

さきがけ研究領域「ナノ製造技術の探索と展開」

追跡評価報告書

総合所見

本研究領域は、「ナノデバイスやナノ材料の高効率製造及びナノスケール科学による製造技術の革新に関する基礎の構築」という戦略目標の下、将来のナノテクノロジーの本格的な実用化時期に必須となる「ナノ製造技術」の基盤を提供することを目的として設定された。

2006年度～2011年度の3期に渡り、「カーボン材料」、「ナノ粒子／バイオ」、「ナノ化学」、「ナノ加工」、「ナノデバイス」、「スピントロニクス」の広範な分野の29件の研究課題について精力的な研究が行われた。これら研究期間中の研究成果を基に、研究期間終了後、多くの研究者が継続的に大型の競争的研究資金を獲得し、実用化に向けて発展させたり、異なった視点で研究を展開したりと大きな進展を見せた。

科学技術への貢献の観点では、カーボン材料において、カーボンナノチューブの新規な合成、化学修飾の制御、分球、生体応用、グラフェンの新規合成法などの技術が産み出された。ナノ粒子／バイオにおいては、ナノ粒子機能化による分析技術の向上、がん細胞の狙い撃ちの開発、1細胞レベルのドラッグデリバリーシステムという新しい分野の創出が行われた。さらに生体分子を用いたディスプレイや人工筋肉が実現された。ナノ化学においては、次世代回路基板材料作製、スルーホールメンブレン作製、有機ナノ結晶作製、ナノワイヤの新規構造制御などの手法が創出された。ナノ加工においては、3次元マイクロ構造体の作製や複製、グラフェン低温合成、白金終端カルビンのボトムアップ合成などの技術が開発された。ナノデバイスにおいては、600℃の高温でも動作する不揮発性メモリ、負の巨大磁気抵抗効果、有機ナノ結晶のバンドギャップ制御法、ナノ半導体特有のキャリア輸送と熱特性に基づく高性能かつ省電力の大規模集積回路創出の指針、生体分子分析用金属酸化物ナノワイヤデバイスなどが創出された。スピントロニクスにおいては、新現象の逆磁気キャパシタンス効果が発見された。また、従来に比べ約2桁の低電力動作が期待される極めて低電力書き込み可能な電圧駆動型の磁気メモリが創出され、国際、国内学会において電圧制御のセッションが新設され、新分野の潮流が形成された。

研究期間終了後に発表された論文は、研究期間中の319報から693報と2倍以上に達し、被引用数Top10%以内の論文も35報から85報と2倍を遙かに超えている。これらから、基礎研究の成果を着実に発展させ、実用を目指して精力的に研究が行われたこと、ならびにそれらが革新的であり社会に注目されていることが認められる。

また、本研究領域の研究者の内、約半数が論文賞をはじめ各種賞を受賞し、内4名が文部科学大臣表彰若手科学者賞を受賞していることは、高い水準の研究がなされ、学術的に大きな貢献が成された証である。

社会・経済への貢献の観点では、企業との連携や共同研究が行われ、事業化の道筋が作られたもの、新しい展開が拓けたものがある。その中の一例として、斎藤は、単層カーボンナ

ノチューブの合成技術を株式会社名城ナノカーボンに移転し、生産工業プラントを立ち上げ、研究用に単層カーボンナノチューブを市販している。吾郷は、株式会社産学連携機構九州を通じて超高品質で大面積のグラフェンのサンプル販売を開始した。上野は、イムラ・ジャパン株式会社、東京大学と共同で、照射光の波長により光電流の向きを制御できる光センサ、笠井は、医薬品メーカーと緑内障治療の点眼薬、野崎は、電機メーカーと不揮発性磁気メモリ (MRAM) のための新たな電圧駆動書き込み方式のそれぞれ開発などを行っている。また、丸尾は、3次元マイクロ構造体作製技術を医療、化学、光学、情報通信など幅広く応用するため、一般利用可能な試作ラボの超 3D 造形技術プラットホーム研究拠点を開設している。

大型の競争的研究資金に関しては、研究期間終了後、独創的・先駆的研究の科研費基盤研究(S)1件、CREST 3件、さきがけ2件を獲得している。さらに、応用展開への研究助成金として、新エネルギー・産業技術総合開発機構(NEDO)プロジェクト5件、日本学術振興会(JSPS)の最先端・次世代研究開発支援プログラム(NEXT)4件、JSTの先端計測分析技術・機器開発プログラム、未来社会創造事業、復興促進プログラム、先導的物質変換領域(ACT-C)、文部科学省の分野別の研究開発、内閣府の戦略的イノベーション創造プログラム(SIP)各1件など多数獲得している。基礎研究の成果が、このような大型の競争的研究資金獲得に繋がり、応用展開を大きく進展させたことが認められる。

研究者のキャリアアップについては、殆どの研究者が昇進し、その内約半数の研究者は採択時とは異なる研究機関に移り、自らの研究グループを築いている。

以上より、ナノ製造に係わる先進技術展開、新規現象の科学的な解明、社会・経済への波及効果ならびに研究人材の育成という観点で、本研究領域は研究期間終了後も非常に高い研究成果をあげていると評価できる。

1. 研究成果の発展状況や活用状況

研究期間終了後、各研究者は研究を継続、発展させ、あるいは異なった視点で研究を展開し、693報の学術論文、379件の国際会議ならびに312件の国内会議の招待講演など、多数の優れた研究成果をあげている。学術論文の被引用数で見ると、Top10%以内の論文が85報、1%以内の論文が4報、さらに0.1%以内の論文が1報あり、それぞれの分野で極めて高いインパクトのある研究に発展している。

櫻井は、樋口、佐藤、藤田と、前田は、藤田、村上、松井、佐藤、内藤、斎藤と共同研究を行った。これ以外にも本研究領域の研究者間で共同研究が行われ、共著論文として研究期間中に5報、研究期間終了後に18報の発表がある。また、内田が研究代表者として進めたCREST「極細電荷チャネルとナノ熱管理工学による極小エネルギー・多機能センサプラットフォームの創成」には、東京大学の寺尾と九州大学の柳田が共同研究者として参画した。これらのことは、本研究領域におけるシナジーの現れを示すものと認められる。

特許出願件数は、研究期間中の国内出願96件(内68件登録)、国際出願37件(内30件登録)に対し、研究期間終了後においては国内出願79件(内27件登録)、国際出願33件(内13

件登録)に上っている。研究期間中に創出された研究成果が精力的に応用展開され実用化に向けて進展してきたことが認められる。

研究代表者として獲得した大型の競争的研究資金から見れば、殆どの研究者が科学研究費助成事業(科研費)基盤研究(B)あるいは科研費若手研究(A)を獲得し研究を進めている。規模の大きい科研費基盤研究(A)8件、独創的・先駆的研究の科研費基盤研究(S)1件、CREST 3件、さきがけ2件により研究を発展させた研究者もいる。また、応用展開への研究助成金として、日本学術振興会(JSPS)の最先端・次世代研究開発支援プログラム(NEXT)4件、新エネルギー・産業技術総合開発機構(NEDO)プロジェクト5件、JSTの先端計測分析技術・機器開発プログラム、未来社会創造事業、復興促進プログラム、先導的物質変換領域(ACT-C)、文部科学省の分野別の研究開発、内閣府の戦略的イノベーション創造プログラム(SIP)各1件など多数獲得している。基礎研究の成果が、このような大型の競争的研究資金獲得に繋がり、応用展開を大きく進展させたことが認められる。

また、研究者の約半数が論文賞や奨励賞など各種賞を受賞していることから、本研究領域で優れた研究が行われたことが社会的に認められたと言える。その内4名の前田、柳田、野崎、吾郷(研究期間中)は文部科学大臣表彰若手科学者賞を受賞しており、優れた研究業績とともに研究者としての将来性も評価されたと言える。

2. 研究成果から生み出された科学技術や社会・経済への波及効果

(1) 研究成果の科学技術の進歩への貢献

本研究領域は、研究期間終了後も優れた研究成果を創出し、科学技術の進歩と将来の研究リーダーの育成にも大きく貢献している。特筆すべき研究成果を以下に示す。

カーボン材料において、前田は、単層カーボンナノチューブの化学修飾に関して、熱処理により化学修飾率を制御する方法を開発した。これにより、半導体性単層カーボンナノチューブが、適切な化学修飾率により生体透過性の高い近赤外光による励起で効率良く近赤外発光することを見だし、リアルタイムで生体内を可視化する *in vivo* イメージングを可能にする蛍光プローブへ適用できることを示した。吾郷は、サファイヤ上にエピタキシャル成長させた大面積の金属結晶触媒を用いて、高品質で大きな単結晶グラフェンの合成に成功し、その膜が高いキャリア移動度を示すことを明らかにした。グラフェンと MoS_2 、 WS_2 薄膜を組み合わせたデバイス、グラフェンと同じ六方格子をもつ六方晶窒化ホウ素の単層、多層の大面積薄膜合成にも成功した。本研究結果に基づく高品質なグラフェンは広くグラフェン研究者に供給されている。これらの学術論文は、被引用数 Top10%以内に 21 報、Top1%以内に 1 報あり、極めて高い水準の研究成果である。櫻井は、バッキーボールの骨格内に窒素原子を持つトリアザスマネンの合成と、トリフルオロ基とフルオロ基をバッキーボール骨格に導入する手法の開発によるフッ素化バッキーボールの合成に成功した。また、金表面に浸漬によって配置したスマネン分子は最密充填構造を持ち上向きに配向していること、その分子に走査型トンネル顕微鏡探針を近づけると下向きに反転することを見つけ、その

反転が物理的な力によることを明らかにした。この現象は高密度メモリへの応用が期待できる。

ナノ粒子／バイオにおいて、村上の研究成果が顕著である。村上は、High-Density Lipoprotein(HDL)で金属ナノ粒子を被覆し、高い生体適合性を金属ナノ粒子に付与することに成功した。また、apolipoproteinA-I (apoA-I) に細胞膜透過ペプチドを結合させた HDL により、金属ナノ粒子の細胞内への移行を可能にし、さらにカチオン性脂質を含む HDL で金属ナノ粒子を細胞膜に局在させることにも成功した。この apoA-I に結合させるペプチドや脂質を検討して作製した変異体 HDL が後眼部への薬物キャリアとして機能すること、また、変異体 HDL 自体に治療効果があることを発見した。薬物のキャリアで被覆された金ナノロッドに遺伝子を結合させて細胞に導入し、そこに近赤外レーザー光を照射して熱を発生させることにより、遺伝子の発現が得られることも明らかにしている。これらにより、細胞の局所に金属ナノ粒子や薬物を送達する 1 細胞レベルのドラッグデリバリーシステムという新しい分野を創出した。

ナノ化学において、樋口は、青、赤、黄色に加え、緑色と黒色のエレクトロクロミック物質を開発し、マルチカラーエレクトロクロミズムを実現した。また、ユウロビウムイオンを含むポリマーが、蒸気の酸性あるいはアルカリ性により消光あるいは発光するベリルミネセンス特性をもつことを見出すとともに、鉄イオンとユウロビウムイオンを含む有機／金属ハイブリッドポリマーが酸化還元によって発光のスイッチングが起きることを見出した。さらに、ハサミで任意の形に切れるエレクトロクロミックディスプレイシートやグラデーション表現ができるエレクトロクロミック調光デバイスなどを開発した。今後、新しい機構のディスプレイ技術の進展が期待される。寺尾は、 π 共役ポリマーの電荷移動が分子内ホッピングであることに着目し、 π 共役鎖を局在させて局在軌道の広がりを持たせ、かつ軌道レベルを同程度にする分子設計でジグザグ型主鎖骨格を持つポリマーを合成、効率的なホッピング伝導を実現した。また、ジアリールエテンを含む被覆共役分子鎖で電極間を架橋して、可視光照射で OFF 状態、紫外光照射で ON 状態が得られる光応答性のスイッチングデバイスを実現している。

ナノ加工において、丸尾は、2 光子吸収を用いたマイクロ光造形法にて作製したマイクロ構造物を母型にした光硬化性樹脂 3 次元鋳型から、セラミックスの 3 次元マイクロ構造体を複製する技術を開発した。さらに、従来に無い 3 次元スパイラル形状の圧電セラミックスを負荷抵抗、焼結条件、マルチフィジックス解析 CAD による電極パターン最適化などで従来に比べ 30 倍の発電効率を得た。この結果は新しいカテゴリーの圧電デバイス開発を期待させる。これらの技術は Micro-Total Analysis System (μ TAS)などのラボオンチップ、医療用マイクロマシン、人工臓器、光ピンセットなど、今後益々研究開発が加速される分野で幅広く活用されることが期待できる。上野は、未踏の 10nm-node の非接触光リソグラフィ技術を確立した。また、光照射によってナノギャップ金属構造にプラズモン共鳴が発生し、そこに配置された高分子ゲルが体積相転移を起こすことを利用した赤外・テラヘルツ光検

出システムを開発した。次いで、金ナノ粒子に可視光を照射してプラズモン誘起により水を分解し、酸素と水素を化学量論的に発生させるプラズモン誘起の人工光合成システムを構築した。さらに、「金ナノ粒子／酸化チタン薄膜／金薄膜」構造によるプラズモン誘起を利用して、光の色により電流方向が変わるスイッチングデバイスを開発した。これらの学術論文は、被引用数 Top10%以内に 14 報、Top0.1%以内に 1 報入っており、極めて高い水準の研究成果である。

ナノデバイスにおいては、柳田の研究成果が顕著である。柳田は、金属酸化物 (MgO、SnO₂、ZnO) ナノワイヤの成長温度を従来の 800℃程度から 300℃～400℃まで低減した。金属酸化物を白金電極で挟んだセルについて、セル面積とメモリ形成電流によって、ユニポーラ型、バイポーラ型、メモリ現象を発現しないという 3 状態を作れることを明らかにした。また、パルプから抽出したセルロース繊維で作製したシートを白金電極と銀電極で挟んで、6 桁の電気抵抗の ON/OFF 比を有し高い可撓性のあるメモリを開発した。さらにナノワイヤを用いた NO₂ ガス分子センサ、リボ核酸やタンパク質などの生体分子センサ、熱電変換デバイス、3 次元ナノワイヤによるデオキシリボ核酸の長さ分別の研究に発展させている。

スピントロニクスにおいては、野崎の研究成果が顕著である。野崎は、電圧駆動型の磁気抵抗メモリ (MRAM) の実用化を目指して、書き込みエラー率の改善と書き込み電力の低減を行った。書き込み方式の工夫と磁性材料の改善により、記録層の垂直磁気異方性の大きさと電圧磁気異方性変化効率の最適化を進め、エラー率を 10⁻⁶ 以下まで低減し、電圧スピン制御効率を実用化レベルの 300fJ/Vm まで向上させた。従来の電流駆動のスピン励起法に比べ約 2 桁の低電力動作が実証されたことから、エラー率は未だ改善が必要であるが、低消費電力の不揮発性メモリの候補となることが期待できる。これらの取組の結果、この分野の国内および国際学会で、電圧駆動による高速応答性や電圧制御のセッションが設けられ、新たな潮流が形成された。これらの学術論文は、被引用数 Top10%以内に 8 報、Top1%以内に 2 報入っており、極めて高い水準の研究成果である。長浜は、磁気トンネル接合デバイスにおいて、二つの磁性層の磁化方向が互いに平行な場合はそのキャパシタンスは大きくなり、反平行の場合は小さくなるという磁気キャパシタンス (TMC) 効果とは逆の現象 (iTMC 効果) の存在を発見した。これにより高感度で電力消費の少ない新しい磁気センサやメモリなどへの展開が期待される。

以上のように優れた研究成果が多々創出されており、科学技術の進歩への貢献は大きいと評価できる。

(2) 研究成果の社会・経済への貢献

研究期間終了後の研究成果の応用に向けた発展状況について、顕著なものを以下に示す。

カーボン材料において、斎藤は、直噴熱分解合成法を改良した方法による単層カーボンナノチューブの合成技術を株式会社名城ナノカーボンに移転し、生産の工業プラントを立ち上げた。生産された単層カーボンナノチューブは研究用に市販されている。また、株式会社

名城ナノカーボン、電機メーカーと共同で、印刷エレクトロニクスに最適な半導体型カーボンナノチューブの高純度製造技術を開発している。吾郷は、超高品質で大面積のグラフェンを合成する技術を活用し、2012年から株式会社産学連携機構九州を通じてグラフェンのサンプル販売を開始した。佐藤は、生体に対する毒性が危惧されていた多層カーボンナノチューブが、化学修飾による親水化によって良好な生体適合性をもち、骨欠損部の充填材や骨再生の足場として機能する軽量の生体複合材として利用できる道を拓いた。この研究成果は科学新聞、日刊工業新聞など6つの業界紙によって報道され注目されている。

ナノ粒子／バイオにおいて、一柳は、ナノ磁気微粒子によるドラッグデリバリーシステムとハイパーサーミア(温熱療法)の基盤を開発した。これによりがん細胞の局所への薬物投与と温熱療法の2段階で治療を可能とすることが期待できる。村上は、HDLの変異体を最適化して治療薬を内包化したものを加齢黄斑変性モデルマウスに点眼し、脈絡膜の血管新生を阻害できることを明らかにした。これにより簡便で患者の身体的負担の少ない治療法の実現が期待される。また、HDLで被覆されて細胞内に導入された半導体性単層カーボンナノチューブが、近赤外光照射により一重項酸素を発生し、これにより殺細胞効果が発現するという新発見は、新たなガン治療への貢献が期待される。このことは日経産業新聞をはじめ11紙によって報道され注目されている。

ナノ化学においては、赤松は、サブミクロンスケール配線に適用可能な回路基板の樹脂の表面改質に関する研究や金属ナノ粒子・高分子複合体の合成に関する研究を企業の受託研究で展開している。実現できればフレキシブル回路基板材料の開発で問題となっている密着性が解決され、民生用電子機器の高機能化が実現できる。笠井は、有機ナノ結晶を簡便、迅速、安価に作製できる再沈法をナノバイオ医療へと展開してナノプロドラッグを作製し、東北大学大学院医学系研究科眼科教室と医薬品メーカーとの共同研究により、使用感が良く副作用リスクの少ない緑内障治療の点眼薬を開発した。樋口は、マルチカラー電子ペーパーやハサミで切ることができるディスプレイ、グラデーション変化する調光デバイス等を可能にするエレクトロクロミック材料を扱うベンチャー企業の設立を目指し、産業技術総合研究所認定ベンチャーとして承認を受け、つくば市のスタートアップ推進事業に採択されている。なお、ハサミで切れるディスプレイについては、日経産業新聞や科学新聞などの業界紙だけでなく、読売新聞やテレビでも報道されている。

ナノ加工においては、丸尾は、内閣府の戦略的イノベーション創造プログラム(SIP)により、医療、化学、光学、情報通信など幅広く応用するために、一般利用可能な試作ラボの超3D造形技術プラットフォーム研究拠点を2015年10月に開設した。

ナノデバイスにおいては、長谷川が開発したナノ電解法により作製されたナノ単結晶による新デバイス製造技術は、電極形成を含めすべて大気中のプロセスで、かつピンポイントにデバイス製造を行うことができるため、省エネルギー省資源を実現できる。開発されたデバイス製造技術は「ナノワイヤ作製キット」として医薬用ガラスメーカーから販売されている。柳田が開発したSnO₂ナノワイヤを使った低消費電力かつ高感度な化学分子センサは、従来

のセンサに比べて $1/10^9$ の消費電力を実現したものであり、人の健康管理に関連する揮発性化学物質をモバイル端末などで計測することが期待される。

スピントロニクスにおいては、野崎の開発した電圧駆動の不揮発性メモリ MRAM は、これまで電流駆動が主流であったデバイスに比べ消費電力を約 $1/200$ と画期的に削減するもので社会的インパクトは極めて大きい。電圧駆動 MRAM の電圧スピン制御効率と垂直磁気異方性は実用化ターゲット領域に到達したことから、今後、低消費電力の不揮発性メモリの候補となることが期待できる。

上記を含め顕著な研究成果は新聞やテレビ放映などにより広く報道された。その数は研究開始から 234 件にもなり、本研究領域から創出された研究成果や貢献が社会に周知されてきたと推察される。

以上のことから、本研究領域の研究成果を基に企業との共同研究を進めたり、起業するなど、独自技術を産業応用へ発展させるため、様々な取り組みを行っていること、社会・経済への貢献が認められたことなどから高く評価できる。

(3) その他の特記すべき波及効果

幾つかの研究課題において、当初はそれほど注目されていなかった熱輸送制御という新しい研究が方向付けられている。池田は、熱変換効率の向上をはかるため、材料の格子熱伝導率を低下させることの重要性に着目し、ナノ構造とのコンポジット材料による熱電変換効率の向上に成功した。効果はまだ大きくないが、ここ数年大きな注目を集めている熱輸送マネジメントの研究における重要なテーマ「ナノ材料による熱伝導制御」につながる着想と見られる。また、内田は、量子ナノ構造の電気的特性から研究をスタートさせているが、研究期間終了後に熱輸送の研究に発展させ、通常のトランジスタの設計における熱マネジメントの重要性を明らかにする研究成果や、架橋グラフェンの熱伝導制御による高速水素検出センサの実現など特徴的な研究成果を創出した。

トランジスタ応用としての重要性が注目された 2 次元材料に対し、太田は、電子の広がり と熱的ド・ブロイ波長との関係に注目し、大きな熱電能を得ることに成功している。研究期間終了後も人工超格子へ研究を発展させ、熱電材料研究に新しい流れを作っている。また、柳田は、研究期間中に酸化物ナノワイヤによる不揮発性メモリ動作という優れた研究成果を創出してきたが、その短い熱緩和時間に注目し、研究期間終了後に高速かつ極めて低消費電力のセンサデバイス創出に繋げた。これらのように、当初はそれほど注目されていなかった新しい研究が幾つか方向付けられたことは、研究領域終了後も研究が発展してきていることの証左である。

本研究領域の研究者が携わった一般の技術者、研究者への技術指導や研究人材の育成については、以下の実績が認められる。

三村は、グローバル COE プログラムの「高機能化原子制御製造プロセス教育研究拠点」(2008 年度～2012 年度)に、丸尾は、「情報通信による医工融合イノベーション創成」(2008

年度～2012 年度)に、吾郷は、「新炭素資源学」(2008 年度～2012 年度)に参画し研究人材の育成に取り組んだ。

本研究領域の研究者は、所属以外の機関、本研究領域以外の研究者とも多くの共同研究を行い、人材ネットワークを構築することを含め優れた研究成果をあげたと認められる。

本研究領域の研究者自身のキャリアアップについては、14 名の研究者が採択時の所属と異なる研究機関に異動後に昇進し、13 名の研究者が同一研究機関で昇進している。また、研究期間中あるいはそれ以降に 1 億円以上の大型の競争的資金を研究代表者として獲得した研究者は 10 名おり、その内 4 名は 2 件の競争的資金を獲得している。これらキャリアアップならびに大型の競争的資金の獲得は、本研究領域における研究が評価されたことが大きな要因であろう。また、本研究領域が、若手研究者の育成という視点で大きな役割を果たしたということがうかがえる。

3. その他

本研究領域では、将来のナノテクノロジーの本格的な実用化時期に必須となる「ナノ製造技術」の基盤を提供するとして、達成目標の中に、「製造技術の開発」、「製造技術基盤応用による具体的事例の提示」のキーワードが込められていた。これを効果的に達成させるために、技術の専門性を有するとともに、製造技術の開発に携わった経験と見識をもち、適切なアドバイスが行える立場で、産業界からアドバイザーが加わっていた。また、研究総括が企業出身であることもあって、旨く機能したのであろう。ほとんどの研究者が先の二つのキーワードに即した研究成果を達成している。しかし、企業との連携などがあれば、もう一步前に進むことができたのではないかと思われるものも見受けられる。研究期間中に得られた研究成果をどのように発展させるかは、研究者の志向や裁量、さらには異動先の環境にも大きく依存する。また、デバイス開発から多くの企業が撤退している昨今の状況を考えると、企業が利する動機付けや仕掛けが必要と考えられる。

2019 年 6 月に日本のバイオ戦略が 11 年ぶりに改定され、「バイオ戦略 2019 ～国内外から共感されるバイオコミュニティの形成に向けて～」が作成された。その中で、デジタルとバイオの融合が強く推奨され、ナノバイオ計測を含む計測技術の進展とそこから上がるデータのマルチオミクス解析の重要性が取り上げられている。これを実現するためには、ナノ粒子/バイオ、ナノ化学、ナノ加工などナノ領域の技術展開が必須であるが、この領域の人材が今日非常に不足している。このような状況を考え、本研究領域出身の研究者の指導の下に多くの次の世代を担う研究者や学生が排出されていくことが望まれる。