

平成 21 年 5 月 25 日現在

研究種目：基盤研究(A)
 研究期間：2006～2008
 課題番号：18205021
 研究課題名(和文) モジュール集積型デスクトップ超クリーンラボラトリーシステムの開発
 研究課題名(英文) Development of Totally ultra clean laboratory system of uni-sized material research modules
 研究代表者
 鯉沼 秀臣(KOINUMA HIDEOMI)
 東京大学・大学院新領域創成科学研究科・特任研究員
 研究者番号 70011187

研究成果の概要：

物理的・化学的に超クリーンな環境で、合成から構造解析・物性評価に至るプロセスを一貫して進行させる高速かつ省エネルギーな革新的なものづくり研究開発システムの構築を目指し、超小型パルスレーザー薄膜堆積ユニットと、複数のモジュールを接続するフレキシブル試料搬送ユニット(中央制御機構)を開発した。超小型 KrF レーザや板バネを用いた新搬送機構の採用によりスペースを従来システムの 1 / 4 以下にし、かつ自由度の高い薄膜・評価システムの構築を実現した。

交付額

(金額単位：円)

	直接経費	間接経費	合計
2006年度	18,900,000	5,670,000	24,570,000
2007年度	17,100,000	5,130,000	22,230,000
2008年度	3,200,000	960,000	4,160,000
年度			
年度			
総計	39,200,000	11,760,000	50,960,000

研究分野：化学

科研費の分科・細目：材料化学、機能材料・デバイス

キーワード：(1) 電子・電気材料 (2) MBE、エピタキシャル (3) ナノ材料 (4) 超薄膜 (5) 表面・界面物性

1. 研究開始当初の背景

エレクトロニクスやバイオ応用を目指した機能材料やデバイス研究において、クリーンルームは必須のインフラストラクチャーとなっている。しかし、そのメンテナンスには多大なエネルギーと人手を要し、経費の点からも実質的な研究の推進を圧迫する要因となっている。また、クリーンルームは空気中の微粒子の濃度を下げて物理的要因による歩留りの低下を防止することが主な作用であり、表面酸化などの化学的汚染の防止

には寄与しない。一方、新材料やデバイス研究の最先端では、機能の高度化・複合化に伴って材料組成の多元化、原子～ナノサイズの構造最適化が課題となってきたおり、これを高速に解決するための新たなものづくりシステムを構築する研究が始まっている。

少子化、若年層における理科離れの流れの中で、日本の活力の源ともいべき‘ものづくり’研究とそのアウトプットとしての製造業を維持・発展していくためには、一つ一つ作っては評価する従来の肉体労働的実験研

究から、知的ゲーム性を備えたスマートなシステム研究への進化が必要と考える。本システムの開発は、合成化学や分析化学の他に、マイクロエレクトロニクス、ロボット技術、計算科学、真空技術などを総合する学術研究であり、これらの分野を通じた広い視野と、要素技術を組み立てる創造性、アウトプットとなる材料・デバイスの重要性、優先性に関する洞察力が要求されよう。システムから見直すというコンセプトによって、ものづくり研究の基本的な進化と国際競争力の強化を図る。本研究は、代表者が1996年から2004年にわたって展開した「コンビナトリアル材料科学技術」プロジェクトの実績に基づいているが、それに新たな発想を加えてさらに進化・発展させ、世界をリードするための提案である。研究対象とする材料・デバイスは、新機能の宝庫と知られる一方で、多くの作製パラメーター空間のスクリーニングを必要とする酸化物、有機材料とそのデバイスであり、本研究で開発するスマートシステムにより加速的な成果の創出と応用展開につながる。

2. 研究の目的

本研究の目的は、物理的・化学的に超クリーンである環境下で、合成から構造解析・物性評価に至るプロセスを一貫して進行させる、高速かつ省エネルギーな革新的なものづくり研究開発システムを構築することにある。

クリーンルームの理想は、部屋全体を超高真空にして宇宙服を着て作業することであるとされる。各種合成反応装置とその構

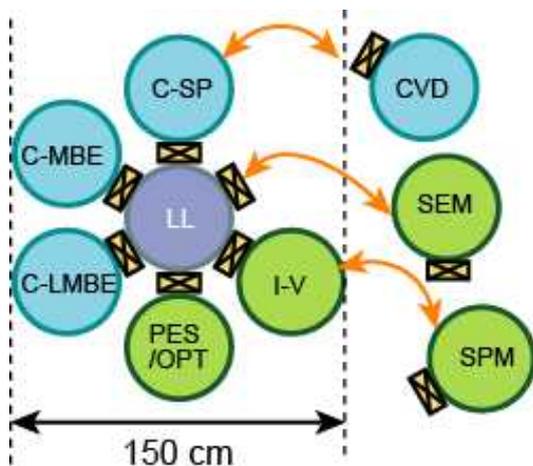


図1 デスクトップラボラトリー概念図

造及び物性評価装置を高真空下に連結・搬送するシステムは、実質的にこの環境を実現することができる。本研究では、各種の合成、構造解析、物性測定ユニットを極力小型化するとともに、同一サイズに規格化し、目的に応じて自由に組み合わせることができるシステムを設計・製作する。これにより、クリ

ーンルーム内に各種の装置を設置した大型研究室以上の研究開発機能を、従来の数分の1以下の面積とコストで構築する。

3. 研究の方法

モジュール集積型デスクトップ超クリーンラボラトリーシステムの構成例を図1に示す。150cmという成人身長より小さいスケールで真空モジュールシステムを構築する。すべてのモジュールは搬送機構部(LL)に対して共通仕様で接続され、合成装置(図中の青)と評価装置(図中の緑)のあわせて最大6ユニットのモジュールが装着可能である。搬送機構に互換性を持たせているため、用途に応じて各モジュールの組替えや互換性をもつ別のモジュールの追加が可能である。また、各々のモジュールは非常にコンパクトなサイズでかつ独立動作が可能な設計となっているため、合成モジュールのみを既存の放射光施設等の大規模評価装置に接続することも可能であり、大気にさらすことなく薄膜合成・薄膜評価を一貫して行うことができる。

本研究では、システムのキーポイントである超小型パルスレーザー薄膜堆積モジュールと複数のモジュールを接続するフレキシブル試料搬送ユニット(中央制御機構)にフォーカスして開発を行った。フレキシブル試料搬送ユニットには、最大6台の真空モジュールを設置可能である。各モジュールには搬送機構は不要であり、さらに搬送高さはそれぞれのモジュールにあわせて可変に設計できるため、かなり自由度の高いモジュール構築が可能である。

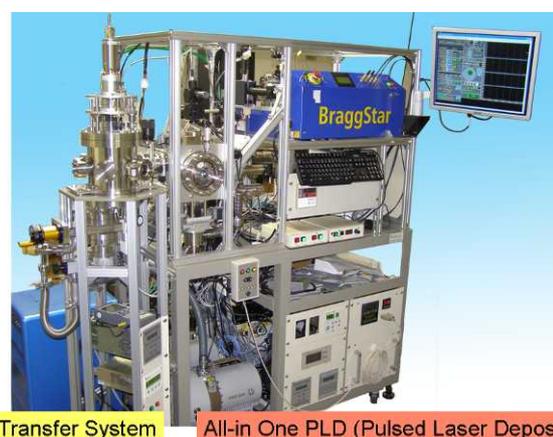


図2 開発した超小型 PLD ユニットとフレキシブル搬送機構(中央制御機構)

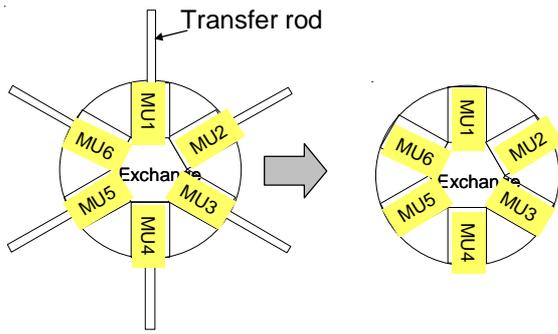


図3 トランスファーロッドを用いた既存真空搬送装置の問題点（左図）とトランスファーロッドフリー新搬送方式における装置スペースの縮小化（右図）

4. 研究成果

(1) 装置概要

図2に開発した超小型PLDユニットとフレキシブル搬送機構（中央制御機構）の概観写真を示す。直径20cmの円筒の搬送ユニット（左側）と直径15cmの円筒の超小型パルスレーザ薄膜堆積（PLD）ユニットから構成される。超小型KrFレーザを除いたサイズは、全長70cm×幅60cm×高さ150cmであり、既存PLD装置・真空搬送装置の4分の1から10分の1程度になっている。

(2) 超小型PLDユニット

採用したKrFレーザは小型・持ち運び可能であり、インナーアパーチャーをもつことによってレーザ光の広がり角が劇的に抑えられるため、通常必要なレーザのエネルギー総量よりかなり小さい値でも製膜可能である。その一方で、通常の繰り返し数より10倍大きい200Hzで製膜可能であり、堆積レートを維持しつつ、既存のレーザより10分の1程度の少ないレーザーパワー（最大18mJ）で既存の装置と等価な品質をもつ薄膜が得られる。

通常のPLD装置では、真空装置に加えて、レーザが必要であり、個別に設置されるが、本ユニットでは、全てオールインワンになっており、ガス・電力などの最低限のユーティリティが揃えば、どこでも移動可能である。たとえば、放射光施設や大型特殊電子顕微鏡などの既存の大型測定装置と結合させることが可能であり、柔軟な実験測定のセットアップができる。移動時にも光学系の再セットアップが不要であり、超小型KrFレーザまでのエリアを含めたとしても全長1.5m程度という畳1畳程度の大きさに設置できる。

(3) フレキシブル試料搬送ユニット（中央制御機構）

超クリーンである環境下で試料を搬送するためには、通常、トランスファーロッドを用いた真空搬送機構が用いられる（図3左）。しかしながら以下に示すようないくつかの問題点を抱えている。真空チャンバのほぼ2倍以上の搬送ロッドのスペースが必要であること、搬送ロッドが真空装置内部を通過するために真空チャンバの内部構造に大きな制約が加えられること、長大なロッドの操作が困難であることなどの問題点がある。そこで、全ての搬送ロッドを排除し、全く新しい概念に基づく真空搬送機構を開発した。これによって図3右に示すように大幅な省スペース化につながるとともに、上に挙げた真空チャンバ内部構造の制約が不要、搬送操作の容易化など多くのメリットをもつ。これによってチャンパーモジュールの集積化システムの構築において自由度が大きくなり、目的の材料に即したシステム設計が可能となった。図4にフレキシブル搬送機構の基本構造図およびそのテスト模型品の写真である。金属製巻き尺に用いられるような板バネを用いることによって、真空中で動力伝達方向をかなり自由に変更できるようになった。この板バネと回転機構を組み合わせることによって、フレキシブル試料搬送ユニットを実現し、トランスファーロッドを全く用いることなく搬送できるようになった。

(4) 結論

開発されたシステムは、設置場所をクリーンルームから開放したばかりでなく、スペースを同等の機能の従来システムに比べ1/4以下に小さくできるという画期的なものである。とかく巨大になりがちな複合真空システムが、モジュール化と新搬送システムを採用することで、大幅に小型化できることを実証した。複雑な組成をもつ材料・デバイス

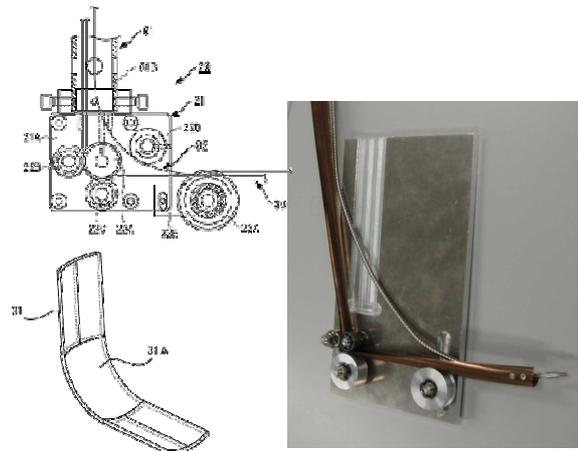


図4 開発したフレキシブル搬送機構の内部構造とその写真

開発に特に有効な低コスト・小設置面積のハイテクものづくり研究システムである。

5. 主な発表論文等

(研究代表者、研究分担者及び連携研究者には下線)

[雑誌論文](計 20件)

片山正士、鯉沼秀臣、資源・環境・エネルギー材料研究...コンピナトリアル戦略の今、Fine Ceramics Report、27、14-21、2009、査読無

M. Kitamura, I. Ohkubo, M. Kubota, Y. Matsumoto, H. Koinuma, M. Oshima, Ferromagnetic properties of epitaxial $\text{La}_2\text{NiMnO}_6$ thin films grown by pulsed laser deposition, Appl. Phys. Lett., 94, 132506, 2009, 査読有

S. Okazaki, N. Okazaki, Y. Hirose, J. Nishimura, K. Ueno, A. Ohtomo, M. Kawasaki, H. Koinuma, T. Hasegawa, Quantitative conductivity mapping of $\text{SrTiO}_3\text{-LaAlO}_3\text{-LaTiO}_3$ ternary composition-spread thin film by scanning microwave microscope Appl. Phys. Express, 1, 055003, 2008, 査読有

T. Harada, I. Ohkubo, K. Tsubouchi, H. Kumigashira, T. Ohnishi, M. Lippmaa, Y. Matsumoto, H. Koinuma, M. Oshima, Trap-controlled space-charge-limited current mechanism in resistance switching at $\text{Al/Pr}_{0.7}\text{Ca}_{0.3}\text{MnO}_3$ interface, Appl. Phys. Lett., 92, 222113, 2008, 査読有

S. Yaginuma, K. Itaka, Y. Matsumoto, T. Ohnishi, M. Lippmaa, T. Nagata, T. Chikyow, H. Koinuma, Composition-spread thin films of pentacene and 6,13-pentacenequinone fabricated by using continuous-wave laser molecular beam epitaxy, Appl. Surf. Sci., 254, 2336-2341, 2008, 査読有

R. Watanabe, M. Yuasa, Y. Yahata, G. Mizutani, T. Suzuki, Y. Segawa, Y. Matsumoto, Y. Yamamoto, H. Koinuma, Magnetization-induced optical second harmonic generation from the surface of Co-doped rutile $\text{TiO}_2(110)$ Surface and Interface Analysis, 40, 1692-1695, 2008, 査読有

H. Wadati, A. Maniwa, A. Chikamatsu, I. Ohkubo, H. Kumigashira, M. Oshima, A. Fujimori, M. Lippmaa, M. Kawasaki, H. Koinuma, In situ photoemission study

of $\text{Pr}_{1-x}\text{Ca}_x\text{MnO}_3$ epitaxial thin films with suppressed charge fluctuations, Phys. Rev. Lett., 100, 026402, 2008, 査読有

K. Tsubouchi, I. Ohkubo, H. Kumigashira, Y. Matsumoto, T. Ohnishi, M. Lippmaa, H. Koinuma, M. Oshima, Epitaxial growth and surface metallic nature of LaNiO_3 thin films, Appl. Phys. Lett., 92, 262109, 2008, 査読有

K. Tsubouchi, I. Ohkubo, T. Harada, H. Kumigashira, Y. Matsumoto, T. Ohnishi, M. Lippmaa, H. Koinuma, M. Oshima, Modification of reflection high-energy electron diffraction system for in situ monitoring of oxide epitaxy at high oxygen pressure, Materials Science and Engineering B-Advanced Functional Solid-State Materials, 148, 16-18, 2008, 査読有

I. Ohkubo, K. Tsubouchi, T. Harada, H. Kumigashira, K. Itaka, Y. Matsumoto, T. Ohnishi, M. Lippmaa, H. Koinuma, M. Oshima, Field-induced resistance switching at metal/perovskite manganese oxide interface, Materials Science and Engineering B-Advanced Functional Solid-State Materials, 148, 13-15, 2008, 査読有

T. Ishihara, I. Ohkubo, K. Tsubouchi, H. Kumigashira, U. S. Joshi, Y. Matsumoto, H. Koinuma, M. Oshima, Electrode dependence and film resistivity electric-field-induced resistance-switching in epitaxial NiO films effect in the phenomena Materials Science and Engineering B-Advanced Functional Solid-State Materials, 148, 40-42, 2008, 査読有

K. Tsubouchi, I. Ohkubo, H. Kumigashira, M. Oshima, Y. Matsumoto, K. Itaka, T. Ohnishi, M. Lippmaa, H. Koinuma, High-throughput characterization of metal electrode performance for electric-field-induced resistance switching in metal/ $\text{Pr}_{0.7}\text{Ca}_{0.3}\text{MnO}_3$ /metal structures, Adv. Mater., 19, 1711-1713, 2007, 査読有

T. Taniuchi, R. Yasuhara, H. Kumigashira, M. Kubota, H. Okazaki, T. Wakita, T. Yokoya, K. Ono, M. Oshima, M. Lippmaa, M. Kawasaki, H. Koinuma, Thickness dependence of

magnetic domain formation in $\text{La}_{0.6}\text{Sr}_{0.4}\text{MnO}_3$ epitaxial thin films studied by XMCD-PEEM, Surf. Sci., 601, 4690-4693, 2007, 査読有

R. Takahashi, Y. Tsuruta, Y. Yonezawa, T. Ohsawa, H. Koinuma, Y. Matsumoto, Ceramic liquid droplets stabilized in vacuum

J. Appl. Phys., 101, 033511-033515, 2007, 査読有

M. Otani, N. D. Lowhorn, P. K. Schenck, W. Wong-Ng, M. L. Green, K. Itaka, H. Koinuma, A high-throughput thermoelectric power-factor screening tool for rapid construction of thermoelectric property diagrams, Appl. Phys. Lett., 91, 132102, 2007, 査読有

M. Otani, K. Itaka, W. Wong-Ng, P. K. Schenck, H. Koinuma, Development of a high-throughput thermoelectric screening tool for combinatorial thin film libraries, Appl. Surf. Sci., 254, 765-767, 2007, 査読有

A. Maniwa, K. Okano, I. Ohkubo, H. Kumigashira, M. Oshima, M. Lippmaa, M. Kawasaki, H. Koinuma, Transport and magnetic properties of $\text{Pr}_{1-x}\text{Ca}_x\text{MnO}_3$ epitaxial films grown on LaAlO_3 substrates, J. Mag. Mag. Mat., 310, 2237-2238, 2007, 査読有

H. Kumigashira, R. Hashimoto, A. Chikamatsu, M. Oshima, H. Wadati, A. Fujimori, M. Lippmaa, M. Kawasaki, H. Koinuma, In situ photoemission characterization of the tunneling barrier in $\text{La}_{0.6}\text{Sr}_{0.4}\text{MnO}_3/\text{SrTiO}_3/\text{La}_{0.6}\text{Sr}_{0.4}\text{MnO}_3$ tunneling junctions, J. Mag. Mag. Mat., 310, 1997-1999, 2007, 査読有

M. Kubota, T. Taniuchi, R. Yasuhara, H. Kumigashira, M. Oshima, K. Ono, H. Okazaki, T. Wakita, T. Yokoya, H. Akinaga, M. Lippmaa, M. Kawasaki, H. Koinuma, Magnetic domain structure of a technically patterned ferromagnetic $\text{La}_{0.6}\text{Sr}_{0.4}\text{MnO}_3$ thin film Appl. Phys. Lett., 91, 182503, 2007, 査読有

H. Koinuma, Oxide materials research for global environment and energy with a focus on CO_2 fixation into polymers, React. Funct. Polym., 67, 1129-1136, 2007, 査読有

〔学会発表〕(計 7件)

伊高健治、フレキシブル真空搬送機構を備えた超小型モジュール型薄膜・評価作製システムの開発、応用物理学会 2009 年度春季大会、2009 年 4 月 2 日、筑波大学

北村未歩、エピタキシャル $\text{La}_2\text{NiMnO}_6$ 薄膜における磁気特性の作製条件依存、応用物理学会 2009 年度春季大会、2009 年 3 月 31 日、筑波大学

H. Koinuma、Totally ultra-clean combinatorial material research complex of uni-sized modules: Concept, system development and test run、5th International Conference on Combinatorial and High-Throughput Materials Science、2008 年 9 月 28 日、Kloster Seeon, Germany

原田尚之、金属/ $\text{Pr}_{0.7}\text{Ca}_{0.3}\text{MnO}_3$ 界面型抵抗変化素子における空間電荷制限電流の重要性、応用物理学会 2008 年秋季学術講演会、2008 年 9 月 2 日、中部大学

原田尚之、Metal/ $\text{Pr}_{0.7}\text{Ca}_{0.3}\text{MnO}_3$ ショットキー接合における電流-電圧特性の電極依存性 (3)、応用物理学会 2008 年秋季学術講演会、2008 年 9 月 2 日、中部大学

伊高健治、赤外線 YAG パルスレーザを用いたコンビナトリアル金属電極の作製、応用物理学会 2008 年秋季学術講演会、2008 年 9 月 2 日、中部大学

伊高健治、新しい真空搬送機構を備えた超小型モジュール型薄膜作製・評価システムの開発、第 55 回応用物理学関係連合講演会、2008 年 3 月 29 日、日本大学 船橋キャンパス

〔産業財産権〕

出願状況 (計 1 件)

真空搬送機構及びそれを備えたマルチチャンバシステム、鯉沼秀臣、伊高健治、佐藤利弘、独立行政法人科学技術振興機構、特許出願、特願 2008-082208、2008 年 03 月 26 日、国内

取得状況 (計 0 件)

〔その他〕

6. 研究組織

(1) 研究代表者

鯉沼 秀臣 (KOINUMA HIDEOMI)

東京大学・大学院新領域創成科学研究科・特任研究員

研究者番号 70011187

(2) 研究分担者

知京 豊裕 (CHIKYOW TOYOHIRO)

独立行政法人物質・材料研究機構・ナノメテ

IR研究所・リサーチID-

研究者番号 10354333

伊高 健治 (ITAKA KENJI)

東京大学・大学院新領域創成科学研究科・

特任研究員

研究者番号 40422399

大西 剛 (OHNISHI TSUYOSHI)

(平成20年10月1日以降は連携研究者)

東京大学・物性研究所・助教

研究者番号 80345230

(3) 連携研究者

大西 剛 (OHNISHI TSUYOSHI)

(平成20年10月1日以降のみ)

東京大学・物性研究所・助教

研究者番号 80345230