N., Kimura, T., Kamaji, Y., Iguchi, T., Yamaguchi, Y., Tada, M., Harada, T., Watanabe, T., Kinoshita, H., "Development of extreme ultraviolet interference lithography system", *Japanese Journal of Applied Physics*, 49, 06GD061-06GD065(2010)
 - 4) Nakasuji, M., Tokimasa, A., Harada, T., Nagata, Y., Watanabe, T., Midorikawa, K., Kinoshita, H., "Development of coherent extreme-ultraviolet scatterometry microscope with high-order harmonic generation source for extreme-ultraviolet mask inspection and metrology", *Japanese Journal of Applied Physics*, 51, art.no.06FB09(2012)

④その他

渡邊健夫（助教⇒准教授）が昇任し、科研費基盤研究 B を獲得している。

3.1.6 ナノ構造解析のための立体原子顕微鏡の開発（大門 寛）

(1) 研究のねらいと研究期間中の達成状況

①研究のねらい

原子配列構造を理論計算の援用なく直視し、立体的に解析できる顕微鏡を開発するため、「立体原子顕微鏡」の技術を確立し、より簡便に測定できる小型で高性能の分析器を製作するとともに、見たいところを選べるようにするため、低倍率での顕微鏡像も得られる顕微鏡機能システムの基礎的な開発を進めることを目指した。

②期間中の研究成果

(i) 検証実験

従来、s 軌道からの光電子は角運動量が小さいので観測には不向きであったが、s 軌道しか持たない元素（炭素、ボロン）について実験を行い、グラファイトやダイヤモンドおよびダイヤモンドに微量にドーパされたボロンの立体原子写真の撮影に成功した。このことは、測定対象元素には制限が無いことを示しており、立体写真の技術の応用性を大きく高めた。

(ii) 小型分析器の製作

多くの人にとって使いやすい小型で高性能の分析器の作成を目標として、改良を行った。小型でもエネルギー分解能の高い分析器とするため、多くの電極をもつマシナブルセラミック（快削性セラミック）製の外球を作製した。電極の数を従来の 26 から 156 に増やし、滑らかさを増すことによって分解能を高めた。また、組み立て式のフィラメントの交換が容易な小型電子銃を設計・製作して、SEM（走査電子顕微鏡）像をとり、これから $12\mu\text{m}$ の分解能が得られることを確認した。

(iii) 顕微鏡機能の開発

広角対物レンズを含むレンズシステムを試料と分析器の間に挿入することにより、微小領域の解析ができるようになり、各種分析や基礎物性の解析に適用しやすくした。試料に面するところに、回転楕円体に近い形状のメッシュを置くことにより、 $\pm 50^\circ$ の広い範囲の電子をほぼ一点に収束することに成功した。この広角対物レンズにより、5 倍の拡大像が観測され、分解能は $23\mu\text{m}$ 以下を達成した。回転楕円体メッシュの高精度作成法を種々検討している。上記の開発した広角対物レンズを基にしたレンズシステムと全体を組み合わせた顕微鏡機能を持つシステムを設計製作した。

③研究成果に関連した主な成果論文リスト（3 報以内）

- 1) Matsuda, H., Daimon, H., Kato, M., Kudo, M. “Approach for simultaneous measurement of two-dimensional angular distribution of charged particles: Spherical aberration correction using an ellipsoidal mesh”, *Phys. Rev. E* 71, 066503-1-8, June (2005)

- 2) Daimon, H., Matsuda, H., Toth, L., Matsui, F., “Stereo-PEEM for three-dimensional atomic and electronic structures of microscopic materials”, *Surface Science*, 601, 4748-4758, October (2007)
- 3) Kato, Y., Matsui, F., Shimizu, T., Daimon, H., Matsushita, T., Guo, F.Z., Tsuno, T., “Dopant-site effect in superconducting diamond (111) studied by atomic stereo-photography”, *Appl. Phys. Lett.*, 91, 251914 (2007)

(2) 本研究領域終了後の継続と発展状況

①科学技術の進歩への貢献

(i) 科研費基盤研究 (S)「微小領域二次元電子分光」(2008～2012 年度)において、引き続き、顕微鏡機能を使って試料の拡大像を観測し、微小領域だけからの二次元光電子分光を行い、微小領域の電子状態と原子構造を立体的に観測することを目的として、本研究領域で開発した立体光電子顕微鏡 StereoPEEM (PhotoEmission Electron Microscope) の完成度の向上、及び本研究領域で新しく発明した楕円メッシュ二次元分析器の完成を推進している。

・立体光電子顕微鏡 StereoPEEM の完成度の向上²⁾

立体光電子顕微鏡の完成度の向上に関して、X線を集光するミラーの反射率が悪いので、反射率を高めるために、多層膜ではなくて湾曲結晶を用いる検討を進めている。

・楕円メッシュ二次元分析器の完成^{1), 4)}

楕円メッシュ二次元分析器の完成に関して、「楕円全体の形の精度」を高めるため、これまで行ってきた金網を型に押しつける手法だけでなく機械加工で曲面に穴を開ける手法の検討も行うと共に 3 次元高精度加工機の導入を行い、10 μm 程度の精度での加工に成功した。装置を放射光施設 (SPring-8) に設置して、放射光を励起光として実験を行い、光電子分光のピーク幅から全分解能を見積もり 0.2% という高い値を確認することができた。試料の拡大像も 25 ミクロンの分解能で得ることができ、角度分布も $\pm 45^\circ$ 度までの角度分布がきれいに測定できるようになった。本装置を用いて、Si (111) 5×2 -Au 表面の 3 次元電子エネルギーバンドの詳細な測定に成功した。また、ポリ Si からの Si2p 光電子回折パターンの 2 次元マッピング、および微小試料である 100 ミクロンサイズの単層グラフェンからの光電子回折パターン取得に成功した。これらの光電子回折パターンは、直線偏光で測定したものであるために立体写真にはなっていないが、今後 1 年以内にビームラインの整備を進めて円偏光が出せるようにするので、その時には原子構造が立体的に観測できるようになるとのことである。これらのことから、微小領域の電子状態と原子構造を立体的に観測する装置の開発という当初の目的が達成されたと言える。

・光電子ホログラフィーの完成度の向上³⁾

ハードウェアとソフトウェアの両面からの完成度の向上を図り、Cu や InP において、高精度の光電子ホログラムおよびオージェ電子ホログラムの取得に成功し、同時に高精度の

原子配列を得るプログラムも共同研究者によって開発され、立体的な原子構造を立体写真よりもはるかに精度良く得る手法の開発にも成功した。

(ii) 以上のように、科研費基盤研究 (S) により、本研究領域で開発した立体光電子顕微鏡 StereoPEEM や楕円メッシュ二次元分析器の完成を進めると共に、光電子ホログラフィーについても完成度の向上を図っている。並行して、これらの計測装置を用いて、Si 表面上に蒸着した金属や化合物、およびグラフェンなど各種物質の表面について、原子配列や電子状態の解析を精力的に行っている。

②社会・経済的波及効果

(i) ゲーム機「ニンテンドー3DS」を使って原子構造の立体画像の体験

ゲーム機「ニンテンドー3DS」を使って原子構造の立体画像を見ることができる技術を開発して、インジウムリン結晶、タングステン結晶、グラファイト結晶などの画像をホームページから無料でダウンロードできるようにした。これにより、これまで一部の研究者に限られていた原子の立体視を、より多くの人が体験できるようになった。本技術では元素ごとの構造解析が直接できるので、ニーズが高まるレアメタルの代替物質など新物質の開発にも役立つ。大門は、小学生でも原子の世界を体験できるようになり、理科好きな若者の増加にも貢献することを期待している。

(ii) 「広角対物レンズ」や「回転楕円体メッシュレンズ二次元表示型分析器」の実用化の推進 (2011 年 7 月 11 日 共同通信)

本研究領域期間中に願した特許の成立件数が 5 件 (国内 3 件、海外 2 件) となっている。研究最終報告書には、「広角対物レンズ」については外国企業と特許実施準備契約を結んだことや「回転楕円体メッシュレンズ二次元表示型分析器」についてはベンチャー企業を設立して実用化を進めていることもあり、実用化への動きが活発である。

(iii) 本研究領域の成果である「円偏光放射光を利用した立体原子写真法の研究」に対して、2008 年度の文部科学大臣表彰科学技術賞 (研究部門) を受賞した。さらに、業績「放射光二次元光電子分光の開発」に対して、2010 年度の日本表面科学会学会賞を受賞した。これは、「二次元表示型球面鏡分析器」を発明し、固体表面の原子構造・電子状態の研究に関して独自の領域を切り拓いたこと、原子配列の立体写真を撮る手法を発明して原子配列を 10 億倍に拡大して直視できるようにしたことが評価された。

③上記、継続と発展状況を示す研究成果に関連した主な成果論文リスト (4 報以内)

- 1) Toth, L., Matsuda, H., Daimon, H., "Simple method for making deeply curved mesh", *Journal of Electron Spectroscopy and Related Phenomena*, 171,64-67, (2009)
- 2) Matsui, F., Matsushita, T., Daimon, H., "Stereo atomscope and diffraction spectroscopy-Atomic site specific property analysis", *Journal of Electron Spectroscopy and Related Phenomena*, 178-179, 221-240 (2010)

- 3) Matsushita, T., Matsui, F., Daimon, H., Hayashi, K., "Photoelectron holography with improved image reconstruction", *Journal of Electron Spectroscopy and Related Phenomena*, 178-179, 195-220 (2010)
- 4) Goto, K., Matsuda, H., Hashimoto, M., Nojiri, H., Sakai, C., Matsui, F., Daimon, H., Toth, L., Matsushita, T., "Development of display-type ellipsoidal mesh analyzer", *e-Journal of Surface Science and Nanotechnology*, 9, 311-314(2011)

④その他

服部賢（准教授）、松井文彦（助教）、武田さくら（助教）など、特に異動はないが、それぞれ科研費を獲得している。

3.1.7 高機能ナノ立体構造デバイス・プロセス（松井 真二）

(1) 研究のねらいと研究期間中の達成状況

①研究のねらい

本研究課題は、集束イオン・電子ビーム励起反応堆積技術(FIB・EB-CVD)を用いて、ナノ立体構造形成プロセス技術の開発および「高機能ナノ立体構造電子・機械・光・バイオデバイス」の創生を目的とした。

②期間中の研究成果

(i) ナノ立体構造形成技術

自由立体ナノ造形を可能とする3次元描画システムを独自開発した。3D-CADで作成したサーフェースモデルからスキャンデータ（スライスデータおよびボクセルデータに分割）に変換させ、FIB-CVDで離散的に描画することでFIB-CVDにより、任意の立体構造物を造形する立体ナノ構造描画システムのハードおよびソフトを独自開発した。

(ii) 材料構造物性評価

フェナントレンをカーボンソースとして用いてFIB-CVD法で作製した薄膜の基本構造がイオン源に用いたGaを含むダイヤモンドライクカーボン(DLC)膜であることを確認した。

AuまたはSiイオンを用いたFIB-CVD法による堆積物形成のGaを用いた場合との違いはどのように現れるかを明らかにするために、フェナントレンガス雰囲気下でのAuまたはSiFIB照射による堆積物形成の確認と、イオン種による堆積物形成プロセスの違いや堆積物の物性の評価を行った。

(iii) 立体ナノ構造特性評価

ナノピンセットによる細胞オルガネラの操作や、ナノ振動子による微量物質検出など、いずれの場合も機能の最適化には、ナノ構造体の硬さを十分に制御する必要があるが、FIB-CVD構造体はタングステンカーバイドを凌駕する硬さを有していることを明らかにした。FIB/EB-CVDにより形成したアモルファスカーボン中を動く鉄微粒子の移動に伴うカーボンナノ構造体固相反応からCNTの成長メカニズム解明に関わる現象を見出した。本技術を用いることにより、任意の位置、方向、長さ、さらには直径をもつCNTを形成できる可能性があり、電子デバイスやセンサーなどへの応用が期待できる。

(iv) 立体ナノ構造形成の応用

FIB-CVDにより以下の立体ナノ構造体を試作し、応用の可能性を示した。

・空中配線

集束イオンビーム装置に計算機制御パターン描画発生装置を付加してビームのスキャン方向と速度、ブランキングを制御することにより、ナノスケールの空間内に堆積物を成長

させる 3 次元ナノ配線作製を行った。さらに、各デバイス間を空中配線で相互接続することで、3 次元情報ネットワーク実現の可能性を示した。

・微小電子エミッタ

2 端子電極を有したガラスキャピラリー上に FIB-CVD を用いて微小電子エミッタの作製を行った。冷陰極である DLC チップ先端の曲率半径は 50nm であり、DLC チップ先端と DLC アノードの距離は 500nm である。電界電子放出特性評価を行った結果、180V を閾値電圧として電子放出が起こった。

・静電アクチュエータ

静電反発力を利用したナノピンセットを作製・評価した。電圧印加によってコイル構造に蓄積した電荷が、コイル構造が周期的に重なっているため静電的に反発し、電圧を ON/OFF することで伸縮するアクチュエータとして機能させることができる。このコイル型静電アクチュエータの伸びを 0-500V の範囲で制御することができた

・ナノコイル

FIB-CVD による独自の立体ナノ構造形成技術を用いて、3 次元ナノシステム (NEMS) の基本構成部品として重要である、世界最小の DLC ナノスプリングの作製に成功した。DLC ナノスプリング特性は、横弾性係数 70GPa、ヤング率 184GPa と通常の鋼スプリングと同様の高強度・高弾性およびマイクロメートルの伸縮特性を示し、その実用性を実証した。

・バイオナノツール

バイオ・ナノインジェクターの先端を目的に合った形状にすることにより、細胞内の細胞小器官などに直接、選択的に試薬などを注入することも可能になると考えられる。さらに、バイオ・ナノインジェクターは注入、吸引プロセスを細胞小器官の大きさや形状に合わせて精確に作製できるので、実験精度の向上が期待できる。これまでの市販のガラスキャピラリー先端径は $1-0.5\mu\text{m}$ であるが、FIB-CVD により先端径 100-30nm のバイオ・ナノインジェクター作製を可能にした。

③研究成果に関連した主な成果論文リスト (3 報以内)

- 1) Kometani, R., Funabiki, R., Hoshino, T., Kanda, K., Haruyama, Y., Kaito, T., Fujita, J.-i., Ochiai, Y., Matsui, S., “Cell wall cutting tool and nano-net fabrication by FIB-CVD for subcellular operations and analysis”, *Microelectronic Engineering*, 83, 1642-1645(2006)
- 2) Ichihashi, T., Fujita, J., Ishida, M., Ochiai, Y. “In situ Observation of Carbon-Nanopillar Tubulization Caused by Liquidlike iron Particles”, *Phys. Rev. Let.*, 92, 25702-1-25702-4(2004)
- 3) Hoshino, T., Watanabe, K., Kometani, R., Morita, T., Kanda, K., Haruyama, Y., Kaito, T., Fujita, J., Ishida, M., Ochiai, Y., Matsui, S. “Development of Three-Dimensional Pattern-Generating system for Focused-Ion-beam Chemical

Vapor Deposition”, *J. Vac. Sci. Technol.*, B21, 2732-2736 (2003)

- 4) Morita, T., Kometani, R., Watanabe, K., Kanda, K., Haruyama, Y., Hoshino, T., Kondo, K., Kaito, T., Ichihashi, T., Fujita, J.-I., Ishida, M., Ochiai, Y., Tajima, T., Matsui, S., “Free-space-wiring fabrication in nano-space by focused-ion-beam chemical vapor deposition”, *Journal of Vacuum Science and Technology B: Microelectronics and Nanometer Structures*, 21, 2737-2741 (2003)

(2) 本研究領域終了後の継続と発展状況

①科学技術の進歩への貢献

(i) 科研費基盤研究 (B) 「集束イオンビーム 3 次元ナノ構造形成によるバイオナノツールの作製と評価」 (2008- 2010 年度) において、集束イオンビーム (FIB-CVD) 3 次元ナノ構造形成の応用検討を、本研究領域に継続して推進した。

・集束イオンビーム 3 次元ナノ構造形成によるバイオナノツールの作製と評価^{1), 2)}

神経成長阻害バイオナノツールをガラスキャピラリー先端部に FIB-CVD により作製した。最初に、バイオツールとしては Ga は含まれていないことが好ましいことから、原料ガスを交換することで Fe 含有ダイヤモンドライクカーボン (DLC) を作成し、アニールによる Ga 除去の検討を行った。次いで、ヤング率測定により 100GPa と十分な機械的強度を有することを確認した。最終的に、実際のバイオ実験に使用し、操作性、強度共に有用に機能することを実証することに成功した。

さらに、上記の検討を進める中で、FIB-CVD による立体ナノ構造作製はスループットが低いことが大きい問題であるため、これを解決するために、FIB-CVD によって作製した立体ナノ構造をモールドとしたナノインプリントによる複製転写技術の開発に課題を発展させた。

・FIB-CVD による立体ナノ構造をモールドとしたナノインプリント複製転写技術の開発

(Conference Paper: *Journal of Vacuum Science and Technology B: Microelectronics and Nanometer Structures*, 29(1), pp. 0110051-0110055)

FIB-CVD とナノインプリントを組み合わせることにより、従来の 2 次元転写から 3 次元転写へと発展させた。具体的には、立体ナノ構造体をモールドにして、柔軟性のあるポリジメチルシロキサン (PDMS) のレプリカモールドに転写したのち、レプリカモールドを用いて、UV 硬化性樹脂、室温硬化性樹脂、UV&熱硬化樹脂の 3 種類の樹脂についてナノインプリント技術の開発を行い、3 次元ナノインプリントが可能であることを実証した。

(ii) 科研費 新学術領域研究 (研究領域提案型) 「分子ナノシステムの創発化学」の中の課題「ナノインプリントによる機能性分子のナノ空間自己組織化制御」(2008~2012 年度)の研究代表者として、本格的にナノインプリントの技術開発に取り組んでいる。

- ・ナノインプリントによる光反応性高分子液晶への L&S パターン転写と配向制御技術の開発³⁾

電子ビーム描画技術を用いて、ナノモールドを作製するために、高分解能無機レジストを用いてナノリソグラフィの研究を行い、線幅 30 nm までの加工に成功した。さらに、ナノインプリント装置を用いて、室温ナノインプリントを行い、良好なナノインプリントモールドの作製に成功した。上記のモールドを用いて、光反応性高分子液晶をスピンコートした基板を 150℃まで昇温し熱ナノインプリントを行い、L&S パターンをきれいに転写することに成功した。さらに、転写されたパターンを偏光顕微鏡で観察し、光反応性高分子液晶がラインと平行に配向していることが確認できた。

(iii) CREST 研究領域「次世代エレクトロニクスデバイス創出に資する革新材料・プロセス研究」(研究総括：渡辺久恒) の中の研究課題「超高速ナノインプリントリソグラフィ技術のプロセス科学と制御技術の開発」(2008～2012 年度) の研究代表者として高スループットナノインプリント技術の開発を進めている。

- ・高スループットナノインプリントリソグラフィ技術の開発⁴⁾

高スループット化を目標に、まず、UV 硬化樹脂を用いる UV ナノインプリントプロセスを選択した。次に、繰り返しナノインプリントを行う際に必須となる離型性の向上と樹脂の高速充填を可能とする技術として、凝縮性ガス(ペンタフルオロプロパン：PFP) 雰囲気中でのナノインプリント技術を開発した。さらに、本技術において、樹脂が PFP を吸収しやすいと硬化収縮が大きくなり成形樹脂表面が粗くなることから、PFP を吸収しにくいラジカル重合型アクリレート系光硬化性樹脂を開発し、23nm ラインパターンの形成に成功した。

以上のように、本研究領域の成果であるの FBI-CVD 法によるナノ立体構造形成と応用技術の開発から、ナノインプリント法によるリソグラフィへと開発課題を発展させている。

②社会・経済的波及効果

- (i) ナノ立体構造形成に使える「高速集束イオンビーム装置」の市販

2007 年 8 月 30 日 日経産業新聞に「ナノ立体構造物、観察しながら作製、兵庫県立大学など開発、微小部品向け装置」という記事が掲載された。その中に「SII ナノテクノロジー株式会社が販売中の『集束イオンビーム・SEM 複合装置』に組み込んで立体構造物を作れるようにするユニットを 3 年以内に製品化したい考え」と記載があったが、その後新製品としてナノ立体構造形成に使える「高速集束イオンビーム装置 SMI4050」の販売が行われている。

- (ii) 松井は、2008 年に、業績「電子・イオンビームを用いた超微細加工技術の研究」に対して、第 2 回(2008 年度) 応用物理学会フェロー表彰を受賞した。

- (iii) 兵庫県立大学高度産業科学技術研究所に「ナノインプリント研究開発センター」が開設

ナノインプリント技術は、凹凸のパタンを形成したモールドを基板上の液状ポリマー等へ押し付け、パタンを転写することにより、10nm レベルの構造体を安価に大量生産でき、かつ高精度化が可能となりうる技術として注目を浴びており、光素子や半導体あるいはナノ構造材料成形等新たな応用へ展開しようとする試みが精力的に進められている。このようなナノインプリント技術への大きな期待に対応して、2010 年 10 月に兵庫県立大学高度産業科学技術研究所に「ナノインプリント研究開発センター」が開設され松井がセンター長に就任した。ナノインプリント技術のさらなる研究開発及び産学連携を推進する拠点となることが期待されている。

③上記、継続と発展状況を示す研究成果に関連した主な成果論文リスト(4 報以内)

- 1) Kanda, K., Igaki, J.-Y., Saikubo, A., Kometani, R., Suzuki, T., Niihara, K., Saitoh, H., Matsui, S., "Effects of annealing on material characteristics of diamond-like carbon film formed by focused-ion-beam chemical vapor deposition", *Japanese Journal of Applied Physics*, 47,7464-7466 (2008)
- 2) Matsui, S., Kometani, R., "Bio nano-tool fabrication by focused-ion-beam chemical vapor deposition and its application", *IEEE Transactions on Electronics, Information and Systems*, 129, 204-207(2009)
- 3) Okada, M., Manabe, S., Kurita, M., Kondo, M., Haruyama, Y., Kanda, K., Emoto, A., Ono, H., Kawatsuki, N., Matsui, S., "Thermal nanoimprinting on prealigned photoreactive polymer liquid crystal for molecular reorientation", *Japanese Journal of Applied Physics*, 49, art.no.128004(2010)
- 4) Iyoshi, S., Okada, M., Katase, T., Tone, K., Kobayashi, K., Kaneko, S., Haruyama, Y., Nakagawa, M., Hiroshima, H., Matsui, S., "Step and repeat ultraviolet nanoimprinting under pentafluoropropane gas ambient", *Japanese Journal of Applied Physics*, 51, art.no.06FJ08 (2012)

3.2 2003 年度採択課題

3.2.1 カーボンナノチューブ形成過程その場観察と物性制御への展開（本間 芳和）

(1) 研究のねらいと研究期間中の達成状況

①研究のねらい

CNT の成長過程を原子スケールでその場観察し、その結果に基づいて、CNT の形成位置・成長方向および得られる CNT の物性を制御して成長できる技術の可能性を追求することを主な目的とした。

②期間中の研究成果

(i) SEM による CNT 成長過程解析

走査電子顕微鏡 (SEM) による CNT 成長の CVD その場観察を実現するため、数十 Pa の圧力下、および、1kV 以下での低速 SEM 観察、アルコールを用いた 600~800℃での CVD 成長を可能とする環境制御型 SEM 装置を開発した。これにより、単層 CNT 成長の連続観察に成功し、微細構造間を電線のように結ぶ架橋 CNT の形成過程を解析し、CNT の伸長中に方向が揺らぐため、自己組織化的に最近接の構造間を架橋することを明らかにした。また、基板上での成長初期過程の観察から、殆どの CNT の先端が基板に接触せずに成長が始めるが、約 100nm 以上の長さになると、大部分が基板表面に倒れ込むことなども明らかになった。

(ii) TEM による CNT 成長過程解析

透過電子顕微鏡 (TEM) による CNT 成長の CVD その場観察に関しては、最大加速電圧 200kV の電界放射型・透過電子顕微鏡をベースにして、電子銃などの鏡筒内を高真空に保ちつつ、試料の周囲には高い圧力のガス (2kPa 以上) を充たすことができる装置を開発した。この環境電顕を利用して CNT の生成と成長過程のリアルタイム観察に成功し、シリコンナノワイヤーが CNT の生成をその場観察する上で極めて有用な触媒の担体になることを示し、さらに触媒微粒子と CNT の直径の関係を統計的に調べることで、触媒の直径は CNT の直径と等しいか大きいことを明らかにした。

(iii) 分光による CNT 成長過程解析

フォトルミネッセンス (PL) による単一 CNT のカイラリティ計測や CVD 成長過程のその場ラマン分光計測法を開発した。また、X 線光電子分光法を CVD 中の触媒の化学状態解析に適用した。この結果、CNT の周辺環境によるラマン振動数の系統的な変化の解明や、一本の架橋 CNT が形成される過程の観測に成功した。

(iv) CNT 形成機構の解明

CNT 生成の触媒作用を持たないと考えられていた金・銀・銅のナノ粒子を活性化する方法を見だし、単層 CNT の合成に成功した。また非金属である、SiC、Si、Ge のナノ粒子

を用いても CNT が合成できることを示した。さらに、結晶性触媒粒子からのエピタキシャル成長により CNT のカイラリティ制御を行える見通しを得た。

(v) CNT 形成・特性制御

上記の電子顕微鏡および分光によるその場観察からの知見を、架橋 CNT などの CNT 構造物の形成に応用し、構造物形成の制御性を高めた。また、CNT の特性に対する電子線照射効果の解析から、電子線照射を CNT デバイス特性の変調に利用できることを示した。

- ・架橋過程、バンドル形成過程の解析に基づき、単一 CNT だけからなる架橋構造の形成効率を向上した。これら単一架橋 CNT は、単一 CNT 分光や発光に対する環境効果の計測に有用であった。
- ・基板上での成長初期過程の解析から、短い (100~300 nm) 単一 CNT を基板に直立させて形成することを可能にした。
- ・低エネルギーの電子線照射による欠陥生成を利用して、金属的な特性の CNT から p 型の半導体としてのデバイス特性を得た。これはカイラリティや直径を変化させたことと電気的には同等の効果である。

(vi) CNT ネットワークの機能化

将来の機能化ナノ配線を一つのモデルとして、その基盤技術を開拓することを中心軸に CNT 機能化を検討した。本研究領域開始当初は、機能化配線の適用分野として電子デバイス、特に LSI への応用を主体に考えたが、完成度の高い Si 集積回路に適用されるのはかなり先のこととなるので、機能化配線の適用としてナノバイオテクノロジーへ課題の中心軸をシフトさせた。機能化では分子マニピュレーションが必須であるため、走査プローブ顕微鏡 (SPM) を用いた分子操作・CNT 操作を検討した。

- ・CNT ネットワークの高機能化：CNT 三次元ネットワーク形成と機能性ナノチューブ成長へ向け、化学気相成長 (CVD) において CNT の接木、ナノウォール/CNT 複合構造形成、などを行った。また、固体表面への CNT 分散において、基板/CNT 及び CNT/CNT 相互作用の制御を行い、分散に適した基板表面と分散剤の条件を明らかにした。
- ・CNT 表面の高機能化：CNT 表面化学状態制御、及び単分子パターンニングへ向けた基本技術を開拓し、CNT の医療応用を開始した。
- ・走査プローブによる高機能化：トップダウンの CNT ネットワーク形成に向けた CNT 水平方向マニピュレーションとともに、架橋 CNT の機械的振動の検出に向けた垂直操作技術を確立した。また関連技術として生体分子の固体基板上への固定・吸着力評価等を実施した。
- ・高機能化 CNT 集積へ向けた基盤技術：生体機能移植に不可欠な脂質二重膜の形成技術を確立し、固体表面の構造制御による膜構造の制御を開拓した。また、ナノ空間材料としてのポーラスアルミナ形成を行った。

③研究成果に関連した主な成果論文リスト (3 報以内)

- 1) Takagi, D., Hibino, H., Suzuki, S., Kobayashi, Y., Homma, Y., “Carbon nanotube growth from semiconductor nanoparticles”, *Nano Lett.*, 7, 2272-2275 (2007)

- 2) Takagi, D., Homma, Y., Hibino, H., Suzuki, S., Kobayashi, Y. “Single-walled carbon nanotube growth from highly activated metal nanoparticles”, *Nano Lett.*, 6, 2642-2645 (2006)
- 3) Yoshida, H., Takeda, S., Uchiyama, T., Kohno, H., Homma, Y., “Atomic-scale in-situ observation of carbon nanotube growth from solid state iron carbide nanoparticles”, *Nano Letters*, 8, 2082-2086 (2008)

(2) 本研究領域終了後の継続と発展状況

① 科学技術の進歩への貢献

(i) 本研究領域の最終年度から開始した科研費特定領域研究「カーボンナノチューブエレクトロニクス」(2007～2011 年度) 中の課題「機能性カーボンナノチューブの光物性評価に関する研究」の研究代表者として、本研究領域の課題を推進して、単層カーボンナノチューブ(SWNT) の特異な光学特性をデバイスへ応用する基本指針を得ることを目的として、SWNT の発光に対する環境の影響や内包物質の効果、および非線形光学応答などについて解析を進めた。

・ SWNT の発光に対する環境の影響の解析¹⁾

環境の影響に関しては、酸化により先端を開いた SWNT を用い、水分子やエタノール分子の吸着に伴う SWNT の光学遷移エネルギーの変化が、チューブの外だけでなくチューブの内側への吸着においても現れること、および吸着位置がチューブの内か外かに依存して光学遷移エネルギーのシフト量が異なることなどを明らかにした。

・ SWNT の発光に対する内包物質の効果の解析

内包物質の効果に関しては、SWNT にはチューブ内部のナノ空間を有することがグラフェンには無い特徴であり、その中に導入する物質により特性を制御することが期待できる。SWNT に内包した水の状態による SWNT の発光特性の変化に着目して研究を進め、水の相(固・液・気)に応じた誘電率の変化により、SWNT の励起・発光波長がシフトすることを明らかにした。

・ SWNT の発光の非線形光学応答の解析

非線形光学応答に関しては、SWNT がバンドル状になっている薄膜試料や、孤立している試料について、3 次の光学非線形感受率の測定を行い、孤立している試料では、バンドル試料に比べて性能指数が一桁以上大きいことを明らかにした。また、性能指数にはチューブ直径依存性があり、直径の大きなチューブほど大きな値を示すことを明らかにした。

以上のように、科研費特定領域研究において、分子吸着を利用した特性制御の可能性を見出すとともに、光学応答に対するバンドル効果や直径依存性及びその起源に関する解析を進め、SWNT の光学応答の理解と応用に有用な成果を得た。

(ii) 上記に並行して、科研費若手研究 (B) 「単層カーボンナノチューブ生成のその場蛍

光分析」(千足昇平、2007～2010 年度)においても、SWNT の高度な構造制御合成技術の確立を目指し、近赤外蛍光分光法による SWNT の成長観察を行い、成長中において SWNT がお互い絡み合うことで発光が失われていく様子や、温度や雰囲気ガスが SWNT の発光スペクトルに与える影響を明らかにするなど、SWNT の光学特性をデバイスに応用するための検討を進めている²⁾。

(iii) 本研究領域に継続して、触媒による SWNT の構造制御の可能性についての検討を進めている。

・ 固体ナノ粒子を触媒に用いた SWNT の成長技術の開発と成長機構の解明^{3), 4)}

二酸化シリコンなどの基板上に敷き詰めた直径 4～5nm の微小なナノダイヤモンドを触媒に用いて 850℃でエタノールを吹き込むことによって、直径 1～2nm、長さ 100 μ m の SWNT 生成に成功した。炭素原子だけのダイヤモンドを触媒に使うため不純物が混入しないので次世代の電子素子などへの活用が期待されている。また、ダイヤモンドの向きを制御することにより成長する SWNT の構造を制御できないかの検討も行う。

②社会・経済的波及効果

(i) ダイヤモンド微小ナノ粒子を触媒に用いた高純度カーボンナノチューブの成長
(2009 年 10 月 6 日 日経産業新聞、論文 3)

ダイヤモンド微小ナノ粒子を触媒に用いた SWNT の成長に成功した。従来の製法では鉄などの触媒を使い、不純物を完全に取り除けない問題があったが、炭素原子だけのダイヤモンドを使えば不純物は混入しない。電子素子の回路や配線幅は微細加工技術の限界で 10nm より細くすることは難しいため、素子の高集積化をさらに進めるため、CNT の利用が期待されている。CNT を様々な方向に配置する技術は確立しており、これからは不純物のない CNT を用いて新たな光素子などを開発することが可能となる。

(ii) 本間は、日本表面科学会から、2008 年度に業績「超高真空 SEM を用いた表面の基礎的な研究とナノ材料への応用」に対して第 13 回日本表面科学会学会賞を受賞し、引き続いて 2010 年度に業績「走査電子顕微鏡を用いた表面の基礎的な研究とナノ構造制御への応用」に対して日本表面科学会フェロー表彰を受賞した。

2010 年度には、応用物理学会からも、業績「その場計測を用いた表面構造およびナノ構造制御に関する研究」に対して応用物理学会フェロー表彰を受賞した。

さらに、2011 年度に、その優れた研究成果に対して東京理科大学から優秀研究者特別賞を受賞している。

③上記、継続と発展状況を示す研究成果に関連した主な成果論文リスト(4 報以内)

- 1) Chiashi, S., Watanabe, S., Hanashima, T., Homma, Y., "Influence of gas adsorption on optical transition energies of single-walled carbon nanotubes", *Nano Letters*, 8, 3097-3101(2008)
- 2) Homma, Y., Chiashi, S., Kobayashi, Y., "Suspended single-wall carbon nanotubes:

Synthesis and optical properties”, *Reports on Progress in Physics*, 72, art.no.066502 (2009)

- 3) Takagi, D., Kobayashi, Y., Homma, Y., ”Carbon nanotube growth from diamond”, *Journal of the American Chemical Society*, 131, 6922-6823(2009)
- 4) Homma, Y., Liu, H., Takagi, D., Kobayashi, Y., ”Single-walled carbon nanotube growth with non-iron-group "catalysts" by chemical vapor deposition”, *Nano Research*, 2, 793-799(2009)

④その他

千足昇平が（東京理科大・助教⇒東京大学大学院工学系研究科・助教）異動。

第4章 科学技術イノベーションに資する研究成果の状況

4.1 研究領域からの研究成果事例

追跡調査時点において、科学技術イノベーション創出に資する展開をしていると思われる数事例について、研究代表者にインタビューを行い、基礎研究からの展開について本章でまとめた。

4.1.1 位相差極端紫外光顕微鏡による機能性材料表面観察・計測技術（木下博雄）

4.1.1.1 研究の概要

(1) 各研究テーマの状況

NEDO プロジェクト「次世代半導体微細加工・評価基盤技術の開発」（2011～2015 年度）に採択され、2013 年度中間目標ハーフピッチ（hp）16nm に対応した技術の確立、2015 年度最終目標 hp11nm 対応した技術の確立を目標に、EUV マスク検査技術及び EUV レジスト材料技術の実用化開発を進めている（EUVL 基盤開発センター^注）からの再委託事業、東北大学等と共同研究）。

注)EUVL 基盤開発センター（EIDEC）：EUVL システムにおける基盤技術（マスク技術、レジスト技術）の問題解決のため関連企業 11 社が参加して 2011 年 1 月に設立されたコンソーシアム。関連分野で先進的位置にある大学・研究機関(4)、装置メーカー(3)、海外半導体メーカー(5)が共同研究に参画。

4.1.1.2 研究成果の波及と展望

(1) 科学技術への波及と展望

①EUV 用マスク検査技術の発展

(i) 「位相差 EUV 顕微鏡」の解像能力を大幅向上（東北大学との共同研究）

本研究領域で開発した「位相差 EUV 顕微鏡」はズーム管により像の拡大を行っていたがズーム管のノイズのため解像能力が十分でなかった。2012 年に東北大学と共同で凹面鏡を用いた光学拡大系を開発し、解像能力を従来の 70nm から 30nm に大幅に向上した。露光時に 4 分の 1 に縮小することから、回路線幅（hp）が 16nm より微細な LSI 用のマスク検査に対応可能となる。2011 年度に NEDO プロジェクト「次世代半導体微細加工・評価基盤技術の開発（EUV）」に採択され、実用化の検討を進めている^{1),2)}。

(ii) コヒーレント光源—レンズレス方式の革新的な EUV マスク検査技術の開発

（大阪大学、理化学研究所と共同開発）

2008 年から開始した 2 回目の CREST 研究領域における課題「コヒーレント EUV 光を用いた極微パタン構造計測技術開発」において、EUV コヒーレント光源を用いて、マスクの L&S

パターンに直接光を当て、回折像を直接 CCD に取り込み、逆フーリエ・フーリエ変換により像を再生する「コヒーレントスキャトロメトリー顕微鏡」技術を開発し、高さ 1.5nm 幅 25nm の位相欠陥を検知することを可能にした。光学の原理原則で散乱をコンピュータで処理することでレンズを使わなくても微細欠陥を検知できる世界初の革新的な技術と考えられる³⁾ (図 4-1)。

なお、本技術は、さらに短波長の X 線自由電子レーザー (SACLA) を使ってタンパク質の構造解析を行っている方法にヒントを得てマスク検査に適用したものであり、特許も取得済みである。本技術も、2011 年度に NEDO プロジェクト「次世代半導体微細加工・評価基盤技術の開発 (EUV)」に採択され、実用化の検討を進めている。

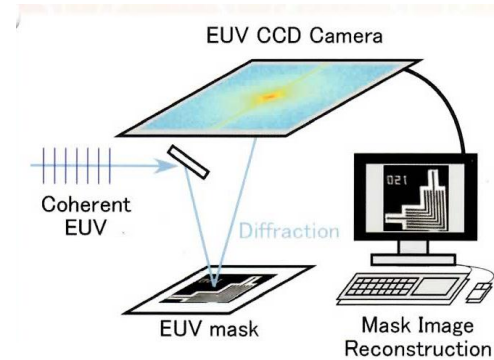


図 4-1 コヒーレントスキャトロメトリー顕微鏡の原理図。

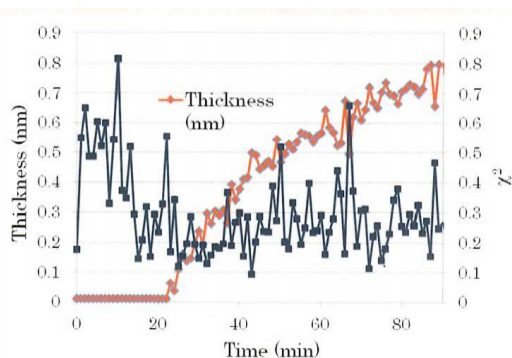


図 4-2 露光時間によるコンタミ膜厚変化

(2) 社会経済への波及と展望

①NEDO プロジェクト「次世代半導体微細加工・評価基板技術の開発」(2011~2015 年度)における実用化開発 (EIDEC からの再委託事業、東北大学等と共同研究)

2013 年度中間目標 hp16nm に対応した技術の確立、2015 年度最終目標 hp11nm 対応した技術の確立を目標に、EUV マスク検査技術の開発及び EUV レジスト材料技術の開発を開始した。

(i) EUV マスク検査技術に関しては、「位相差 EUV 顕微鏡」により、照明光源の斑はあるものの 40nm (hp11nm 対応) まで検知できるところまで進歩していて、オプティクの改良により 20nm まで検知できることを目標に検討中⁴⁾。

「コヒーレントスキャトロメトリー顕微鏡」に関しては、吸収体パタンの欠陥、線幅バラツキ、位相欠陥の 3 次元構造の像再生を可能とすることができるようになり、光源の改良を中心に検討中⁵⁾。

(ii) EUV レジスト材料技術に関しては、実露光と同等な照明条件でのレジストからのアウトガスに起因するコンタミ膜厚の in-situ での膜厚測定系の開発を進め、同時に 4 重極質量分析計によりガス種、真空度を高精度に測定可能な装置を開発した。本装置により、アウトガスによるコンタミ量が初めて測定可能となり、レジスト材料設計の指針として貢

献している⁶⁾ (図 4-2)。

②EUV リソグラフィの実用化の現状と展望

2013 年 5 月以降に EUV 露光機の生産と出荷が開始されて、半導体メーカーにおける実露光機による実用化開発が開始された。現時点では、光源パワー不足の問題があるが、従来からの年度毎の光源パワーの向上実績からは着実な向上が予測されている。近い将来には、実露光機による成果の発表が期待される状況にまで来たと言え、NEDO プロジェクトで EIDEC 等と開発中のマスク検査技術やレジスト材料技術の早期実用化への期待は大きい (図 4-3)。

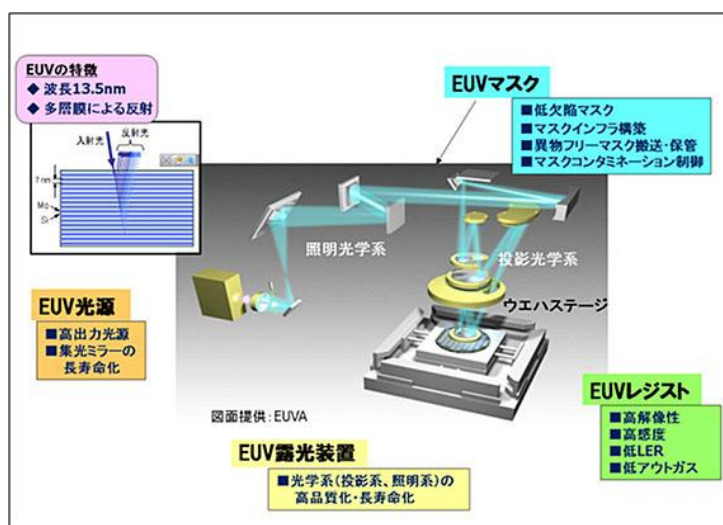


図 4-3 EUV 露光装置システムと主要課題

4.1.2 高機能ナノ立体構造デバイス・プロセス（松井真二）

4.1.2.1 研究の概要

(1) 各研究テーマの概要

3.1.7 項参照

(2) 研究メンバーの活動状況

CREST 領域の研究に学生として参加していた米谷玲皇が、東京大学工学系研究科のナノメカニクス研究室の助教(2012年4月から講師)に就任して、FIB-CVDによるナノ立体構造形成技術の研究を継承している。

4.1.2.2 研究成果の波及と展望

(1) 科学技術への波及と展望

①FIB-CVDによるナノ立体構造形成技術の発展

(i) 立体構造形成物のマテリアルサイエンスの確立

形成物の構造について、放射光による測定で非常に硬いダイヤモンドライクカーボン(DLC)構造であること、中でも、長岡科学技術大学の ERDA (弾性反跳粒子検出法) 法で測定することにより水素含有量が少なく、通常の DLC に比較してダイヤモンドにより近い特に硬い構造であることを明らかにした。さらに、DLC ピラーの真ん中が TEM で見ると黒く見えるなど密度差があること、及び高エネルギー研つくば放射光室で測定して Ga と C の結合体で構成されていること、および部位により分布があることも明らかにした。さらに、ナノスプリングについては、弾性率を振動法で測定するなど機械的特性も明らかにし、金属スプリングと同等の応答することを示した。このように、FIB-CVD による成形物のマテリアルサイエンスを初めて明らかにすることができた^{7),8)} (図 4-4)。

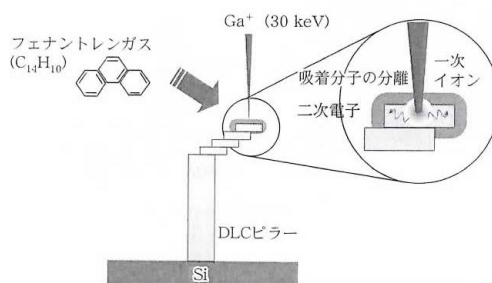


図 4-4 集束イオンビーム励起堆積 (FIB-CV) による立体ナノ構造形成プロセス

(ii) モルフォ蝶のブルーの輝きの世界初の再現

モルフォ蝶の色はブルーのみで角度を変えても色がほとんど変化しないことを羽根のり

ん粉の微細構造を FIB-CVD により再現することで実証した。なお、理論的説明は大阪大学の木下修一が行った⁹⁾ (図 4-5)。

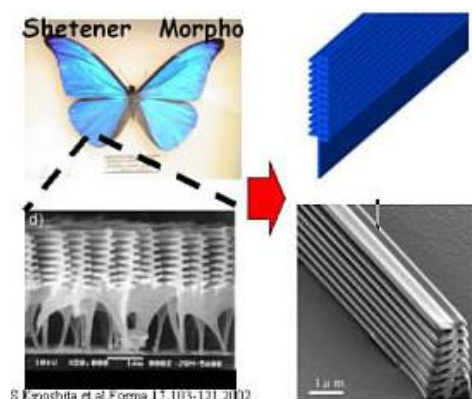


図 4-5 モルフォ蝶のりん粉構造の再現

②高スループットナノインプリントリソグラフィ技術の開発と発展

米国のモレキュラーインプリント社 (MMI) は、レジンに溶けにくい He 雰囲気下、インクジェットでプリントするところにだけレジンを載せて、モールドを斜めに当てて空気を押出す方法を開発しているが、最大 5 枚／時間である。

2008 年から開始した 2 回目の CREST 研究領域で開発した PFP (ペンタフルオロプロパン) 雰囲気下で行う広島法 (発明者の広島洋の名前から由来) では、スピン塗布法でレジンを塗布できることや極低圧で PFP ガスがレジストに溶解するので 0.1 秒でモールドをレジンに挿入できることなどから 100 枚／時間の高スループットが可能となった。さらに、耐久性についても 10 万ショット／モールドを目標に開発しているが、PFP 雰囲気に加えてレジン側にフッ素系添加剤、モールド側にフッ素系離形剤を 1nm 膜厚で添付するなど良い離形剤を見付けることができ 1 万ショット／モールドまで、極最近では 2 万ショット／モールドまで進歩した。世の中では 100 ショット／モールドのレベルであり、目標は 10 万ショット／モールドだが、渡辺統括からは、モールドのレプリカを使えば、1 万ショット／モールドでも良いのではと言われている。企業と組んで PFP 技術を取り入れた装置化と約 10nm のアライメントの作製を予定している¹⁰⁾ (図 4-6)。

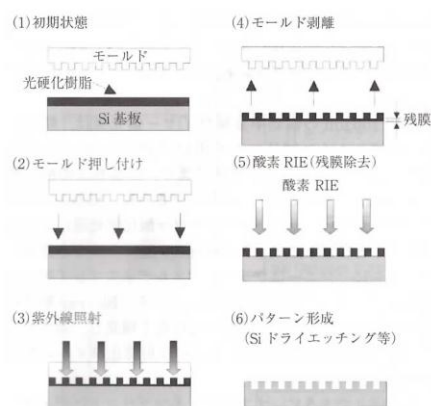


図 4-6 UV ナノインプリントプロセス

(2) 社会経済への波及と展望

①FIB-CVD によるナノ立体構造形成技術の展開

(i) FIB-CVD によるナノ立体構造形成装置の市販 (SII ナノテクノロジー、前述と共同)

JST から出願した特許を SII ナノテクノロジーへ無償提供して、装置を作製・販売する体制を作りナノ立体構造の実用化の促進を図った。世界で最初のナノ立体構造形成装置「高速集束イオンビーム装置 SMI4050」が市販され、大学の研究室や企業に販売された¹¹⁾。

(ii) 3次元立体構造の実用化の進展

事例	内容	効果	年、企業
表面粗さ・輪郭形状測定機のプローブ針	ダイヤモンドの針の上に FIB-CVD で三角錐の DLC の針を形成	ダイヤモンドの針より、大幅に微細な構造の計測が可能となる	2012 年、(株)小坂研究
細胞採取ナノツール	ナノインジェクターやナノマニピレータ等	細胞を傷つけずに採取することが可能となる	2013 年、ロートエ(株)

(iii) アウトカム

世界初のオリジナル技術である立体ナノ構造形成技術により作製した 3 次元ナノ構造物が、「見えるナノテクノロジー」として、ナノテクノロジーの概念普及に貢献した。

事例	内容	備考
高等学校の理科教科書	ナノテクノロジーの例として紹介	2006 年新興出版啓林館
雑誌「ニュートン」	スーパーテクノロジー・ビジュアル報告「明日を一新する値千金の技術 32」に取り上げられた	2006 年ニュートンプレス
Springer Handbook of Nanotechnology	FIB に関する章に CREST 研究の成果を紹介	2005 年 Springer
ロレアル色の科学と芸術賞 金賞を受賞	モルフォ蝶のブルーの輝きの神秘を解明したことが評価された	2004 年ロレアルアーツアンドサイエンスファンデーション

②ナノインプリントリソグラフィ技術の発展

(i) ナノインプリント装置の市販 (企業と共同)

2002 年度の JST の「独創モデル化」に採択されて、企業と共同で装置の開発を行い、2004 年～2006 年に数機種を作製し市販を行った。装置の普及を図るため価格を数百万円程度に抑えたこともあり、大企業の研究所を含めて数十台以上売れるなどナノインプリントの実用化促進に貢献した。

(ii) ナノインプリントリソグラフィ技術の実用化の展開状況と展望

ナノインプリント技術のロードマップ (図 4-7) に示すように、ナノインプリント技術は、マイクロレンズ、太陽電池の集光フィルム、燃料電池のセパレータ、LCD 反射防止板、

バイオセンサー、バイオの細胞成長プレートなどに実用化が進んでいる¹²⁾。

半導体分野におけるナノインプリントリソグラフィ技術の展開に関しては、微細化は問題なく、アライメントが良くなってきたが、モールドに接触することに起因する欠陥の問題があり、現状は1個/m²程度を0.1個/m²以下にする技術開発が進められている。半年に1回の関連企業・大学・研究機関との討議に参画している。

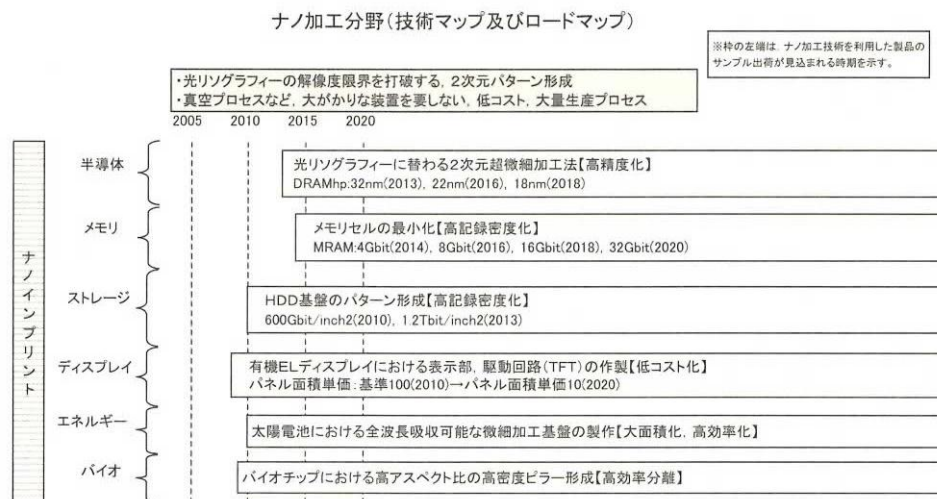


図 4-7 ナノインプリント技術のロードマップ

4.1.3 カーボンナノチューブ形成過程その場観察と物性制御への展開（本間芳和）

4.1.3.1 研究の概要

(1) 各研究テーマの状況

3.2.1 項参照

4.1.3.2 研究成果の波及と展望

(1) 科学技術への波及と展望

①CNT 形成過程その場観察手法の発展

(i) SEM によるその場観察手法の発展

MBE（モレキュラービームエピタキシー）による Si, GaAs などの結晶成長過程を超高真空中で SEM によるその場観察を行っていたので、その場観察手法の CNT への適用を CREST 領域研究で行った。装置は環境 SEM をベースに開発。数 10Pa のエタノール蒸気雰囲気中で CNT が成長できるようにしたが、その状態では散乱 2 次電子がガスと衝突するため良い像が得られなかった。そのため、数 10Pa での成長と排気をして高真空中での観察を繰り返す方式にした。本研究領域期間終了後は、グラフェンのその場観察に展開している。グラフェンは平面的なので、原子層 1 層がきれいに観察できる。

(ii) TEM によるその場観察手法の発展

TEM については、全くの新しいところから装置化する必要があり、TEM の専門家の大阪大学の竹田精治教授と共同研究を行った。試料付近だけ実環境にしてそれ以外は高真空とする差動排気機構を装備した環境制御型 TEM を開発し、CNT の成長過程を原子分解能で捉えることに成功した。本成果が CNT の成長メカニズムに関する研究者の発表には必ず引用されるようになり、TEM によるその場観察はナノカーボン研究の一つの潮流となった¹³⁾。

実環境でのその場観測手法は他の分野にも波及した。一例として、金属ナノ触媒粒子による気体反応メカニズムの原子・電子構造的解析の研究が挙げられる¹⁴⁾。

②架橋 CNT の成長技術の波及

(i) 特定領域研究「機能性 CNT の光物性評価に関する研究」への発展

半導体 CNT は電子構造的には発光する (PL) はずだが、2002 年以前は発光に成功したところではなかった。理由は、CNT が束になりやすいので、半導体 CNT の励起電子が金属 CNT を通して緩和するためと考えられている。2002 年に、米国のライス大学で界面活性剤を使って水中分散させて、上澄みの 1 本 1 本に分離したものに光を当てて発光を世界で初めて観測した。2003 年に、架橋 CNT は単離されているので光るはずと考え、世界で 2 番目に光らせることに成功。

本研究領域で架橋 CNT の成長技術を確立できたことにより、界面活性剤が付着していないため本来の CNT の性質が調べられること、及び CNT の構造（直径、カイラリティ）を制

御して成長させることはできないが架橋 CNT を用いると構造が特定できた一本の CNT を使った解析ができることから、CNT の他分子との相互作用や光物性の解析が可能となった¹⁵⁾ (図 4-8)。

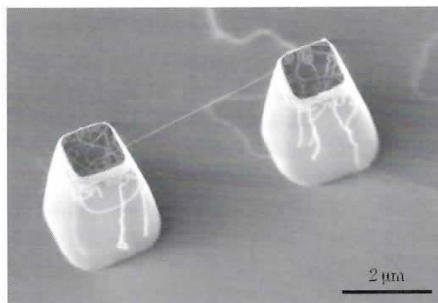


図 4-8 基板表面および微細側面の触媒のシリサイド化による架橋 SWCNT の選択成長

(ii) CNT の表面科学研究のブレークスルーへの発展

従来 CNT は疎水性と思われていたが、大気中で CNT 表面に水分子が吸着する。「水分子が吸着しているのに疎水性である」というこの不思議な現象を架橋 CNT を試料に用いることによって 2 年間で解明できた。

水分子は、CNT 表面の分子間力ポテンシャルの谷間にトラップされるが、水分子同士が CNT の表面に沿って水素結合を作って平面的な分子厚みの吸着層を形成する。吸着層は 2 層まで増加するが、外向きの水素結合がほとんどないため水の 2 重層となって完結する。そのため CNT の表面は水で薄く濡れているにも関わらず疎水性となる (図 4-9)。

このような研究成果を纏めた論文を投稿したが、レフリーから CNT に欠陥があるため、あるいは内部に水分子が入っているためではないかと判断され、なかなか受理されなかった。しかしながら、論文を通すのに 2 年掛ったが、最終的に Physical Review Letters の 2013 年 4 月号に掲載された^{16), 17)}。

なお、本研究では、共同研究者が計算化学 (分子動力学) によるシミュレーションを行い実験結果との良い一致が得られており、一本の CNT は計算化学の対象となりうることも示すことができた。

本成果は、実環境における実表面科学として従来の超高真空中で観察されたクリーンな表面科学に対するブレークスルーと考えられる。超高真空中での観察と水が吸着した大気中での観察結果の違いは、実表面は汚れているためと片づけられてきたが実際は水分子が存在し、例えば大気中での摩擦現象などでも水分子の層が介在していることになる。

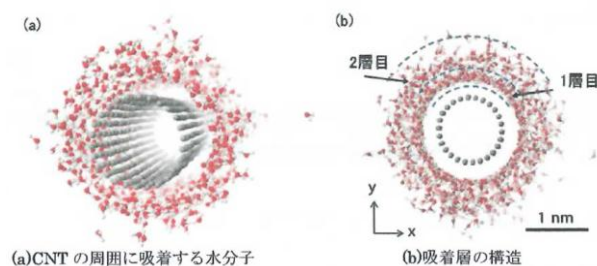


図 4-9 分子動力学シミュレーションによる CNT の周囲の水分子分布

③金など貴金属や Si など半導体のナノ粒子からの CNT の成長の波及効果

従来からの常識を覆して、種々の触媒から CNT が成長するとの認識に発展した。従来は、鉄系（鉄、コバルト、ニッケル）粒子からしか成長させることができなく、それに関連した成長機構が考えられていたので、2 つの論文は世の中に大きな衝撃を与えた。さらに、ナノダイヤモンドからの成長の論文も合わせて、一連の論文が世の中に与えたインパクトは非常に大きく、論文の引用数も多い。なお、金粒子からの成長は金が非磁性であるため、またナノダイヤモンドからの成長はダイヤモンドが非金属であることから、研究における試料として活用されている^{18), 19), 20)}。

(2) 社会経済への波及と展望

①環境制御型 TEM の普及

その場観察できる環境制御型 TEM が世界的に普及し、実環境下における原子分解能でのその場観測手法の多くの分野への発展に寄与している²¹⁾。

②CNT の光物性の応用に関する展望

半導体 CNT は近赤外領域に発光を持つ。近赤外領域は光通信の波長帯（1.30～1.55 μm ）に重なる。1nm の構造を微細加工で作るのは困難だが CNT を使えば 1 nm の構造形成が可能であることから電子デバイスへの応用が期待されている。同時にそれに光物性を融合させた光電子融合デバイスへの応用が期待できる。

さらに、近赤外線は生体中の透過性が良いため生体イメージング分野でも役立つ。例えば、マウスの血液中に界面活性剤で分散させた CNT を入れて光を当てて血液の動きを見る血液モニターの実験が行われている。このため、CNT を使わないとできないような生体イメージングへの応用が期待できる。

CNT をレジストなど保護剤に埋めると光らなくなることの解決法を研究中であるが、最近ブレークスルーが出つつあり、界面活性剤に相当するものを見付けた。

4.2 外部有識者からの所見等

1 名の外部有識者（半導体メーカーの上級研究者）にインタビューして伺った内容について、概要をまとめた。

- ・EUV リソグラフィは、近い将来に実用化が期待できる。

木下研究代表者が、EIDEC と共同で実用化開発をおこなっていることは高く評価する。

EUV リソグラフィの一番の問題点は、露光光源の出力と安定性である。その次にレジストの感度が問題。この3点が解決されないと、量産化に移行できない。

同時に、EUV 露光機は非常に高価であるため、露光機の使用台数を抑えるため、露光時間など露光プロセスのスループットも重要。

従来技術の延長線上の1ステップ進歩した技術との競争となり、今が分かれ目となる重要な時期である。技術の方向（選択）は、時間とともに変化する。

EUV マスク検査技術、EUV レジストパターン検査技術について、スループットがEUV リソグラフィ全体システムにとって重要である。この情報がないのは問題であり、研究においても、スループットに関する意識を強く持つことが必要。

- ・ナノインプリントリソグラフィにも期待している。

EUV リソグラフィはスループットが低いので、ナノインプリントはEUV リソグラフィを補完する形で使える可能性がある。

ナノインプリントには、アウトガス、気泡、離形の技術的問題があり、解決する必要がある。同時に、スループット、コストも重要。

- ・CNT は、少し遠い将来の技術として期待を持っている。

CNT は、構造（直径、カイラリティ）や位置を制御できないので、近い将来での電子デバイスへの応用は期待していない。少し遠い将来の技術としてCNT やグラフェンに期待している。

CREST で、基本技術や応用の種の研究を行って、将来の電子デバイスつなげる種を創出してほしい。面白い成果が出ると、多くの人がそこに集中するので、急速に進歩する。種が出た時に、企業との共同開発にうまく持ち込むことが大切である。

- ・CREST とイノベーション

従来の半導体技術はほとんどが限界に来ているので、イノベーションの先取りは半導体関連企業にとって競争力強化に必須である。

CREST の研究費は5～6 億円／5 年であり多くの種は出るが、イノベーションまで到達するものは稀である。EUV リソグラフィもナノインプリントリソグラフィもまだ道なかばと考えられる。イノベーションには、人、頭、金が必要であり、METI、筑波（EIDEC）などと協力することが重要である。

4.3 まとめ

4.1 項で、3名の研究代表者に伺った本研究領域およびその後の研究活動の成果の科学技術及び社会経済への波及と展望を各研究代表者別に記載した。本項では、これらの成果を領域の観点から整理して、4.2 項に記載した1名の外部有識者に伺った外部から見た観点も取り入れてまとめた。

(1) 近い将来に実用化が期待される波及効果の非常に大きい成果

EUV リソグラフィ技術とナノインプリントリソグラフィ技術は、半導体リソグラフィの今後の有力な微細化技術として期待されていることは、ITRS ロードマップ (The International Technology Roadmap for Semiconductors) にも記載されている通りである (図 4-10)。

特に、EUV リソグラフィ技術は、次期微細化技術の最有力候補と考えられていて、露光機の光源パワー不足の問題はあるものの半導体メーカーにおける実用化開発が 2013 年から開始されている。本研究領域及びその後の研究活動で開発された EUV マスク検査技術およびレジスト材料技術は、EUV リソグラフィ実用化のための基盤技術として、NEDO プロジェクトに採択されて、半導体分野の関連企業からなるコンソーシアムである EIDEC と共同で実用化開発が推進されており、イノベーション (実用化目標達成) への期待も大きく、高い評価も得ている。

ナノインプリントリソグラフィ技術は、マイクロレンズ、太陽電池の集光フィルム、燃料電池のセパレータ、LCD 反射防止板、バイオセンサー、バイオの細胞成長プレートなどに実用化が進んでいるが、半導体リソグラフィ分野においてはモールドとの接触・離形に伴う欠陥発生の問題等があり EUV リソグラフィと比較すると実用化開発が進んでいないと思われる。しかしながら、ナノインプリントリソグラフィ技術は装置が安いことやスループットが高いことから企業から強い関心がもたれている。本研究領域の成果である PFP ガスを用いる方法はスループットが非常に高い特徴があり、現在検討が進められている欠陥の改善技術開発が進展すれば、有力な技術になると期待される。今後、企業を巻き込んだ本格的な実用化開発に入れるかどうか重要なポイントになると考えられる。

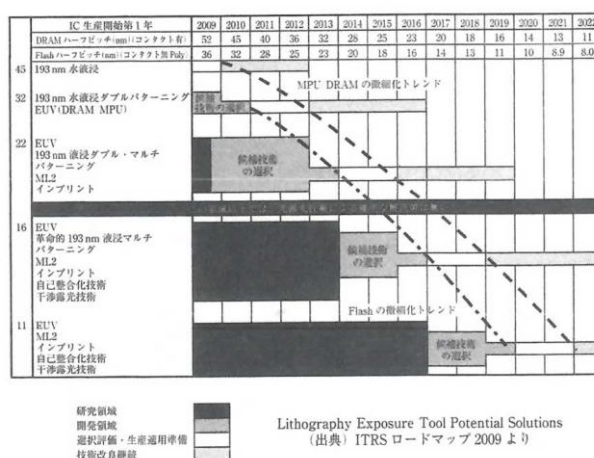


図 4-10 ITRS ロードマップ

(2) 科学技術のブレークスルーとして大きな波及効果が期待される成果

本研究領域で確立した架橋 CNT の成長技術は、構造が特定できる高純度の一本の CNT を試料に用いて他分子との相互作用や光物性の解析を行うことを可能とした。架橋 CNT を用いることによって、CNT 表面には大気中では水分子の 2 層の吸着層があることの世界初の発見や CNT の近赤外領域の発光特性の解明が達成された。特に、CNT 表面に大気中では水分子の 2 重の吸着層があることの実環境における実表面科学として従来の超高真空中で観察されたクリーンな表面科学に対する大きなブレークスルーであり、多くの分野の表面科学への波及が期待される。

また、CNT 形成過程のその場観察は CNT 成長メカニズムの解明につながると共に、電顕メーカーと共同開発した環境制御型 TEM (ETEM) が世界的に普及したこともあり、ETEM による原子分解能でのその場観察手法がナノカーボン分野および他の分野にも波及している。

(3) 小規模ではあるが実用化が始まっていて、今後の進展が期待される成果

本研究領域で開発した FIB-CVD によるナノ立体構造形成技術は、立体構造体のマテリアルサイエンスを確立したことや企業と共同開発した FIB-CVD 装置が市販されたことなどから、表面粗さ・輪郭形状測定機のプローブ針や細胞採取ナノツールなどへの実用化が徐々にではあるが始まっている。細胞を取り扱うナノインジェクターやナノマニピレータなどバイオナノツールによるバイオ分野への貢献が予測されることから、それに向けたバイオ研究者との共同開発が企画されており、ナノ立体構造の実用化の進展が期待される。

(4) 本研究領域への期待とイノベーション

本研究領域で基本技術の確立と新しい種の創製を行い、その種の実用化を国の支援を受けるか EIDEC のような関連企業のコンソーシアムと共同開発することがイノベーションにつながる確実な道であるという考えが広く認識されていて、研究代表者はその戦略に沿って研究開発を推進されているように見受けられた。

[引用文献等]

- 1) M.Toyoda et.al., “At-Wavelength Extreme Ultraviolet Lithography Mask Observation Using a High-Magnification Objective with Three Multilayer Mirrors” *Applied Physics Express* 5(2012)112501
- 2) 2012.12.19 日経産業新聞「極紫外線で欠陥発見 次世代 LSI 向け顕微鏡」
- 3) Nakasuji, M.,et. al, ”Development of coherent extreme-ultraviolet scatterometry microscope with high-order harmonic generation source for extreme-ultraviolet mask inspection and metrology”, *Japanese Journal of Applied Physics*, 51, art.no.06FB09(2012)
- 4) NEDO「次世代半導体微細加工・評価基盤技術開発（EUV）」の実施方針：平成 25 年度版
- 5) CREST「次世代エレクトロニクスデバイスの創出に資する革新材料・プロセス研究」第 2 回公開シンポジウム「半導体技術のパラダイム革新に挑戦」（2013.2.8）JST
- 6) EUV リソグラフィ研究開発センター冊子（2012 年 3 月版）、兵庫県立大学 高度産業科学技術研究所
- 7) Igaki,J.-Y. et al, “Elementary analysis of diamond-like carbon film formed by focused-ion-beam chemical vapor depositin” *Japanese Journal of Applied Physics*, Part1, 46(12), 8003,(2007)
- 8) Nakai,Y. et.al, “Mechanical characteristics of nanosprings fabricated by focused-ion-beam chemical vapor deposition using ferrocene source gas”*Japanese Journal of Applied Physics*,49 (6 Part 2) 06GH071 (2010)
- 9) 松井真二, “収束イオンビーム立体ナノ構造形成技術によるモルフォ蝶構造の再現 “光アライアンス、2012.3、17、(2012)
- 10) Iyoshi,S.,et.al., ”Step and repeat ultraviolet nanoimprinting under pentafluoropropane gas ambient”, *Japanese Journal of Applied Physics*, 51, art.no.06FJ08 (2012)
- 11) SII ナノテクノロジー（株）ホームページ
- 12) 松井真二監修、ナノインプリントの開発とデバイス応用、シーエムシー出版、(2012)
- 13) フラーレン・ナノチューブ・グラフェン学会編、カーボンナノチューブ・グラフェンハンドブック、87、コロナ社、(2011.9)
- 14) H.Yoshida,et.al, ”Visualizing Gas Molecules Interacting with Supported Nanoparticulate Catalysts at Reaction Conditions” *Science* 335, 317, (2012)
- 15) Homma, Y., et.al. ”Suspended single-wall carbon nanotubes: Synthesis and optical properties”, *Reports on Progress in Physics*, 72, art.no.066502 (2009)
- 16) Y.Homma,et.al, “Photoluminescence Measurements and Molecular Dynamics Simulations of Water Adsorption on the Hydrophobic Surface of a Carbon Nanotube in Water Vapor” *Phys. Rev. Lett.* 110, 157402 (2013)
- 17) 東京理科大学 科学技術交流センター プレスリリース（2013.4.3）
- 18) Takagi, D.,et.al. “Carbon nanotube growth from semiconductor nanoparticles”, *Nano Lett.*, 7, 2272-2275 (2007)

- 19) Takagi, D., et.al. "Single-walled carbon nanotube growth from highly activated metal nanoparticles", *Nano Lett.*, 6, 2642-2645 (2006)
- 20) Takagi, D., et.al. "Carbon nanotube growth from diamond", *Journal of the American Chemical Society*, 131, 6922-6823(2009)
- 21) 竹田、吉田、栞内、S. Kujawa 、“実環境下でのプロセス・特性評価のための収差補正・環境制御型透過電子顕微鏡とその応用” 顕微鏡 46 (1), 20, (2011)