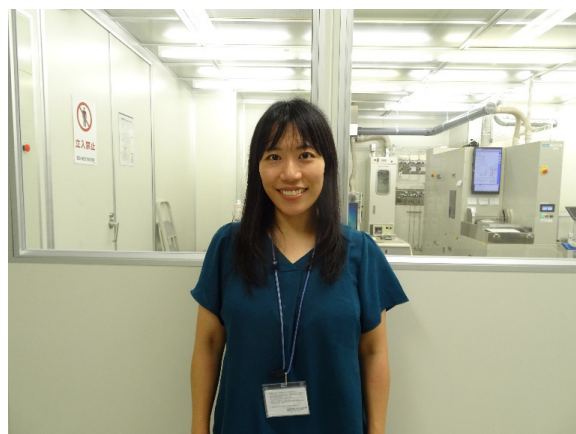




文部科学省ナノテクノロジープラットフォーム 令和2年度技術スタッフ表彰 若手技術奨励賞 バイオセンシングデバイスの実現に向けた微細加工技術

受賞者 物質・材料研究機構 微細加工プラットフォーム 吉田 美沙氏に聞く

文部科学省のナノテクノロジープラットフォーム事業 (NPJ) は微細加工プラットフォーム (PF), 微細構造解析 PF, 分子・物質合成 PF の3技術領域の先端設備のPFを揃えて産学の研究者の共用を可能とするもので、全国の大学・公的研究所等の25機関が参画して、37のPFが共用設備を揃えている。各PFともエキスパートによる技術支援が設備利用成果に大きく貢献しており、NPJでは毎年秀でた支援活動を行った技術スタッフを表彰している。表彰式は例年国際ナノテクノロジー総合展・技術会議 nano tech の会場で行われてきた。令和2年度の nano tech 2021 は新型コロナウイルス感染症の流行下のため、開催形式としては会場で行うリアル展示・会議とインターネットを利用するオンライン展示・会議を併用するハイブリッド形式で開催され [1], NPJ の表彰式もハイブリッド形式で行われた。



PFのクリーンルームを背景に吉田氏

5件の技術スタッフ表彰 [2] の内の若手技術奨励賞が、国立研究開発法人 物質・材料研究機構 (NIMS) 微細加工PFの吉田美沙氏の「バイオセンシングデバイスの実現に向けた微細加工技術」に授与された [3]。バイオセンシングデバイスという挑戦的な利用者の研究に寄り添って、利用者の目的達成に貢献された活動の様子を紹介するため、Web会議で、吉田氏にお話を伺った。



1. NIMS 微細加工 PF の概要

1.1 微細加工 PF の特徴

物質・材料研究機構 (NIMS) は、NPJの微細加工プラットフォーム (PF), 微細構造解析 PF, 分子・物質合成 PF の3PFに参画しており、この3PFをつくば市の千現地区にある材料信頼性実験棟に集結している。図1はその建物内での3PFの存在箇所を示している。微細加工PFは建物1階のピンクの枠線で示す領域を占め、その隣に微細構造解析PF, 2階に分子・物質合成PFが所在している。従って異なるPF間に跨る装置の共用も効率的に行える。

図2は微細加工PFの450m²のクリーンルーム内に設置されている主な装置群とその配置を示している。クリーン度 Class 100 のエリアにはリソグラフィー関係, Class 1000 のエリアには熱処理, エッチング, 薄膜形成関係, Class 10000 のエリアにはプロセス評価関係の装置が揃えられている。なお、クリーンルームの外にはデバイス作

製の後工程の実験室もある。

以下に NIMS 微細加工 PF の支援活動の特徴を列挙する。

- ①約 40 台の装置を同一施設に集約
- ②多くの装置は試料材料に制限を設けず、多様な材料・目的に対応し支援を行っている

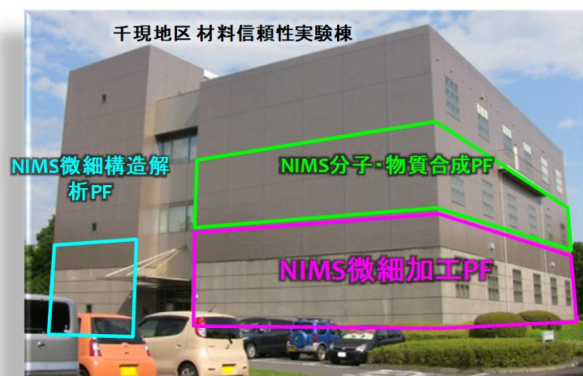


図1 NIMS 千現地区 材料信頼性実験棟に3PFを集結

多様な材料・プロセスに対応した微細加工装置群



図2 NIMS 微細加工 PF のクリーンルーム (450m²) 内の装置群の配置, クリーン度の Class 別けたエリアに装置が配置されている。

③ほとんどの装置で小片試料からウェハサイズまで様々な大きさの試料に対応できるようにしている。これにより基礎基盤研究のニーズに応えている

④NIMSの微細加工PFのスタッフは装置担当制でなく、図2に示す様々な装置を駆使して、利用者の専任スタッフとしてトータルプロセスにおける支援を行っている

このように利用者の要望に寄り添った柔軟性のある対応をするのが本PFの特徴である。

行がある。スタッフが支援活動を行うのは後の二つであり、まず、利用相談の段階で、利用者の目的の共有、支援側からのプロセスの提案などを行い、技術補助の場合は、機器利用希望ユーザーへの装置トレーニングや技術指導などの支援をおこなう。技術代行は、スタッフによる試料作製プロセスの代行であり、バイオ分野などの微細加工に精通していない分野からの依頼も多い。様々な分野からの要望に柔軟な対応が必要であり、利用者の課題に応える提案力が問われる。経験を積み自らの対応力の向上を図りたいと、吉田氏は語った。

1.2 微細加工PFの活動

(1) 支援業務の流れ

PFの利用形態としては、機器利用、技術補助、技術代

(2) PF利用者の技術分野

図3に2019年度のPF利用者の利用目的の技術分野の比率を示す。ナノエレクトロニクスとフォトニクスで全

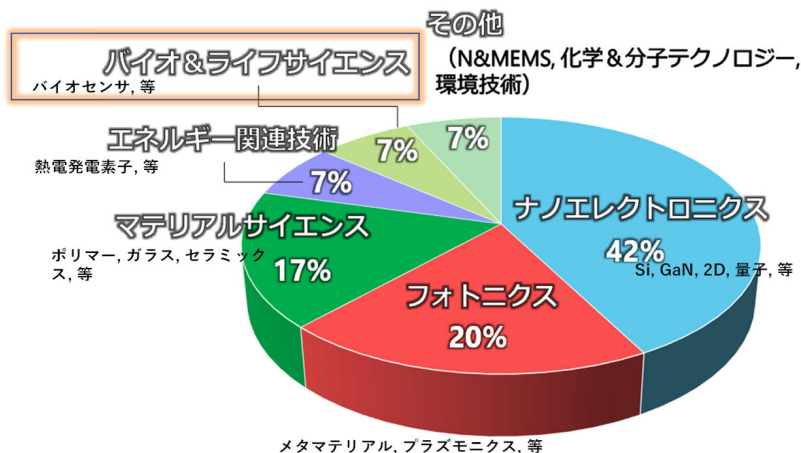


図3 微細加工PF利用者の研究・開発テーマの技術分野分布 (2019年度)

体の62%を占め、今回吉田氏が受賞の対象となったバイオとライフサイエンスは7%である。ただ、吉田氏の支援は、バイオとライフサイエンスだけでなくナノエレクトロニクスやフォトニクス分野等他技術分野利用者にも広く対応している。

(3) 微細加工 PF の活動経緯

図4は、NPJが開始された平成24年から令和2年度までの間における、NIMS 微細加工 PF の公開利用課題数の推移を、利用者の所属別に表している。緑色が合計数の推移である。令和2年度は新型コロナウイルス感染症が流行した年で、特に大学の課題数が減少している。図5は、図4の利用者所属別の数を9年間累積した値を比率で表したものである。大学等が約1/2強を、大企業が約1/4を占めている。

表1はNIMS 微細加工 PF 利用者が、利用によって創出した成果の数を表している。学術誌等に掲載された論文数、国際会議、国内学会に発表した件数、特許出願件数

である。2020年度は新型コロナウイルス感染症流行の影響で特に国際会議・国内学会発表数が減少した。図4に示した利用課題件数と比較すると、利用者の約3割が論文を投稿しており、約5割が国際会議で発表していることになり、利用成果が大きいことが窺える。

(4) 新型コロナウイルス感染症流行下での作業遠隔化に向けた取り組み

新型コロナウイルス感染症の流行は国内では、2020年当初に始まり、2021年度に入っても継続している。こうした環境下でのPFの装置共用の在り方として、操作の遠隔化に向けた取り組みを行い、2020年度には最新OS対応の制御ソフトを使用し遠隔操作可能な装置4台(図6)を導入した。また、1対1または1対多のリモート操作説明およびトレーニングを実施した。こうした新しい共用の在り方は、利用者に時間的にも空間的にも便宜を提供するものであり、アフターコロナにおいても積極的に展開していきたいと吉田氏は語った。

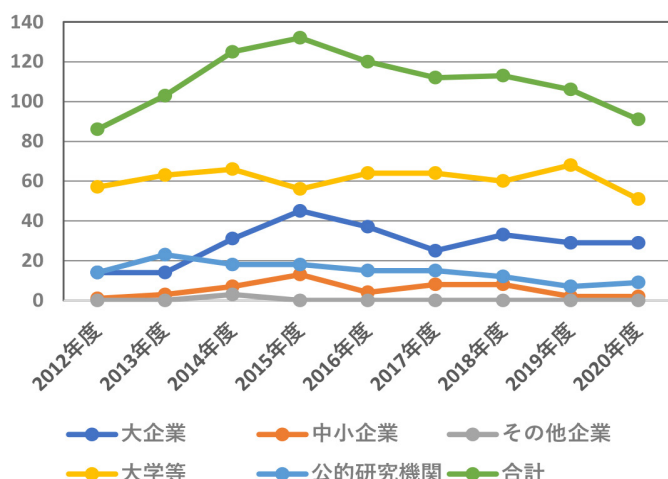


図4 NIMS 微細加工 PF の共通利用課題件数の利用者種別毎の経緯 (出典：参考文献 [4] を基に作成)

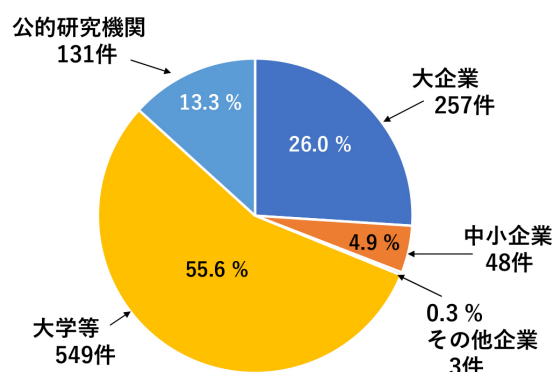


図5 NIMS 微細加工 PF の令和2年度までの合計の共用装置利用件数の利用者種別分布 (出典：参考文献 [4] を基に作成)

表1 PF 利用により創出した成果、括弧内は内部利用成果の内数

	2018	2019	2020
論文	34 (26)	38 (25)	32 (23)
国際会議	61 (25)	54 (33)	17 (14)
国内学会	75 (19)	67 (19)	39 (16)
特許	16 (16)	5 (2)	3 (2)
合計	186 (86)	164 (79)	91 (55)

2020年12月下旬導入
顕微式自動膜厚測定システム



2021年2月上旬導入
赤外線ランプ加熱装置



2021年2月中旬導入
6連自動蒸着装置



2021年2月下旬導入
多機能型原子層堆積装置



図6 2020年度に導入した遠隔操作可能な装置群



2. 吉田氏の支援活動

2.1 微細加工 PF の技術支援活動に発揮されるスキル

NIMS 微細加工 PF では技術支援に当たっては、利用者の目的や課題を理解し、適切なプロセスを提案するなど、利用者がソリューションを得られるような機能を果たすことをモットーとしている。そのためには、微細加工に関する確かな基盤技術とそのデバイスへの適用経験を持っていることが望まれる。

吉田氏は、東京大学工学部の卒論で「Ge 基板でのトンネルトランジスタ」に関する研究を、修士課程で「III-V on Insulator 基板での CMOS フォトニクス」に関する研究を行った。その後、国立研究開発法人 産業技術総合研究所で、テクニカルスタッフとして「ダイヤモンドデバイスの研究補助業務」に2年間携わった後、2016年からNIMS 微細加工 PF のスタッフの業務に携わっている。2019年度の微細加工プラットフォーム16機関技術支援者集合研修において「最優秀貢献賞」を受賞している。そして今回 NPJ の技術スタッフ表彰において「若手技術奨励賞」を受賞した。

このように、半導体技術に関わる様々な材料・デバイスの研究経験で得た専門能力を基に微細加工 PF の支援業務を遂行している。以下にバイオセンシングデバイスの実現に挑戦する利用者を微細加工技術で支援した実施例を3件紹介する。

2.2 バイオセンシング用グラフェントランジスタ作製支援

本支援例は、東芝株式会社からの依頼で、同社が東京医科歯科大学との共同研究で進めているバイオセンシングシステム研究開発用のグラフェン FET (Field Effect Transistor: 電界効果型トランジスタ) の作製プロセスの代行支援である。実験用に大量のサンプルを提供している。この PF 利用成果の一つとして、共同研究グループは、このグラフェン FET バイオセンサに携帯用臭気捕捉モジュールを組み合わせ、高感度嗅覚システムを実現し、その成果を ICEP (International Conference on Electronics Packaging) 2021 に発表している [5]。

(1) グラフェン FET の構造と PF の分担

作製したグラフェン FET の構造を図7に示す。図7(a)の模式図に示すように、 SiO_2 (二酸化シリコン) 絶縁基板上に矢印で示すグラフェン膜領域 ($30\mu\text{m} \times 50\mu\text{m}$) を作り、その両端表面に電流を流すソースとドレイン電極を形成し、それらの表面を絶縁性保護膜で覆い、グラフェン中央部のゲートに相当する部分だけ保護膜に窓 ($10\mu\text{m} \times 30\mu\text{m}$) を開ける。図7(b)は感光性ポリイミドのレジスト膜で全体をカバーし、露光によりゲート領域の窓を開けてグラフェンを露出した状態の写真である。PFではここまで加工して、図8に示すウェハ状態で利用者に渡している。写真のウェハ径は4インチであるが、現在

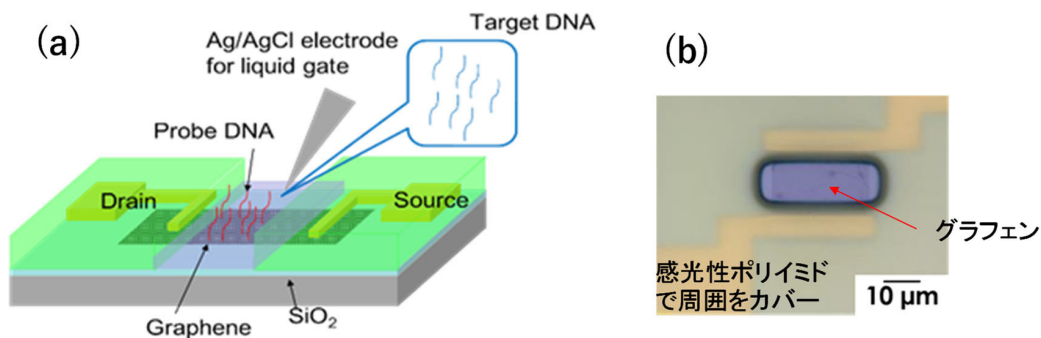


図7 バイオセンシング用グラフェン FET (DNA センシングの例) の構造 (a) とゲート接続部の保護膜の窓の写真 (b)

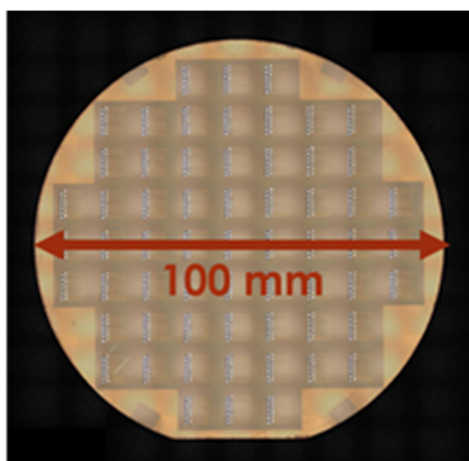


図8 グラフェン FET の母体を搭載したウェハ(4インチウェハの例)

は6インチにしているとのこと。写真に見える方形に仕切られた一桁に8個のFETが入っている。

なお、利用者は、このグラフェン FET の母体となる構造体のグラフェンが露出した窓を図7 (a) に示すように電解液で覆い、これをゲートとする。電解液にゲート電極 (Ag/AgCl) を接続することにより、グラフェン表面上の電界液にできる電気二重層を介してグラフェン内のチャネル電流を制御できる。ここで、例えば Probe DNA をグラフェンに修飾することができ、電解液中の Target DNA を捕らえることができれば、それが持つ電荷によってチャネル内電荷が変わり、ソース・ドレイン電流特性が変化する。グラフェンの導電率が極めて高いので、きわめて高感度の DNA センシングができることになる。

(2) グラフェン FET 作製プロセスの課題と対処

本件は、利用者からウェハの形態での納品の希望があり、継続的にある程度多い量の作製が見込まれる依頼であった。これまでのグラフェンデバイス作製の経験は、小片の基板上に試験的に少量作る、歩留まりも悪いものであったので、ウェハプロセスで歩留まりを高くするプロセスの再構築を行った。

一番の問題は、原子層が1層だけのグラフェンが剥が

れやすいことであった。利用者の方で購入されたグラフェンはウェハ全面を CVD (Chemical Vapor Deposition) によりカバーしている。FET 毎の必要領域だけにグラフェンを残して周りをエッチングにより除去し、その後メタルパターンを形成するためのリフトオフを行う必要がある。それらのリソグラフィ工程で使用するレジスト剥離用の有機溶剤 NMP (N-メチル-2-ピロリドン) が極性溶媒であり、グラフェン剥がれの主要因であるとの判断で、NMP を使わないで済むレジスト材料を選定した。

また、図7 (b) に示したようにゲート接続のために周辺の保護膜に窓を開けグラフェンを露出する必要があるが、プラズマプロセスを用いるとグラフェンにダメージを与えるので、プラズマプロセスを回避するために、ゲート周囲の保護膜を通常使用する SiO₂ (二酸化シリコン) ではなく感光性ポリイミドにしている。

これらの諸検討を経て構築されたグラフェン FET 作製プロセスによりグラフェン剥がれが激減し、歩留まりが良好なウェハプロセスが実現した。現在でも継続的に利用者の要望に応じてグラフェン FET 搭載のウェハを利用者に提供している。

2.3 Au-Pt 櫛型電極による自己発電型バイオセンサ作製支援

本支援例は、東京海洋大学の研究チームからの PF 利用である。利用形態は技術代行で、同チームは継続的にバイオセンサの研究を行っており、実験に使うサンプル数も多いことから、6インチウェハを用いた試作を行った。

作製したバイオセンサのチップの構造は、ガラス基板上に図9に示すような金属膜パターンを形成したものである。図左はセンサチップ全体、右は櫛の歯部分の拡大図である。左から Au (金)、右から Pt (白金) の櫛の歯がかみ合っ差し込まれた形をしている。10μm 幅の櫛の歯が Au と Pt が交互にマイクロスケール間隔で並んでいる櫛型電極の表面において、H₂O₂ の分解反応が起こり、反応に比例した電流発生が起こる。利用者は、このことを利用した自己発電型バイオセンサの研究をしている。研究成果の例として参考文献 [6] が発表されている。

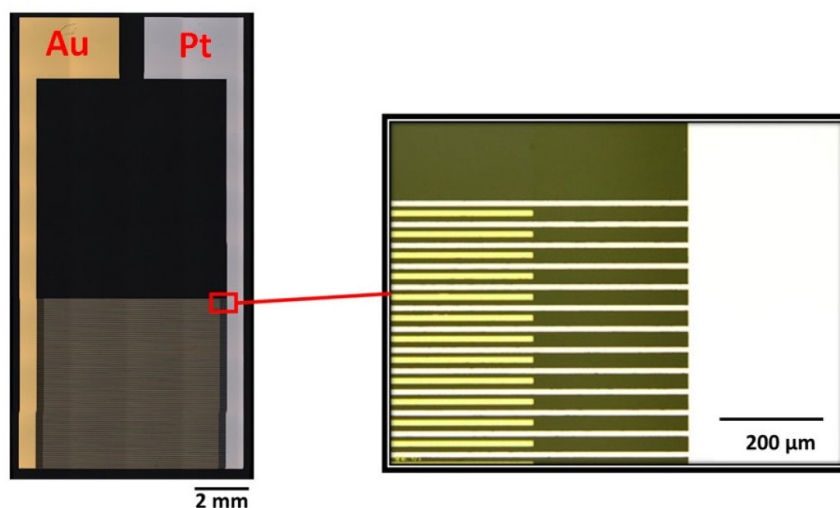


図9 櫛型電極バイオセンサのパターン構成：センサチップ（左）と電極拡大写真（右）

センサチップの作製プロセスでの課題は、櫛型の Au 電極と Pt 電極の間で導通がおこってしまうことで、その原因は電極形成のリフトオフの工程で金属破片が再付着しやすいことにあった。この問題はリフトオフを新製品の高圧ジェットによるリフトオフ装置を用いて、NMP でリフトオフしながら、金属破片を洗い流すことで解決し、歩留まりを 50% から 90% 程度に改善することができた。

また、プロセス上の注意点として、電極が 2 種の金属であり、2 回のリソグラフィー工程間の位置合わせを精度よく行う必要がある。露光には LED 光源による高速マスク露光装置を用いており、その位置合わせ機能を活用した。ウェハプロセスが終わった後、ダイシングしてセンサチップの形で利用者に提供している。

2.4 平行平板電極による免疫センサ作製支援

この技術代行も利用者は同じ東京海洋大学の研究チームである。図 10 (a) はガラス基板上に作られたセンサチップのパターン写真で、丸い部分が平行平板電極、四角の部分は外部接続電極で共に金が露出しており、その他の領域は SiN の 5 μ m 厚の絶縁保護膜で覆われている。

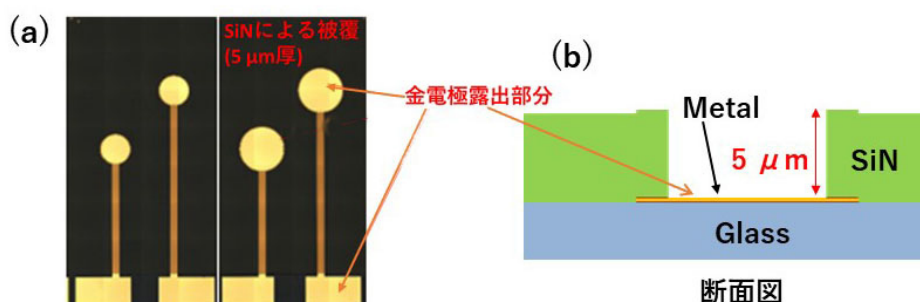


図 10 センサチップのパターン写真 (a) とその電極部の断面模式図 (b)

図 10 (b) はその電極部分の断面模式図である。

大きい丸と小さい丸のチップがあるが、利用者は大きい丸の上に小さい丸が来るように片方のチップを 90 度回転させて向かい合うように重ねて使う。その際 SiN (窒化シリコン) の窓のところに評価液を満たしておく。こうしてギャップ 10 μ m の平行平板センサが構築される。なお、チップ内に二つの平行平板電極があるが、一つは試料用でもう一つには評価基準とする液体、例えば水などを入れる。利用者はこのセンサを用いて電気化学インピーダンス (EIS: Electro-chemical Impedance Spectroscopy) 法による免疫センシングの実験を行っている [7]。

このセンサの実験は、当初は平行電極間ギャップが 4 μ m、したがって保護膜に 2 μ m 厚の SiO₂ を用いていた。しかし、特性ばらつきや電極間接触等の問題が発生して、利用者から電極間ギャップを 10 μ m に変更する要望があり、プロセスの検討が必要になった。課題は 5 μ m 厚にする保護膜の材料選びであった。SiO₂ は CVD による成膜時に応力によるクラックや膜剥がれあつて厚膜化ができず、永久レジストの使用は、利用者が使用するピラニア洗浄 (濃硫酸 (H₂SO₄) と過酸化水素水 (H₂O₂) の混合液で強力に有機物を除去する) で劣化することから不可となっ

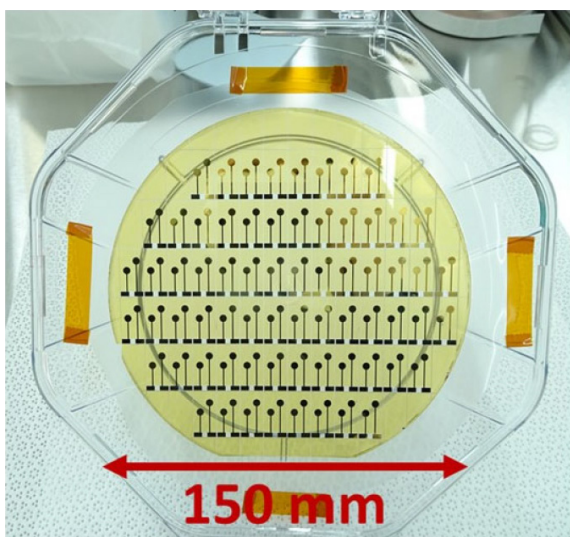


図 11 ウェハ全体の写真

た。ピラニア洗浄は、センサを何回も使いまわしたい、という利用者からの要求であった。検討結果、図 10 (b) に示した SiN 膜で応力レスのプロセス条件にたどり着き、10 μ m ギャップの平行平板電極の作製に成功した。図 11 はこのチップを搭載したウェハ全体の写真である。



3. おわりに

吉田氏は幾多の PF 利用者の支援業務に携わっているが、今回の技術スタッフ表彰では前章に紹介したバイオセンシングデバイスに対する技術支援活動が評価された。吉田氏はこの分野の支援業務の共通点について次のように述べている。

「バイオセンサ研究には再現性を検証するために大量の試料が必要であり、高精度・高効率・高生産性なプロセスの確立が求められる。これに対応するために、それぞれの案件に特異的な仕様条件に合わせた作製プロセスの最適化を求め、利用者に提案することが重要である。プロセスを最適化するためには、プロセス全体を見て一連のフローを構築しつつも、一つ一つのプロセスの条件を丁寧に検証していくことが必要である。」

吉田氏は若手であるが、学生時代から半導体に関わる色々な材料やデバイスの研究現場を経験してきた半導体作製プロセスの専門家としてバイオセンサの創造的研究を積極的に支援し、利用者の研究成果達成に貢献してきた。こうした経験の積み重ねは、吉田氏ご自身の専門家としての技術の幅を更に広め、奥行きを深めることにもなる。潜在的ニーズを持つ幅広い分野からの PF の利用を期待し、利用者に積極的に寄り添い、支援する姿勢からも、

同氏の今後の益々の活躍が期待される。異分野融合によるイノベーション発現という吉田氏の想いが実を結ぶ日が待たれる。



4. 参考文献

- [1] 物質・材料研究機構ナノテクノロジープラットフォームセンター、「第 20 回国際ナノテクノロジー総合展・技術会議 (nano tech 2021) 開催報告」, NanotechJapan Bulletin, Vol. 14, No. 1, 2021.
https://www.nanonet.go.jp/magazine/content/files/mag_pdf/Event_rep_pdf/v14n1_nanotech2021.pdf
- [2] 物質・材料研究機構ナノテクノロジープラットフォームセンター、「ナノテクノロジープラットフォーム令和 2 年度秀でた利用成果と技術スタッフ表彰者が決定!!」, ナノテクジャパン (Web サイト).
https://www.nanonet.go.jp/ntj/topics_gov/?mode=article&article_no=5391
- [3] 物質・材料研究機構ナノテクノロジープラットフォームセンター、「バイオセンシングデバイスの実現に向けた微細加工技術」ナノテクジャパン (Web サイト)
https://www.nanonet.go.jp/pages/research_support_award/R02_Award_5.pdf
- [4] 物質・材料研究機構、「NIMS 微細加工プラットフォーム」, ホームページ, 研究支援実績,
<https://www.nims.go.jp/nfp/achieve/data/index.html>
- [5] Hideyuki Tomizawa, Kou Yamada, Hiroshi Hamasaki, Yoshiaki Sugizaki, Miyuki Tabata, Yuji Miyahara, Atsunobu Isobayashi, "A high-sensitivity olfactory system with a graphene FET biosensor and a portable odorant capture module," 2021 International Conference on Electronics Packaging (ICEP 2021), Online, May 12-14, 2021, Oral (WC2-4).
- [6] Hitoshi Ohnuki, Takuya Wako, Barbara Mecheri, Haiyun Wu, Daiju Tsuya, and Hideaki Endo, "Self-powered hydrogen peroxide sensor and its application as a biosensor," Japanese Journal of Applied Physics 58, SBBG16 (2019).
- [7] 藤城志遥, 大石啓太, 津谷大樹, 呉海云, 遠藤英明, 大貫等, "電気化学インピーダンス法を用いた平行平板型バイオセンサの最適化", 第 67 回応用物理学会春季学術講演会, [12p-PA7-1~16] (2020).

本文中の図表は図 4 と図 5 を除いてすべて吉田氏から提供された。

(向井 久和)