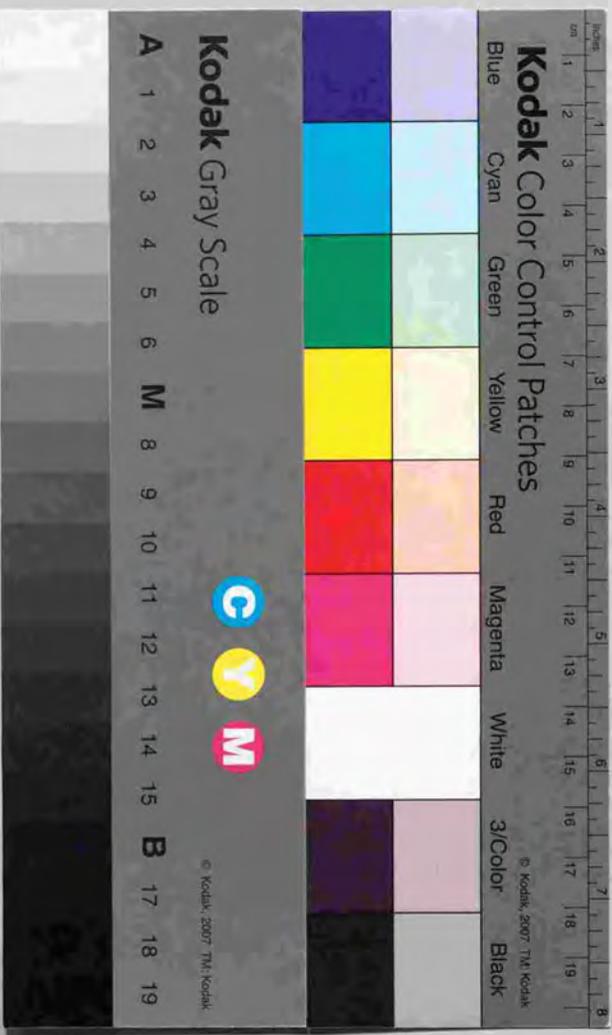


フォトニック構造物研究のための
微小球の機械的3次元配列手法
に関する研究

宮崎 英樹



フォトニック構造物研究のための
微小球の機械的 3 次元配列手法
に関する研究

宮崎英樹

京都府立総合資料館
三手山温泉元水正徳御殿の御朱印
御朱印の御朱

御朱印

目次

1 緒論	1
1.1 電磁波と物体の相互作用	3
1.1.1 電磁波とは	3
1.1.2 電磁波と物体の相互作用	4
1.1.3 本研究で対象とする電磁波と物体	9
1.2 フォトニック構造物に関する研究の現状と課題	10
1.2.1 フォトニック構造物とは	10
1.2.2 光散乱現象に関する研究の現状	11
1.2.3 フォトニック構造物研究の現状—ランダム媒質—	19
1.2.4 フォトニック構造物研究の現状—フォトニック結晶概要—	21
1.2.5 フォトニック構造物研究の現状—フォトニック結晶の3つの 目標—	25
1.2.6 フォトニック構造物研究の現状—フォトニック結晶の従来の 実現例—	28
1.2.7 フォトニック構造物研究の現状—その他の構造物—	37
1.2.8 フォトニック構造物研究の構造性と課題	38
1.2.9 有限フォトニック構造物研究のために必要な技術	41
1.3 微小物体操作技術に関する研究の現状と課題	45
1.3.1 微小物体操作技術とは	45
1.3.2 研究課題から見た微小物体操作技術の現状	47
1.3.3 研究課題から見た微小物体操作技術の課題と本研究の位置づけ	54
1.3.4 実現形態から見た微小物体操作技術の現状	57
1.3.5 実現形態から見た微小物体操作技術の課題と本研究の位置づけ	61
1.4 本研究の目的	64
1.5 本研究の方法	64
1.5.1 本研究の構造	64
1.5.2 フォトニック構造物研究に必要な微小物体操作技術の確立	64
1.5.3 フォトニック構造物研究における有効性の証明	65
1.6 本研究の工学研究としての意義と特徴	65
1.7 本論文の構成	66

2 微小球の機械的配列の要素技術概論	69
2.1 微小物体操作技術に基づいたフォトニック構造物研究における作業の分析	71
2.1.1 作業に要求されること	71
2.1.2 作業に課される制約条件	73
2.2 フォトニック構造物研究のための微小物体操作プロセスの実現	73
2.2.1 基本方針と要求の実現のための課題	73
2.2.2 本研究における解決の方法	74
2.2.3 微小球の機械的配列プロセスの設計結果	76
2.3 微小球の機械的配列のための要素技術	78
3 電子顕微鏡内微細作業システム	81
3.1 走査型電子顕微鏡	83
3.1.1 走査型電子顕微鏡の原理	83
3.1.2 走査型電子顕微鏡の種類	85
3.1.3 微小球機械的配列に必要な電子顕微鏡性能	89
3.1.4 微小球機械的配列作業のための電子顕微鏡の選択	90
3.2 マイクロマニピュレータ	95
3.2.1 電子顕微鏡用マイクロマニピュレータの基礎	95
3.2.2 電子顕微鏡用マニピュレータの歴史と現状	96
3.2.3 微小球機械的配列に必要なマニピュレータ性能	98
3.2.4 微小球機械的配列作業のためのマニピュレータの選択	103
3.3 微小球機械的配列のための作業環境	105
3.3.1 作業環境に起因する諸問題	105
3.3.2 汚染物析出量計測方法	107
3.3.3 汚染物析出速度と電子ビーム条件の関係	111
3.3.4 汚染物析出速度と真空度・材料の関係	113
3.3.5 微小球の大きさと汚染物析出形態の関係	118
3.3.6 汚染物析出が対象物の微小化に与える制約条件	119
3.3.7 微小球機械的配列に必要な条件	122

4 微小球準備技術	125
4.1 微小球製作技術	127
4.1.1 微粒子製作技術概論	127
4.1.2 微小球製作技術	128
4.1.3 フォトニック構造物研究に有用な微小球	129
4.2 微小球分散技術	132
4.2.1 分散技術概論	132
4.2.2 滴下法の概要	136
4.2.3 溶媒の選択方法	136
4.2.4 濡れ性の改善方法	146
4.2.5 懸濁液濃度の選択方法	147
4.2.6 溶媒の汚染により生じる問題	150
4.2.7 実際の滴下作業	152
4.2.8 滴下法以外の微小球分散手法の可能性	153
4.2.9 微小球分散技術のまとめ	154
4.3 微小球分級技術	154
4.3.1 フォトニック構造物研究に必要な直径精度	154
4.3.2 粒子径計測技術概論	157
4.3.3 画像情報による微小球直径計測手法	158
4.3.4 光散乱による微小球直径計測手法	159
4.3.5 質量による微小球直径計測手法	160
4.3.6 微小球分級技術のまとめ	162
5 微小球の機械的操作の力学	163
5.1 微小物体の付着に関する理論	165
5.1.1 マイクロロボット工学における従来の付着力理論	165
5.1.2 従来の付着力理論の問題点	167
5.1.3 接触力学的アプローチ	171
5.1.4 固体間凝着理論の検証	174
5.1.5 微小物体の付着問題の考え方	177
5.2 電子顕微鏡内での微小物体の付着メカニズムの解明	177
5.2.1 はじめに	177

5.2.2	電子顕微鏡内での微小物体付着力測定システム	178
5.2.3	高分子微小球と工具の付着力の測定	178
5.2.4	電子顕微鏡内での微小物体の付着メカニズム	180
5.3	電子顕微鏡内での微小物体の帯電メカニズムの解明	182
5.3.1	帯電に起因する諸問題	182
5.3.2	電子顕微鏡内での微小物体の帯電のモデル	182
5.3.3	帯電を制御するための方法	187
5.4	電子顕微鏡内での微小球の付着・離脱手法	187
5.4.1	研究初期の経験的知見とそのメカニズム	187
5.4.2	微小球と基板の付着力の調節方法	188
5.4.3	付着界面の破壊方法	190
5.4.4	微小球と工具の付着力の制御方法	190
5.4.5	微小球の機械的操作の力学のまとめ	191
6	微小球配列作業を支援する技術	193
6.1	微小球の高精度配置を支援する方法	195
6.2	微小構造物の再発見を支援する方法	199
6.3	微小構造物のハンドリングを支援する方法	201
7	微小球配列技術を用いたフォトニックバンド効果の実証	205
7.1	フォトニックバンド効果	207
7.1.1	フォトニックバンド効果とは	207
7.1.2	分散特性とバンド図	208
7.1.3	波動論的に考えた分散特性の意味—屈折率の人工制御—	213
7.1.4	粒子論的に考えた分散特性の意味—輻射場の人工制御—	214
7.1.5	本研究におけるフォトニックバンド効果の実証方法とその意義	215
7.2	単層結晶のフォトニックバンド効果	218
7.2.1	単層結晶の定性的なフォトニックバンド構造	218
7.2.2	単層結晶の厳密なフォトニックバンド構造	224
7.2.3	単層結晶のフォトニックバンド効果の観察方法	226
7.2.4	単層結晶のフォトニックバンド効果に関する実験の計画	230

7.3	単層フォトニック結晶の設計と製作	231
7.3.1	測定周波数領域の選定	231
7.3.2	微小球の材質・大きさの選定	232
7.3.3	単層フォトニック結晶試料の設計	233
7.3.4	単層フォトニック結晶の製作	235
7.3.5	単層フォトニック結晶の製作結果	236
7.4	単層フォトニック結晶の透過スペクトル	238
7.4.1	測定方法	238
7.4.2	測定結果	240
7.4.3	単層結晶のフォトニックバンド効果に関する考察	245
7.4.4	単層結晶のフォトニックバンド効果のまとめ	253
7.5	多層結晶のフォトニックバンド効果	253
7.5.1	単層結晶から多層結晶への質的变化	254
7.5.2	多層化によるブラッグ反射特性の変化	258
7.5.3	多層結晶のブラッグ反射特性とフォトニックバンド効果	270
7.5.4	多層結晶のフォトニックバンド効果に関する実験の計画	270
7.6	多層フォトニック結晶の設計と製作	272
7.6.1	測定波長, 微小球の材質・大きさの決定	272
7.6.2	多層フォトニック結晶試料の設計	274
7.6.3	多層フォトニック結晶の製作	277
7.6.4	多層フォトニック結晶の製作結果	280
7.7	多層フォトニック結晶のブラッグ反射	280
7.7.1	測定方法	280
7.7.2	測定結果	284
7.7.3	多層結晶のフォトニックバンド効果に関する考察	293
7.7.4	多層結晶のフォトニックバンド効果のまとめ	295
8	フォトニック構造物研究と微細作業技術の今後の展望	297
8.1	フォトニック構造物に関する研究の将来展望	299
8.1.1	微小球配列法による研究の展望	299
8.1.2	微細加工技術と微粒子操作技術	303
8.2	微粒子の機械的配列手法に関する将来展望	304

8.2.1	微粒子配列技術の限界の向上	304
8.2.2	物理学研究と微細作業技術	306
8.2.3	微細作業技術の展望	308
9	結論	311
9.1	結論	313
9.2	本研究の意義	315
付録	318	
A	必要な1次分級精度に関する考察	321
A.1	目的	321
A.2	仮定	321
A.3	計算	321
A.4	結果	322
B	ポリスチレンの赤外領域での複素屈折率の測定	324
B.1	目的	324
B.2	方法概要	324
B.3	エリプソメトリ法による複素屈折率の測定方法	325
B.4	反射 Kramers-Knorig 解析法による複素屈折率の計算方法	328
B.5	吸光度スペクトルからの消衰係数の計算方法	331
B.6	測定結果	333
B.7	ポリスチレンとポリビニルトルエンの光学特性	338
B.8	結論	342
謝辞	351	
参考文献	351	

第 1 章

緒論

1.1 電磁波と物体の相互作用

1.1.1 電磁波とは

数学的・物理学的に見た電磁波

電磁波とは、電荷の加速度運動（電流）にともなって空間に放射される電磁界で、その根本原理は以下の Maxwell の方程式で記述される [1, 2, 3].

$$\nabla \times \mathbf{E}(\mathbf{r}, t) = -\frac{\partial}{\partial t} \mathbf{B}(\mathbf{r}, t) \quad (1.1.1)$$

$$\nabla \times \mathbf{B}(\mathbf{r}, t) = \mu_0 \mathbf{J}(\mathbf{r}, t) + \mu_0 \epsilon_0 \frac{\partial}{\partial t} \mathbf{E}(\mathbf{r}, t) \quad (1.1.2)$$

$$\nabla \cdot \mathbf{D}(\mathbf{r}, t) = 0 \quad (1.1.3)$$

$$\nabla \cdot \mathbf{B}(\mathbf{r}, t) = 0 \quad (1.1.4)$$

ここで、 $\mathbf{E}(\mathbf{r}, t)$ 、 $\mathbf{D}(\mathbf{r}, t)$ 、 $\mathbf{B}(\mathbf{r}, t)$ 、 $\mathbf{J}(\mathbf{r}, t)$ は、時間 t 、空間の位置ベクトル \mathbf{r} における、電界、電束密度、磁束密度、電流密度である。また、 ϵ_0 、 μ_0 は真空の誘電率 ($\epsilon_0 = 8.85 \times 10^{-12} \text{ F/m}$)、真空の透磁率 ($\mu_0 = 4\pi \times 10^{-7} \text{ H/m}$) である。これらの式はそれぞれ、式 (1.1.1) が Faraday の電磁誘導の法則、式 (1.1.2) が Ampere の法則に Maxwell が変位電流の項を付け加えたもの、式 (1.1.3)、(1.1.4) が孤立した電荷が存在しない媒質に関する Gauss の法則を表している。

これにさらに電磁波と媒質の関係を記述する構成方程式

$$\mathbf{D}(\mathbf{r}, t) = \epsilon_0 \epsilon(\mathbf{r}) \mathbf{E}(\mathbf{r}, t) \quad (1.1.5)$$

を考慮すると、電界と電束密度の関係を知ることができ、Maxwell の方程式は電界と磁束密度だけの関係式となる。ここで媒質の比誘電率 $\epsilon(\mathbf{r})$ を定数でなくて場所の関数としておいたのは、以後扱う問題が、場所によって誘電率の異なる構造物中を電磁波が伝搬していく問題を一貫して扱うからである。また、これから考える比較的高周波の領域では磁束密度を考慮するときに出てくる比透磁率 μ の方は 1 と考えるのでよい。

電界や磁束密度が $\exp(-i\omega t)$ の時間依存性を持つとき、波源となる電流や磁流が存在しない様な媒質中 ($\epsilon(\mathbf{r}) = \epsilon = \text{const.}$) では Maxwell の方程式は次の方程式に帰着する。

$$\Delta E(\mathbf{r}, t) + \frac{\epsilon\omega^2}{c^2} E(\mathbf{r}, t) = 0 \quad (1.1.6)$$

ただし、 c は真空中の光速 ($c = 3.00 \times 10^8 \text{ m/s}$) で、 $c = (\epsilon_0 \mu_0)^{-1/2}$ の関係が成り立っている。また、周波数領域によっては比誘電率 ϵ という物理量よりも屈折率 n をよく用いるが、それらの間には、 $n = \sqrt{\epsilon}$ の関係がある。

式(1.1.6)は時間的に変化する電界が媒質中を $c/\sqrt{\epsilon}$ の速度で伝搬していくことを表す波動方程式にはかならない。数学的・物理学的にはこれが電磁波であり、「変化する電界とは、媒質中をこのような速度で伝搬していくものである」という物理現象は、どのような空間や時間のスケールを考えている場合にも普遍的なものである。単に短い時間スケール、すなわち高い周波数を考えるときには波長 $\lambda = 2\pi c/(\omega\sqrt{\epsilon}) = 2\pi c/(\omega n)$ が対応して短い空間スケールになるというだけである (ϵ は周波数 ω の関数であるので、速度は同じ媒質中でも考える周波数によって異なるが本質的な違いではない)。

工学における電磁波

ところが、大きなスケールから小さなスケールまで普遍的な電磁波も、工学上は周波数領域ごとに区別され、様々な名前では呼ばれている。図1.1.1の上段には様々な周波数の電磁波がどのような名称では呼ばれているかを示した、各周波数ごとに利用形態や用いるデバイスが多様に異なっている。

本論文では、大雑把に「光」「光波」と呼んだときには、波長 $0.1 \sim 10 \mu\text{m}$ の電磁波を、「電波」とは波長 1m 以上の電磁波を、「X線」とは波長 1nm 以下の電磁波を指すことにする。

物理的には単一のものである電磁波が、工学的には人為的に様々な分類され、様々な利用形態に分岐しているのには必然的な理由がある。この節では電磁波と物体の相互作用について整理することでその理由を考えてみる。

1.1.2 電磁波と物体の相互作用

物体の持つ二つの側面

電磁波と「もの(物体)」がどのような相互作用を示すかを考えるために、ここでは「もの(物体)」の持っている二つの側面を考える。一つはエネルギー構造、も

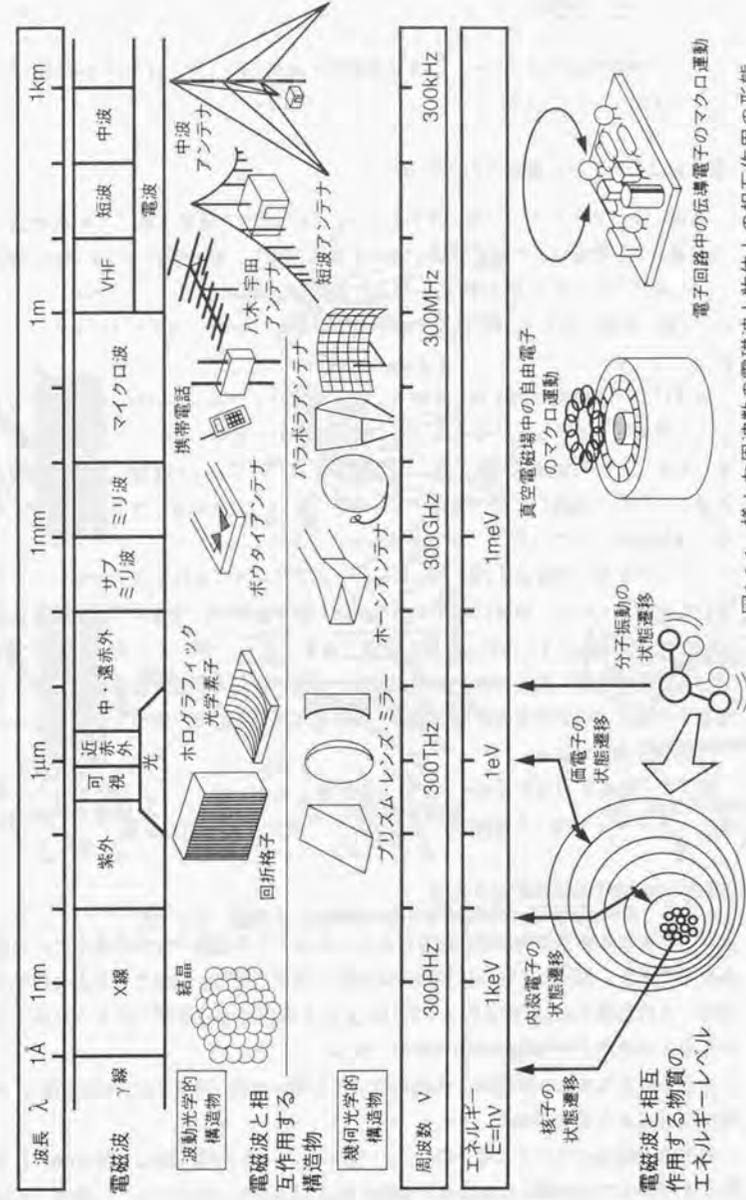


図1.1.1 様々な周波数の電磁波と物体との相互作用の形態

う一つは幾何学的構造である。前者は電磁波と材料との作用、後者は電磁波と形との作用を考えることになる。

電磁波とエネルギー構造の相互作用

物質には、エネルギーの高い方から順に、原子核内の粒子（核子）の状態遷移、内殻電子の状態遷移、外殻の荷電子の状態遷移、原子で構成される分子内部の振動などの典型的なエネルギーの吸収・放出の要因がある（図1.1.1）。これらはそれぞれ、 γ 線、X線～紫外線、可視光、赤外光の光子の持つエネルギーにだいたい対応している。

物質にその電磁波の周波数に共鳴するエネルギーレベルがあれば、その物質は電磁波を吸収したり放出したりする。そのようなレベルが特になかったり相互作用が弱ければ、その物質は電磁波に対して透明である。あるいは物質中にその電磁波の周波数に対して同調して自由に動くことのできる自由電子が存在する場合には、電磁波は物質中に入り込むことができず表面で反射される。

このことから、物質がどのように電磁波と相互作用するかは周波数帯域ごとにだいたい決まっている。電波に対して誘電体は一般に透明で、金属材料は電波を反射する。X線に対しては一般に物質は透明である。それに対して、中間の光の領域では、電磁波と強く相互作用する分子振動や価電子励起の準位が存在する。特に価電子帯の電子遷移が化学反応や半導体との相互作用など様々な現象を引き起こすので、応用上重要である。

従って、物質とのエネルギーのやりとりを考える上では、これに対応する1eV程度のエネルギーを持った電磁波、すなわち光こそが大切なのである。

電磁波と幾何学的構造の相互作用

次に電磁波が物体の幾何学的構造によってどのように変化させられるかという観点で考えると、電磁波と物体の作用には反射、屈折、散乱、回折という主な現象がある。これを図1.1.2に示した。これはいずれも電磁波の波面がどのように変換されるかというマクロな観点からの分類である。

これを考えるときに構造物（代表長さ L ）と光の波長（長さ λ ）の相対的な大小関係を考慮する必要がある。

構造物が波長に比べてはるかに大きいとき（ $L \gg \lambda$ ）、電磁波は反射や屈折を示す。この領域では電磁波の波動性を考慮する必要はなく、粒子のように直進する光

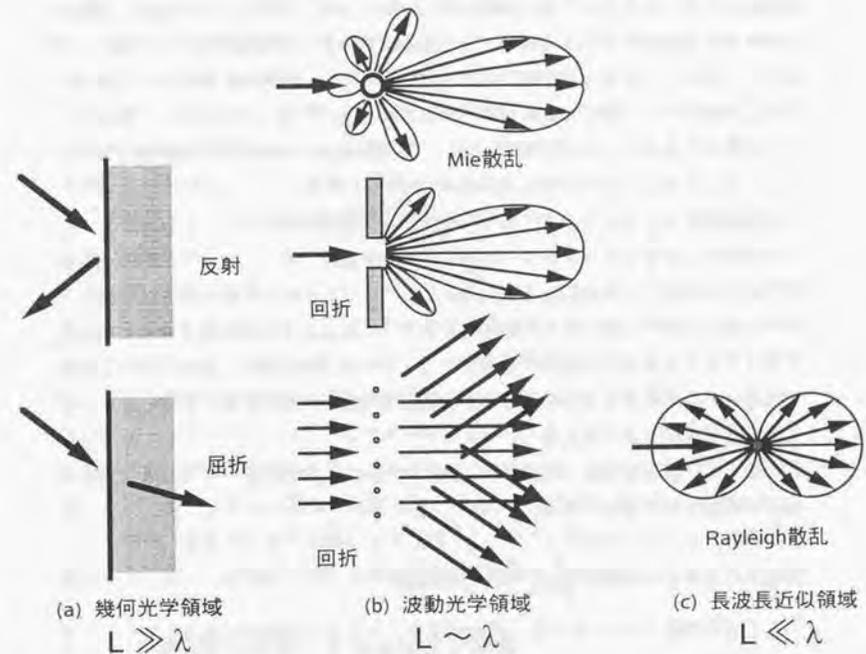


図1.1.2 電磁波と物体の幾何学的構造との相互作用

線と考える幾何光学近似がよく成立する。

電磁波が波長と同程度の大きさを持つ構造物に照射されると ($L \approx \lambda$)、一般に複雑な散乱を示す。この領域は電磁波の波動性を丁寧に考慮しなければならない波動光学領域である。特にこの領域の球の散乱を Mie 散乱と呼ぶ [4, 5]。電磁波は球面に沿って周回するモードなど複雑な共鳴 (Mie 共鳴) を示し、その結果、複雑な分布を持った散乱パターンを示す。また電磁波が波長と同程度の大きさの開口に照射された場合も、波長と同程度の大きさの周期を持った構造物に照射された場合もともに回折と呼ぶ。開口に照射された電磁波は無視できない角度を持って複雑なパターンを示しながら拡がって進む。また、周期構造物に照射された電磁波は無視できない角度を持って別の方向に進み始める。

電磁波が波長に比べて無視できるほど微小な物体に照射されたとき ($L \ll \lambda$)、その散乱のされ方はダイポール (双極子) からの放射と等しくなる。これは Mie 散乱の一つの極限で、Rayleigh 散乱と呼ばれる。この領域では散乱強度は物体サイズの 6 乗に比例する強いサイズ依存性を持つ。これは小さな物体ほど急激に電磁波と作用しなくなることを意味する。しかし、その変化は単調で、散乱パターンは変化しない。この領域では物体から見ると電磁波は波長が極めて長く、ゆっくりと変化する静電場のように見える。

このうち、顕著な Mie 共鳴を示す波動光学領域が、電磁波がもっとも複雑で興味深い挙動を示す部分である。

電磁波の工学上の利用形態とこれからの課題

ここで再び図 1.1.1 に戻って、我々が現在どのように電磁波を利用しているかを考えてみる。

まず電磁波とのエネルギーのやりとりの観点では、古くから導体中の自由電子の運動を用いて電波を送信したり受信したりする技術が用いられている。また、最近の我々の生活では、発光ダイオードや各種のレーザーのように電子の状態遷移に基づく光量子デバイスが重要な役割を果たしている。一方でその中間にあるミリ波や遠赤外などの領域は、その両側に比べるとまだほとんど手が付けられていない。このことは、必ずしも周波数が低い方が工学的に利用しやすいと言うわけではなく、適切な物体とのエネルギー的な相互作用原理が存在するかどうか重要であることを示している。

次に、我々が電磁波を扱うためにどのような幾何学的構造物を利用しているか

を考えてみると、電波の領域では、各種の線状アンテナや八木・宇田アンテナなど、波長と同程度の大きさの構造物を使った波動光学的な素子を用いることが多い [6, 7]。一方、光の領域では、レンズやミラーなど波長に比べてはるかに大きな構造物を使った幾何光学的な素子を用いることが多い。電波領域で幾何光学的素子を実現しようとすると、極めて巨大な構造物を建造しなければならないし、光領域で通常実現できる程度の構造物を製作するとそれは波長に比べて何桁も大きな幾何光学的素子にならざるを得ないことから自然なことである。

以上見てきたように、電磁波の多様な利用形態が存在することは、相互作用相手の物体の特性が周波数帯によって違うという物性論的理由と、実現できる物体の加工技術に制約があるという機械工学的理由に起因しているのである。

ところが、近年の微細構造製作技術の進歩により、ここに新しい電磁波の利用形態の可能性が拓けてきた。古くから人間にはどうすることもできないほど小さいとされていた光の波長とは、もはや我々にとって手に届かないほど小さな寸法領域ではない。光の波長と同じくらいの幾何学的構造物を実現することはまったく難しいことではないし、光の波長一つ分の中に複雑な構造を作り込むことも夢ではない。電波の領域では多様な波動光学的構造物が利用されている一方で、光の領域では回折格子やホログラフィック光学素子などの極めて限られたものしか用いられてこなかった。製作技術の制約さえなくなれば、エネルギー的相互作用の強いこの領域でこそ、より多様な波動光学的構造物が実現されると考えるのは自然である。

本研究は、「光をあたかも電波のように扱う」という、電磁波の新たな利用形態の開拓を支える一つの基盤技術の構築を目指すものである。

1.1.3 本研究で対象とする電磁波と物体

これまで、電磁波という広い観点から、その中で光がどのような特徴を持った領域であるかを整理してきたが、ここで、本研究でこれからどのような電磁波や物体を対象としていくかを定める。

本研究では光、すなわち波長 $0.1 \sim 10 \mu\text{m}$ の電磁波を扱う。中でも実際に登場するのはその中央部の波長 $0.6 \mu\text{m}$ の赤色の可視光から $3 \mu\text{m}$ 程度の近赤外光までである。この範囲の光の周波数は $100 \sim 500 \text{THz}$ (テラヘルツ, $1 \text{THz} = 1 \times 10^{12} \text{Hz}$)、振動周期は $2 \sim 10 \text{fs}$ (フェムト秒, $1 \text{fs} = 1 \times 10^{-15} \text{s}$) である。

一方、本研究で扱う幾何学的構造物は、波長と同じ程度、すなわち $0.1 \sim 10 \mu\text{m}$ 程度の大きさ、あるいは単位サイズを持った構造物である。以後、マイクロメートル

ルオーダという表現を類聚に用いるが、それは構造物の大きさが $0.1 \sim 10 \mu\text{m}$ 程度であることを意味する。

また、本研究で対象とする物質は誘電体とする。本論文で誘電体というときには、光に対して透明で、かつ比較的大きな屈折率 $n(> 1)$ を持つ物質を指す。透明とは伝導帯への電子励起をしない、すなわち光を吸収せず、受動的に伝搬するだけであることを意味する。また、 $n > 1$ とは、価電子との作用が強いことを意味する。

1.2 フォトニック構造物に関する研究の現状と課題

1.2.1 フォトニック構造物とは

フォトニック構造物とは、光の波長と同程度のマイクロメートルオーダの誘電体の要素から構成された構造物を指す言葉で、本研究で対象とする構造物そのものを指すために独自に定義したものである。

これまでに研究されているものの具体的な姿としては、ランダム媒質、フォトニック結晶、2連球などがある。これらはいずれも微小構造物の多重散乱問題とくることができ、互いに近い分野の研究者が研究しているが、それぞれに特有の理論的な扱い方や独特の物理的描像があり、通常は別々に扱われている。

本研究の動機には、これらの内のどれにも分類できない、おそらく電波における八木・宇田アンテナに近い構造物という利用形態の展開があるはずとの強い確信が根底にある。その問題意識の背景を説明するために、本節ではこれらのフォトニック構造物に関する研究について、何が根底にある共通の課題なのかを整理してみる。

そのために、まず光の散乱現象に関する研究の現状について概観し、次にその中でフォトニック構造物に関する研究の現状についてやや詳しく述べる。

光散乱現象問題、その中でフォトニック構造物問題、その中でランダム媒質問題やフォトニック結晶問題という階層でこれらの分野を系統的に整理することは、各研究者の頭の中では自然に行なわれているはずのことである。しかし、明示的に整理するのは本論文独自の試みである。

1.2.2 光散乱現象に関する研究の現状

散乱問題とは

散乱問題とは入射した電磁波により物体にどのように分極や電流が誘起され、それが新たにどのような電磁波を放射するかという現象を扱う問題である [3, 2]。大きく分類すると、孤立した1個の物体の散乱を扱う単一散乱の問題と、近接した多数の物体の散乱波の干渉を考える多重散乱の問題に分けられる。以下に述べる散乱研究の状況を図 1.2.1 に整理しておく。

単一散乱

単一散乱はもっとも基本的な散乱現象で、Maxwell の方程式を適切な境界条件の元に解く古典論的な電磁気学の問題である。基本は Mie 散乱としてよく知られている空中に浮いている吸収のない誘電体球による平面波の散乱問題で、ベクトル球面波展開を用いて厳密に解析的に扱うことができる。他にも回転楕円体や円柱など、対称性の高い物体については球からの拡張で解析的に解かれている。

波長に対して球の大きさが十分に大きな極限は幾何光学的に扱うことができ、この領域での典型的な現象の例には雨滴による虹の形成などがある。一方、球が十分に小さな極限は Rayleigh 散乱、すなわちダイボールの放射問題に帰着し、数式的には非常に簡潔になる。波長が短いほど散乱が急激に強くなるのが特徴で、昼間の空が気体分子による散乱成分を観測するために青く、夕焼けが散乱されずに残った直進成分を観測するために赤く見えるのがこの領域の典型的な現象である。

その中間の、波長と同程度の球による散乱は、実質的には球という構造物においてどのような電磁波の定在波モードが形成されるかという共鳴問題である。球における波動の共鳴は、電磁波よりもむしろ電子波に対しての方がなじみが深い。それは原子における電子の準位を考えることが、球対称ポテンシャルにおける電子の波動方程式 (Schrödinger 方程式) を解くことにほかならないからである。光の場合にも原子の波動関数と同じように任意の散乱波は球の中心を原点とする球面波に展開できる。電子の場合にはスカラー場、光の場合にはベクトル場であることが違うが、数学的には非常に似た問題である。

球座標系 ($r = (r, \theta, \phi)$) で表したスカラー場の波動方程式である Schrödinger 方程式の解 $\Psi(r, \theta, \phi)$ は一般に $j_l(kr)Y_l^m(\theta, \phi)$ ($j_l(kr)$ は球面 Bessel 関数, $Y_l^m(\theta, \phi)$ は球面調和関数) の形で表される。ここで l は方位量子数で大雑把には球面に沿って

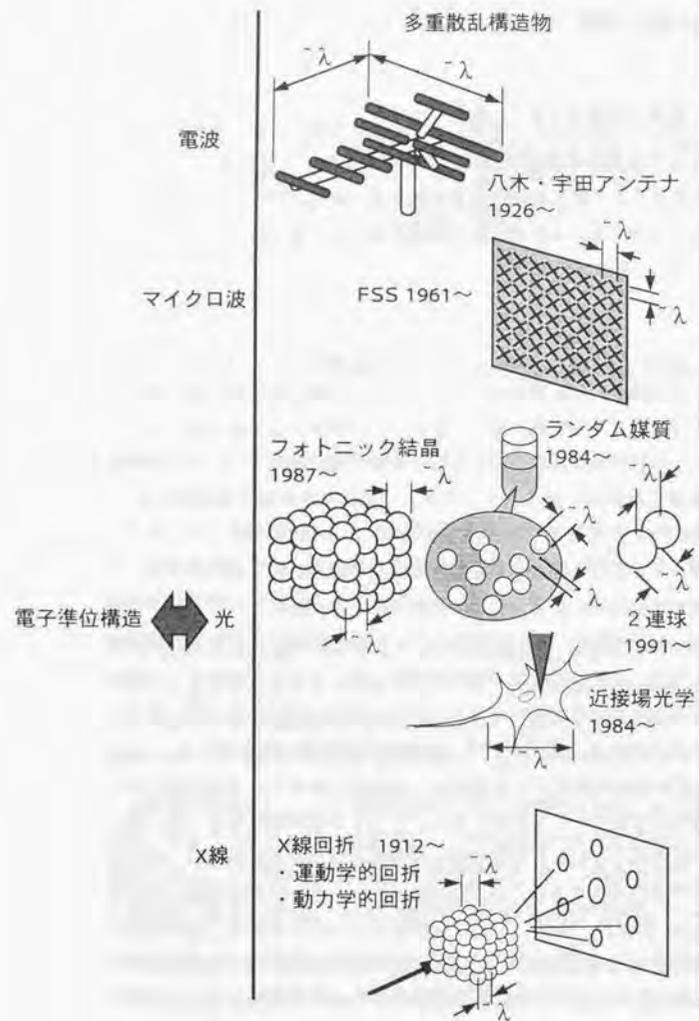


図1.2.1 電磁波の散乱問題研究マップ

何周期で回る定在波であるかを表しており、 m は磁気量子数で座標系に対するその回り方の方向を表している、原子の電子軌道の場合には l の値が s 軌道や p 軌道を意味する。

同様に式 (1.1.6) の波動方程式の解となるベクトル場もこれらの関数を基本とする形で記述できる。ベクトルの場合には同じ量子数の組 (l, m) で表されるモードにも次の3つの種類 (M 波, N 波, L 波) があることが知られている [1, 2, 8, 9].

$$E_{lm}^M(\mathbf{r}) = \left(0, -j_l(kr) \frac{\partial Y_{lm}(\theta, \phi) / \partial \phi}{\sin \theta}, j_l(kr) \frac{\partial Y_{lm}(\theta, \phi)}{\partial \theta} \right) \quad (1.2.7)$$

$$E_{lm}^N(\mathbf{r}) = \left(l(l+1) \frac{j_l(kr)}{kr} Y_{lm}(\theta, \phi), \frac{d[kr j_l(kr)] / d(kr)}{kr} \frac{\partial Y_{lm}(\theta, \phi)}{\partial \theta}, \frac{d[kr j_l(kr)] / d(kr)}{kr \sin \theta} \frac{\partial Y_{lm}(\theta, \phi)}{\partial \phi} \right) \quad (1.2.8)$$

$$E_{lm}^L(\mathbf{r}) = \left(\frac{\partial}{\partial r} [j_l(kr) Y_{lm}(\theta, \phi)], \frac{\partial}{r \partial \theta} [j_l(kr) Y_{lm}(\theta, \phi)], \frac{1}{r \sin \theta} \frac{\partial}{\partial \phi} [j_l(kr) Y_{lm}(\theta, \phi)] \right) \quad (1.2.9)$$

これらはそれぞれ球におけるいろいろな次数の共鳴モードを表している。平面波が球に照射されたときの散乱波を考える際には、これら $E_{lm}^M(\mathbf{r})$, $E_{lm}^N(\mathbf{r})$, $E_{lm}^L(\mathbf{r})$ のそれぞれのモードを入射波がそれぞれの展開係数 [4, 5] に応じた程度だけ励起し、球の外ではそれらの球面ベクトル波の和が観測されることになる。実際には L 波は縦波なので考慮することはない。 M 波は球面に沿った電界しか生じないモードで、TE 波あるいは s 波と呼ばれる。また、 N 波は球面を貫く方向の電界成分を持ったモードで、TM 波あるいは p 波と呼ばれる。

この事情は、任意の1次元的なスカラーの周期波形が様々な次数の \cos 波と \sin 波に分解して記述できたり、ちょうどそれと同調するような入力を加えると特定のモードが共鳴するのと同じであるし、あるいは矩形膜構造の振動が様々な縦・横方向の様々な整数個のノードを持った振動モードの和として記述できるのと同じである。

誘電体球に照射される光の波長が球の大きさと近くなると上記のモードのために共鳴的に散乱が強くなるのであるが、その実際の様子を示すために図 1.2.2 には様々な直径の水滴による様々な波長の光の散乱の強さを示した。縦軸はよく用いられる散乱断面積でなくて球の体積あたりの散乱強度としているが、それはこの方が例えば球にある濃度でドープされた吸収体や蛍光体との作用がどのくらい強いのか

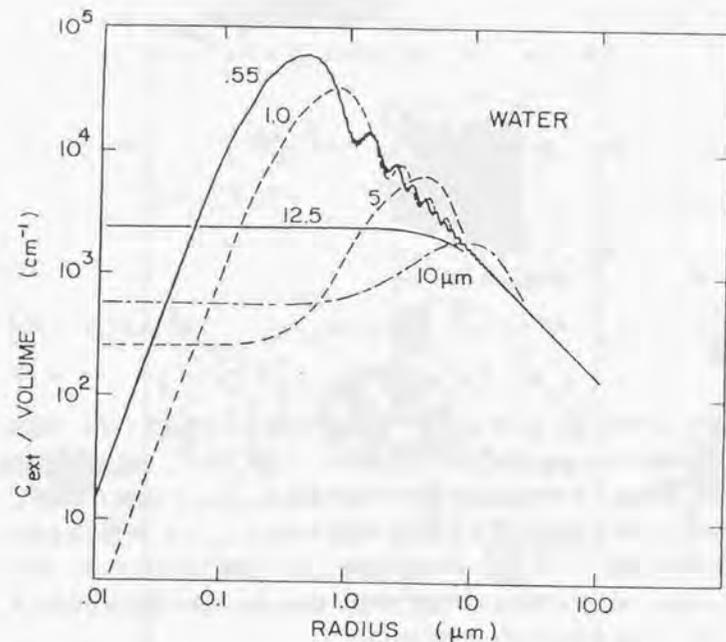


図1.2.2 単位体積あたりの散乱光強度の波長，粒径との関係
Bohren and Huffman, Absorption and Scattering of Light by Small Particles,
p.309, John Wiley & Sons, 1983

等を考えるのに都合がよいからである。各曲線は各波長に対するもので、それが半径が大きくなると共鳴的に強く散乱する領域を経て再び散乱の小さな領域に入ることがわかる。例えば、 $0.55\mu\text{m}$ の緑色光に対して、ちょうど $0.6\mu\text{m}$ 程度の半径の球がもっとも強い散乱を示し、それよりも小さくても大きくてもけた違いに散乱、すなわち相互作用が小さくなることわかる。同様に波長 $1\mu\text{m}$ の光に対しては半径 $1\mu\text{m}$ 程度の球が強い散乱を示すが、散乱の強さが $0.55\mu\text{m}$ の光ほどでないのは水に多少の吸収があるためである。赤外領域になると一般に分子振動による吸収が生じ、このように可視光でのみ特に強い散乱が観測されるのは水に限らず一般的に成り立つことである。この図からわかることは、誘電体球による光の散乱は波長が球の大きさと同程度の時にのみ共鳴的に大きく、それより球が大きくても小さくても急激に散乱が小さくなること、赤外の吸収などがあるためにとりわけ可視光領域の光に対して強い共鳴が期待できることである。

波動光学領域の散乱のもう一つの特徴は複雑なパターンを示すことである。図1.2.3には様々なサイズパラメータ x における誘電体球の直線偏光された平面波に対する散乱パターンの計算結果を示した（計算にはDantec/invent社、STREUを用いた）。粒径に対して波長が5倍ある $x=0.63$ では、散乱は入射偏波面内に8の字を描き、垂直方向には等方的なパターンを示している、これは典型的なRayleigh散乱のパターンである。また、散乱が他に比べて無視できるほど小さいこともわかる。波長が球のサイズに近くなるとこの8の字パターンは逆転して偏波面に垂直な方向に特徴的なパターンを示すようになる、この辺からがMie散乱領域で、波長が短くなるにつれて次第に散乱が強くなり、パターンが複雑になる。 $x=2.22, 3.14, 3.77$ と波長が短くなるにつれてパターンは定在波の立ち方を反映してノードの数が2個、4個、6個と増えていく。これはまた、電波領域でよく用いられる線状アンテナでいうと、半波長アンテナ、1波長アンテナ、2分の3波長アンテナのちょうどチューニングされた状態での放射パターンに類似している。

以上見てきたように、誘電体球の光の散乱には、ちょうど波長と球のサイズが同程度になる条件で強い共鳴が観察される。しかし、この問題が注目を集めていたのは極めて古い時代のことである。1900年代の初頭には主要な部分は解明されてしまっており、長い間科学の表舞台に登場することはなかった。

ところが、近年、比較的高次のモードによって、従来のような対向ミラーを用いずにレーザ発振が可能になったことが明らかになって以来、再び研究が盛んになっている[10, 11, 12, 13]。1が数10になる高次モードは光は球面に沿ってほとんど損失を受

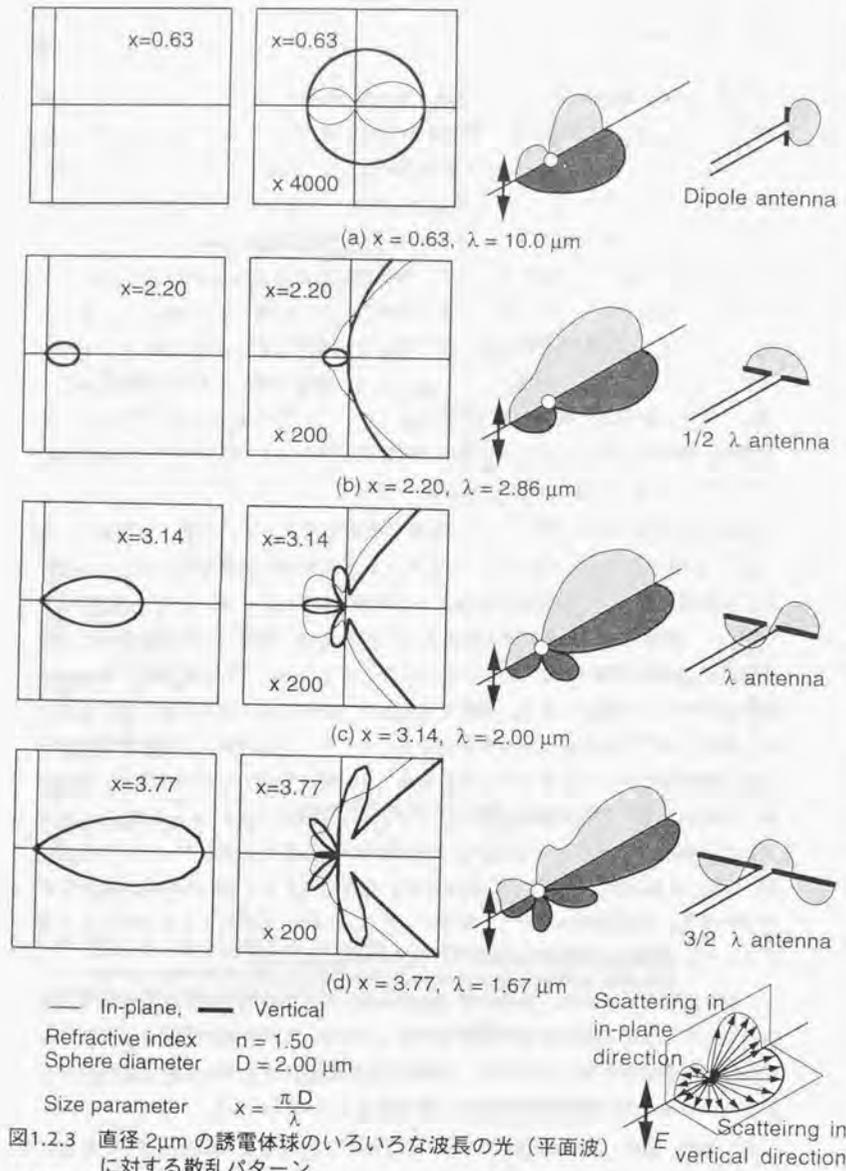


図1.2.3 直径2 μm の誘電体球のいろいろな波長の光(平面波)に対する散乱パターン
 (左から順に、散乱強度分布、細かいローブの拡大図、散乱強度分布の模式図、定性的に対応すると思われる線状アンテナ)

けることなく周回することができ、Whispering gallery mode (WGM) と呼ばれ、この数年の流行になっている。また、物体の形に起因するこのような共鳴は一般に形態依存共鳴 (Morphology dependent resonance, MDR) と呼ばれ、ミラーを用いない新しい光共振器の形として注目されている。

多重散乱

多重散乱とは、上記のような散乱波が多数の散乱体から発生するときの干渉を考える問題である。光以外の周波数領域には、様々な多重散乱構造物がすでに存在している。そこで、再び電磁波全体について多重散乱に関する研究の現状を考えてみる。

まず、X線領域の場合には、天然に波長と同程度の周期を持った散乱体からなる構造がある。様々な結晶がそれである。この領域ではX線と原子の相互作用は非常に小さく (ϵ や n がきわめて1に近い) 散乱は稀にしか起こらないので、光子は1回だけ原子に衝突し、他のものと位相の合うものだけが強め合って回折波として観察されるという運動学的回折理論が通常適用できる。これは単一散乱の単なる和である。しかし、結晶が完全結晶に近いときなどは1回散乱されて向きを変えた光子が再び別の原子で何度も散乱されることになる。この時、結晶内では入射波と回折波のエネルギーのやり取りが交互に起きる複雑な状態となる。このような状況が多重散乱である。この場合はMaxwell方程式を周期的境界条件の元で解かなくてはならない。X線の分野では、これを比較的散乱が小さいという仮定の下で解いた動学的回折理論ができあがっている [14, 15]、この理論は一般に弱い多重散乱を取り扱う上で有効である。

電波領域では、人工的に容易に多重散乱構造物を製作することができる。しかし、実際に多重散乱の効果を利用した構造物はそうは存在しない。八木・宇田アンテナと呼ばれる独特の構造物があるが、この効果が正に複数散乱体の多重散乱によるものである。これは電波を発生したり吸収したりする半波長アンテナの前後にそれより若干長くあるいは短く作り、目的の周波数に対して意図的にデチューニングした受動的アンテナを周期的に近接配置した構造物である。この周波数領域では散乱体どうしの相互作用が非常に強いため、詳細な特性は構造物全体を境界条件としてMaxwell方程式を厳密に解かなくてはわからない。しかしながら、デチューニングの効果は定性的には明らかになっており [16]、基本的な構成はこの原理に基づいて設計すればよい。具体的には、若干短い波長側にデチューンした散乱体を半波長ア

アンテナに近接すると、散乱体は導波器（前方の散乱体にエネルギーを供給する）として働き、長波長側にデチューンした散乱体は反射器（後方の散乱体にエネルギーを供給する）として働くことがわかっている。この設計ルールを用い、(たいてい複数の)導波器と反射器で、受信回路に接続された半波長アンテナをはさむと、アンテナ周囲の Poynting ベクトルが半波長アンテナに集中し、大きなゲインを得ることができる。また、マイクロ波領域では FSS(Frequency Selective Surface) という散乱体を周期的に配置した平面構造の持つフィルタ特性や反射特性が注目を集めている [17]。この特性を調べるために平面的な周期的境界条件下での Maxwell 方程式の解法が研究されている。

光波帯は電波や X 線に比べると多重散乱を示す構造物の研究ははるかに遅れており、盛んに研究されるようになってきたのは 1980 年代に入ってからである。研究されている代表的な構造物はランダム媒質の光学特性、および、フォトニック結晶と呼ばれる人工微小構造物の持つフォトニックバンド効果である [18, 19]。どちらも散乱体が無限に集まったもので、前者はそれがランダムに凝集したもので、後者はそれを人工的に整列されたものを対象としている。このほかに、2 個の微小球を近接させたときに単一球の Mie 散乱特性がどのように変化するかという問題や、ある複雑な散乱体の超微小構造物の近接場電界がどのように分布するかということが近接場光学顕微鏡の像解釈の理論として取り上げられている。これらは以下に詳述するが、光波帯の多重散乱構造物の研究の特徴は他の波長帯よりもかなり遅れてスタートしたこと、そして極めて多様な現象に関心を集めていることである。

光波帯が遅れてスタートしたのは、研究に必要な人工微小構造物製作技術が未熟なためと、光と原子の相互作用が非常に強く、厳密に Maxwell 方程式を解かざるを得ないという実験・理論両面の困難さがあったためと思われる。しかしながら、この領域は物質との相互作用があるエネルギー帯であるので、応用の観点からは本質的に重要である。一方、科学としても、波動として共鳴する構造物中での光と物質系の相互作用を扱う学問は量子光学、共振器量子電気力学などと呼ばれており、Maxwell 方程式で記述される古典論の世界と量子論の世界の窓口として重要な意味を持っている。このように重要性が認識されているところに製作技術の進歩が相まって、急速に多彩な研究が展開されるようになったものと思われる。

光波帯はまだいずれも基礎研究の段階であるが、いずれ何らかのフォトニック構造物が利用されるときが来るのは確かである。図 1.1.1 でもわかるように、光波帯ではこれまで波動光学的な構造物というと回折格子やホログラフィック光学素子く

らいしか使われていなかった、将来はここに電波領域のように多様な素子が並ぶことになるはずである。

1.2.3 フォトニック構造物研究の現状—ランダム媒質—

ランダム媒質の散乱問題は、無数の強い散乱体が無相関にランダムに凝集したら何が起るかという多重散乱の一つの極限の系を考える問題である。

従来、吸収しない散乱体を透過してくる光の強さは散乱体厚さの -1 乗に比例することが常識とされていた。ところが、個々の散乱体で共鳴的な強い散乱が起き、それが波長オーダーの短い距離の中で何度も起こるようになると、光の振る舞いに本質的な変化が生じる。散乱の頻度がある程度を越えると、光はもはやその媒質の表層部にわずかにしか入り込むことができず、その媒質の透過率はあたかも光を吸収する媒質のように厚さの \exp に反比例して急速に減衰する。このときに光は表面に局在した後、すべて反射されることになる。

このような現象は電子波に対して Anderson 局在として研究されていたが、John が光に対しても同様の現象が起こりうることを予言した。その後、ランダム媒質が示す入射光を正確に逆戻りする特異な光波の存在が発見され [20]。それが光の Anderson 局在の前駆現象（弱局在）であるコヒーレント後方散乱光であることが認識されて以来 [18, 21, 22]、研究が盛んになった [23]。しかし、興味の持ち方は、ランダムなプロセスにも関わらず協調的な干渉が生じることや、電子の系の簡潔なモデル実験系としての光の素性の良さに対する純粋な物理学的興味で、これまで応用を意識した研究はほとんどなされていない。

この領域では対象が無限にランダムに配置されているので Maxwell 方程式を解くことは困難で、「干渉することのできる粒子のゼリヤード」という半粒子・半波動的な描像が用いられる。

例えば、波数ベクトル \mathbf{k}_0 の平面波が時刻 $t = t_0$ に位置 $\mathbf{r}_i^{(1)}$ にある粒子で初めて散乱された後、媒質内を進行しながら次々に散乱を繰り返し、位置 $\mathbf{r}_j^{(n)}$ にある粒子で時刻 $t = t_s$ に起きる n 回目の散乱によって、波数ベクトル \mathbf{k}_s の方向に出射するとする。この時の後方散乱光の電界の振幅は次のようになる。

$$E(\mathbf{k}_s, t_s, \mathbf{r}_j^{(n)}; \mathbf{k}_0, t_0, \mathbf{r}_i^{(1)}) = A_{ij} \exp i \left\{ (\mathbf{k}_0 \cdot \mathbf{r}_i^{(1)} - \mathbf{k}_s \cdot \mathbf{r}_j^{(n)}) + \sum_{l=1}^{n-1} \Delta \mathbf{r}_{ij}^{(l)} \cdot \mathbf{k}_{ij}^{(l)} \right\} \quad (1.2.10)$$

ここで、 A_{ij} とは、はじめに*i*の粒子に衝突してから最後に*n*回目に*j*の粒子に衝突して媒質から飛び出してくる電界の振幅、 $\Delta \mathbf{r}_{ij}^{(l)}$ は*i*から*j*に向かうジグザグの経路の内の*l*番目の線分のベクトル、 $\mathbf{k}_{ij}^{(l)}$ はその線分上を進んでいるときの波数ベクトルである。ところが無限ランダム系では、まず*i*と*j*の粒子を固定して考えてもその間の経路は無数に考えられるし、その*i*と*j*の粒子の組合せも無数に考えられる。また、通常この問題を考えるときには懸濁液を用いるので、粒子は常に無相関なランダム運動をしている。このため、実際に後方で観測される*n*次多重散乱光の強度は、式(1.2.10)が空間的・時間的に平均されて多くの項がキャンセルされ、次のように簡単な結果になる[24]。

$$\begin{aligned} \langle I(\mathbf{n}; \mathbf{k}_0, t_0; \mathbf{k}_s, t_s) \rangle &= \left\langle \sum_{i,j,l,m} E(\mathbf{k}_0, t_0, \mathbf{r}_i^{(l)}; \mathbf{k}_s, t_s, \mathbf{r}_j^{(m)}) E^*(\mathbf{k}_0, t_0, \mathbf{r}_i^{(l)}; \mathbf{k}_s, t_s, \mathbf{r}_j^{(m)}) \right\rangle \\ &= \sum_{i,j} \langle |A_{ij}|^2 \rangle [1 + \cos(\mathbf{k}_0 + \mathbf{k}_s) \cdot (\mathbf{r}_i^{(l)} - \mathbf{r}_j^{(m)})] \quad (1.2.11) \end{aligned}$$

この余弦項がコヒーレント後方散乱ピークを表す。 $\mathbf{k}_s = -\mathbf{k}_0$ を満たす、ちょうど入射光を逆行して戻ってくる方向の散乱光だけが強め合う。これは一見何もかもが無相関で干渉など起きないように思われるランダム系でも、無数にある散乱経路の内、自分と逆の経路をたどる経路が必ず存在し、唯一その経路どうしは干渉して強め合うために発生するのである。

この研究を行なうために必要とされている構造物は、1個1個の散乱が強いサブ μm の誘電体粒子を高密度に凝集させたものである。それっぽいものを実現するのは比較的容易である。牛乳、白いペンキ、チョーク、煙、無数の細胞でできた生体組織など、要するに身の回りの白いものはすべて基本的にはこのようなものである。実際に研究現場でも微粒子のコロイド溶液や粉体を突き固めたものがサンプルとして用いられており、構造物の製作には特殊な高度な技術は必要とされていない。

弱局在状態の特徴であるコヒーレント後方散乱光は容易に観察できる反面、本当の局在状態は長い間実現されなかったが、つい最近、ようやく実験的に観測された[25]。散乱が強くなるにつれて、まず透過率の厚さ依存性が-1乗から-2乗に移り、その後、exp的に減衰する様子がとらえられている。これをもって、基礎研究にも一つの区切りがつき、徐々に応用上の重要性も議論されるようになってきた。一つはX線断層像やNMRに変わる非侵襲的な人体断面観察手法として開発されている光CTの像再構成の基本原則になると期待されている[22]。しかし、そのためには、本来ベクトル波である光を極めて単純化した現在の粒子散乱理論では不十

分で、より正確に現象を記述できる理論体系の構築が求められている。また、光の弱局在を利用したレーザ発振の研究などが行なわれている[26, 27, 28]。もしかしたら微粒子を焼き固めたセラミクスや焼結金属のような固まりがミラーの不要なレーザとして利用されるような展開もあるかも知れない。

1.2.4 フォトニック構造物研究の現状—フォトニック結晶概要—

フォトニック結晶における散乱問題は、無数の散乱体が周期的に整然と配列されたら何が起こるか、というこれも一つの多重散乱の極限を考える問題である。ここでは個々の散乱体の共鳴的な強い散乱がコヒーレントにどのような相乗作用を示すか、あるいは共鳴的な散乱と周期構造による回折とがどのような相乗作用を示すかを考える。

これはX線回折現象の光版、あるいは電子のバンド構造の光版と考えて良い。X線や電子波では原子で作る天然あるいは人工の結晶がちょうどその構造物の役割を果たすのに対し、光ではそれに相当する構造物は人工的に組立なり加工なりして製作しなくてはならない。求められている構造物は、散乱が強い(屈折率のコントラストが高い)サブ μm の誘電体のセルを2~3次元に高精度に周期的に並べたものである。

フォトニック結晶に関する研究はこの数年で急激な広まりを見せており、様々なことを目指した研究が入り乱れている。ここでは、まず簡単に歴史的経緯を説明した後、次の節でいくつかの方向を持った研究に分類し、さらにこれまでに実現している結晶について紹介する。

フォトニック結晶も電子波とのアナロジーが出发点になっている。電子波と光に対する波動方程式を対応の付きやすいように変形して示すと以下ようになる[1, 23]。

$$\left(-\Delta + \frac{2m^*}{(\hbar/2\pi)^2} V(\mathbf{r}) \right) \Psi(\mathbf{r}) = \frac{2m^*}{(\hbar/2\pi)^2} E \Psi(\mathbf{r}) \quad (1.2.12)$$

$$\left(-\Delta - \frac{\omega^2}{c^2} (\epsilon(\mathbf{r}) - 1) \right) \mathbf{E}(\mathbf{r}) = \frac{\omega^2}{c^2} \mathbf{E}(\mathbf{r}) \quad (1.2.13)$$

ここで、 m^* は電子の有効質量、 \hbar はPlanck定数、 $V(\mathbf{r})$ は原子の陽イオンによるポテンシャル、 E は電子のエネルギーである。

この2式を比較すると、フォトンに対しては $\omega^2(\epsilon(\mathbf{r}) - 1)$ の項がポテンシャルと

して働くことがわかる。つまり誘電率（屈折率）の高い物質中にあるフォトンはあるかもしもポテンシャルの井戸に入っているかのように感じる。 $(\epsilon - 1)$ は X 線領域では $10^{-5} \sim 10^{-6}$ という非常に小さな値を取るが、光波領域では $1 \sim 10$ という大きな値を取る。このことから X 線の回折を考える上では無視できたようなポテンシャル井戸が光波では無視できないほどの寄与をすることが推察できる。

電子の場合には式 (1.2.12) を原子が整然と並んでいるという周期的境界条件の元に解くと、バンド構造が生じることが導かれる。光に対しても同様に式 (1.2.13) を周期系に対して解くとバンド構造が得られるはずだと言うのが最初の発想である。このことに起因する周期系の持つ光学効果を一般にフォトリックバンド効果と総称している。

ただし、式 (1.2.12) は純粋に量子力学的な物理を記述しているのに対して、式 (1.2.13) は、単に式 (1.1.6) を書き換えただけの純粋な古典論的な電磁気学の問題である。従って、かならずしもこのアナロジーは電子と光の物理的な類似性を示しているわけではなく、単に数学的な類似性を示しているに過ぎない。電子は Fermi 粒子であるので、この式の結果得られるバンドには下のエネルギーレベルから順に電子が埋まっていて、あるところに水面である Fermi レベルが生じる。エネルギー E は負の値も取ることができるので原子核にトラップされたままの電子も生じる。また、電子の波動関数はスカラーである。それに対して、光は Bose 粒子であるので、バンドを考えるときに重要な役割をする Fermi エネルギーとか座席を占有している・していないという概念がそもそも存在しない。エネルギー E に相当するのは ω^2 の項であるから常に正であり、いくら深いポテンシャルに捉えられていてもフォトンはいずれは壁をトンネルして散逸してしまう。また、光はベクトルである。

しかし、これらの相違点があってもなお、「光に対するバンド構造」という概念は重要な物理現象を示唆している。フォトリックバンドギャップ (PBG) が実現できると、ある周波数領域の光はその結晶内には存在できなくなる [19, 21, 29]。仮に結晶内にある原子がこのバンドギャップ内の周波数の光を電子遷移によって放出できる状態にあったとしても、その光を受け入れる「場」が存在しないのであるから、原子はその光を放出することができない。このとき、光放出は「量子力学的に」禁止されている。もともとは古典論の問題であるフォトリックバンドも、PBG が実現できると急にこのように量子論と強い関連が出てくる。半導体結晶には意図的に不純物をドーピングして p 型や n 型として用いるが、同様に意図的に乱れを導入したフォトリック結晶には不純物準位が発生し、これを PBG 内にうまく作り込め

ば、前後が量子力学的に禁止された鋭い発光や透過のモードが実現できる。また、結晶内の光の伝わり方を示す分散特性が結晶の設計によって人工的に制御できるようになる。従来は光の分散特性は材料の分子構造によって決まるものであり、実在する光学材料の中から分散特性の都合の良いものを選択するしかなかった。それが任意の分散特性を持った材料を人工的に設計・製作できる可能性があるのである。

このような光に対するバンド構造は、最初に Ohtaka が 1979 年に明確に指摘し、計算手法も早期に確立していた [30, 1, 31]。しかし、バンド構造はそもそも波動方程式から出てくるのであるから、波動の持つ普遍的なものであり、光に対しても 1 次元周期構造を考える際にはバンド構造のような考え方やストップバンドの概念は古くから当たり前に導入されている [32]。また X 線の動力学理論はその極めて初歩的なものになっている。

実際に多くの研究者が注目するようになったのは、1987 年に Yablonovitch が PBG による自然放出光完全制御の意義を説いてからである [19]。この時期は微小共振器に関する研究の蓄積があり、自然放出制御に関する問題意識が高揚している真っ最中であった [33]。このために量子エレクトロニクス研究者を中心に注目を集めることになったようである。実際にはこれよりもずっと前の 1982 年に小林が Yablonovitch よりも多様な議論をすでに展開している [34]。しかしながら、提案が時代の進み方に対して早すぎ、このときには注目を集めずに終わってしまった。

初期には光のバンド計算手法が確立していなかったのも、具体的にどのような構造を作ればよいかもわからなかった [35]。その後、平面波展開法が開発され、PBG の開く構造の計算による探索が始まり、1990 年から徐々に発見されるようになった [36, 37, 38, 39]。一方実験的にもマイクロ波領域で系統的な実験による PBG の開く構造の探索が行なわれ [40]、1991 年に最初に PBG を示す構造物が発見された [41, 42]。この頃のフォトリック結晶研究の課題は PBG が実際に理論上存在しているのかの確認と理論で示されるものが現実に製作して観測できるのかということに尽きる。

状況は 1993 年に具体的なデバイスである単一モード発光ダイオード (SMLED) が提案されたところから大きく変化する [43, 44]。それまで漠然と自然放出の人工改変の可能性が議論される程度であったのから、期待できる性能の数値が議論され始めた。微細加工技術も向上し、具体的な対象が明確になったことから、各方面の微細加工研究者が恰好の応用対象、あるいは腕試し対象として注目するようになった。1993 年以降の研究の急激な広まりと多様化は、研究発表のデータからもわか

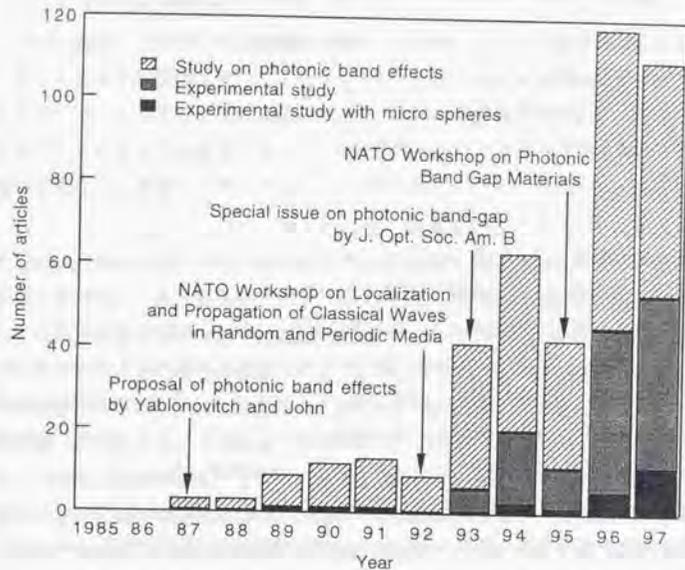


図1.2.4 フォトニック結晶に関する研究発表件数の推移

る。図1.2.4には1987年のフォトニック結晶の提案以来の主な学術データベース(Compendex)におけるフォトニック結晶関連研究の発表件数の推移を示している。この頃から急激に特に実験に関する報告が増えているのがわかる。

さらに1995年にはMITのグループが、それまであまり省みられることのなかった2次元結晶にも微小光回路としての応用があることを提案し、自然放出制御機能だけが注目されていたフォトニック結晶の研究もさらに多様化するようになる[45, 46]。2次元は計算手法が完全に確立しているので計算だけで進められるとされており、この分野は独自の進展をしている。

1.2.5 フォトニック構造物研究の現状—フォトニック結晶の3つの目標—

現在、フォトニック結晶研究には大雑把に3つの方向がある。それぞれ、目標が異なるために、研究のポイントや結晶の製作技術に求められる要求が異なっている。図1.2.5にはこれらの目標とするものの例を示した。

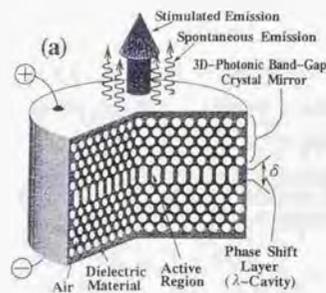
SMLEDの実現を目指す研究

Yablonovitchが提案した単一モード発光ダイオード(SMLED)をとにかく実現しようという一群の研究が精力的に進められている。SMLEDは発光波長において完全なPBGを形成しておき、その中に不純物準位を導入することによって実現する発光ダイオードである。材料で決まる広いスペクトルを持つのではなく、その不純物準位で決まる鋭い発光スペクトルを持ち、空間的にも高い指向性を持ち、時間的な応答も高速になるので、光通信光源などに利用できると期待されている。

ここで求められる構造物は3次元結晶で完全なPBGが存在するGaAs系のアクティブ材料でできたものである。自然放出が完全に制御できるのは、3次元的なPBGが形成された場合のみであるので結晶の製作については妥協が許されない。

このようなものを製作するために、現在はありとあらゆる半導体微細加工技術が適用され、できる大きさのものから作られている。

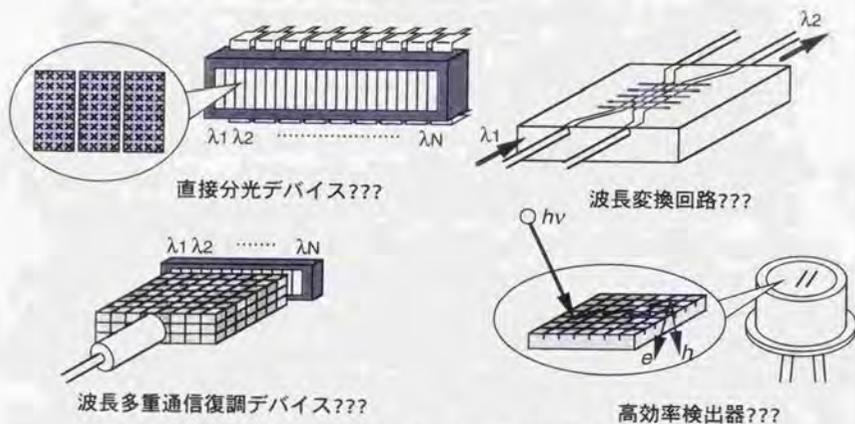
現在はまずは設計通りの3次元構造をできる限り小さく作ることが課題で発光動作の確認に至るにはまだしばらく時間がかかりそうである。現在の最小の結晶は格子定数 $4\mu\text{m}$ 、動作波長 $10\mu\text{m}$ で、まだ目標よりは1桁大きい[47]。特に半導体



(a) 単一モード発光ダイオード (SMLED)の実現 (Hirayama, APL, 96)



(b) 微小光回路の設計 (Joannopolous, Nature, 97)



(c) 新しい物理現象・新しい利用形態の探索 (図は期待できそうなことが明らかになりつつある機能を持ったデバイスの想像図)

図1.2.5 フォトニック結晶研究の3つの方向

材料は屈折率が大きいので結晶中での光の波長は非常に小さくなってしまふ。そのため、他の材料に比べるとさらに微細に加工しなくてはならないという難しさがある。一方で、効果は激減するが2次元で妥協する方向もあり、すでに光波帯で発光制御実験が始められている [48, 49, 50, 51].

計算に基づき微小光回路の設計を展開していく研究

従来の光導波路回路とは光を半分ずつに分けるといっただけにも数cm角の回路が必要な非常に大型のものであった。それは光導波路を急激に曲げるとそこから光が漏れてしまうからである。MITのグループが2次元PBG結晶中に欠陥を連ねて道を作ると、光を波長の大きさの中で直角にすら損失なく曲げることができることを明らかにして以来、従来の光回路をフォトニック結晶の利用によりどれだけ改善できるかを調べる研究が進められている [45, 46].

この分野では扱う対称を限定することによって理論的な検討を容易にしている。無限円柱を要素とした2次元結晶は、TEモードとTMモードの混合が起こらず別々の問題として扱えるので、本質的に計算が簡単な系である。また、電子系との相互作用を考えない応用に特化しているため、確立されたパッシブで古典的な光の伝搬だけを扱えばよい。さらにその計算手法の信頼性は、マイクロ波実験の蓄積により十分に確認されている [39, 52, 42, 53, 54].

このような特徴により、光回路の研究は実験は一切行われず、理論計算だけで提案や設計だけが行なわれる極めて独自の進展をしている。ただし、一般にはここで仮定している2次元結晶の製作は、大きな技術的革新がないかぎり不可能と考えられており [55], 実際の実現はまだ先になりそうである。

現在は、波長サイズで直角や鋭角に光を曲げる導波路や、スプリッタ、あるいは波長多重光通信用のフィルタなどが設計されている。系が限定されるのでFDTD法のような数値解析でもすでに系統的によく計算されている。基本的な設計原理がいくつか抽出され、詳細な計算をせずに新しい素子を設計できる段階まで到達している [56].

フォトニック結晶における新奇な物理現象を探索する研究

前の2つのテーマ以外にもフォトニック結晶に関してはまだまだ多様な利用形態があると考えられている [57].

これまで世の中には光の波長オーダーの周期構造が存在しなかったのであるから、そのような系での光の伝播の仕方や、電子系と光の相互作用の仕方を様々な側面から調べたいという純粋な物理学的興味は尽きることがない。そうした基礎研究の中から、自然放出光の制御に続く物理現象や利用形態が実験的・理論的に見付け出されていくと期待されている。

この分野では多様な結晶が必要とされるが、特に光波帯で実際に物質系と相互作用できることが強く求められる。これまでにありとあらゆる微細加工技術を用いて多様な結晶が製作されている他、最近の特徴として微小球のコロイドを用いる実験が増えている。微小球を用いる方法はPBGなどの点では不利であるが、容易に光波帯で実験ができることが魅力である。これまでに透過スペクトルを評価して理論通りか確認する基礎的実験や、発光体を埋め込んでフォトニック結晶が持つ自然放出光制御効果を調べたり、新奇な光伝播の探索と描像獲得が行われている。材料は一般には透明な誘電体材料のパッシブなものが多い。

最近では、フォトニックバンド効果によって発光寿命が変化する様子 [58] やそれまでに現象の存在が認識されていなかったスーパープリズム効果が発見される [55] など、重要な成果が相次いでいる。

本研究はこの分野において貢献することを目指している。

1.2.6 フォトニック構造物研究の現状—フォトニック結晶の従来の実現例—

ここで、これまでに実現されたフォトニック結晶について整理しておく。特に自然放出光の制御機能に関しては結晶がいくつの方向に周期を持っていて、どれだけ光を閉じ込めることができるかが本質的に重要であるので、ここでは、結晶を次元によって分類する。ただし、一般に1次元結晶や2次元結晶と呼ばれているものにも、他の方向には実質的に無限の大きさを持ち本質的に1次元や2次元ものもあれば、他の方向には周期構造がないが波長程度に微細に成形されていてそちらにも多少の閉じ込めの効果がありそうなものもある。ここでは両者を厳密に区別して、周期のない方向にも微細に成形されているものを、1.5次元結晶、2.5次元結晶と呼ぶことにする。これらの模式図を図1.2.6に示す。これらの次元の分類に従って、これまでの報告された結晶を表1.2.1に示す。この表には、同じような構造の結晶がいくつか報告されている場合には、その中で特に微細なものについての数値を記

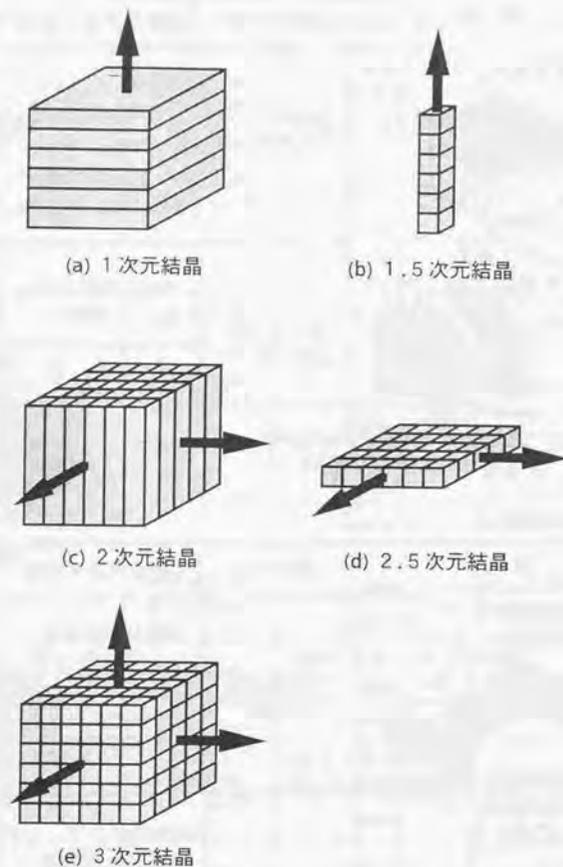
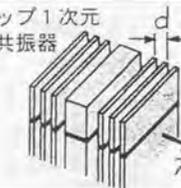


図1.2.6 様々な次元を持ったフォトニック結晶
(矢印は周期構造により制御できる光の伝播方向を示す)

表1.2.1 これまでに実現された様々なフォトニック結晶 (1/4)

(a) 1次元結晶

構造	最小寸法	製作方法/材料	研究成果
誘電体多層膜 	$d=0.0015 \mu\text{m}$ $\lambda=0.003 \mu\text{m}$	蒸着, スパッタ, MOCVD, MBE 各種誘電体 (酸化物, 弗化物)	光波用は共振器ミ ラーやフィルタと してごく日常的に 用いられてる
エアギャップ1次元 ブラッグ共振器 	$d=0.31 \mu\text{m}$ $\lambda=0.98 \mu\text{m}$	EBリソグラフィ + RIBE GaAs系	レーザ発振 Baba, JJAP, 96

(b) 1.5次元結晶

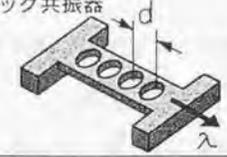
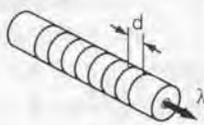
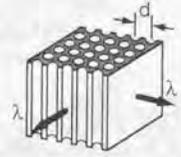
構造	最小寸法	製作方法/材料	研究成果
垂直円孔導波路 ブラッグ共振器 	$d=0.63 \mu\text{m}$ $\lambda=1.3 \mu\text{m}$	X線リソグラフィ + エッチング Si / SiO ₂	透過スペクトル評価 バンドギャップ観測 Foresei, Nature, 97
ファイバブラッグ グレーティング 	$d=0.13 \mu\text{m}$ $\lambda=1.3 \mu\text{m}$	UVホログラフィック 露光 + 異性化 SiO ₂	透過スペクトル評価 バンドギャップ観測 水波, 応物, 98

表1.2.1 これまでに実現された様々なフォトニック結晶 (2/4)

(c) 2次元結晶

構造	最小寸法	製作方法/材料	研究成果
キャピラリ2次元配列 	$d=1.17 \mu\text{m}$ $\lambda=2.5 \mu\text{m}$	ガラスキャピラリ 延伸法 PbO, SiO ₂ など	透過スペクトル評価 バンドギャップ観測 Inoue, JJAP, 94
	$d=2.3 \mu\text{m}$ $\lambda=4.4 \mu\text{m}$	リソグラフィ + ウエットエッチング Si	透過スペクトル評価 バンドギャップ観測 Lehmann, MEMS, 96

(d) 2.5次元結晶

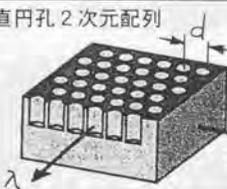
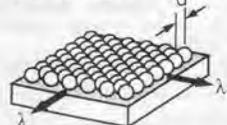
構造	最小寸法	製作方法/材料	研究成果
垂直円孔2次元配列 	$d=0.17 \mu\text{m}$ $\lambda=0.8 \mu\text{m}(?)$	EBリソグラフィ + RIE GaAs系	自然放出制御 Wendt, JVSTB, 93
	$d=0.18 \mu\text{m}$ $\lambda=0.83 \mu\text{m}$	EBリソグラフィ + RIE GaAs系	透過スペクトル評価 バンドギャップ観測 Kraus, Nature, 96
垂直円柱2次元配列 	$d=8 \mu\text{m}$ $\lambda=0.74 \mu\text{m}$	リソグラフィ + 酸化 GaAs系	レーザ発振 Evans, APL, 97
	$d=1.1 \mu\text{m}$ $\lambda=1.55 \mu\text{m}$	EBリソグラフィ + RIBE GaAs系	自然放出偏光制御 Baba, EL, 95
	$d=0.49 \mu\text{m}$ ($\lambda \sim 1 \mu\text{m}?$)	EBリソグラフィ + MOCVD選択成長 GaAs	(製作のみ) Hamano, JJAP, 97
	$d=0.5 \mu\text{m}$ ($\lambda \sim 1 \mu\text{m}?$)	EBCVD Pt + カーボン	(製作のみ) Koops, SPIE, 96
微小球2次元配列 	$d=0.37 \mu\text{m}$ $\lambda=0.25 \mu\text{m}$	自己組織化 ポリスチレン	透過スペクトル, 近接場 像, パルス伝搬, ガウスビ ーム伝搬 国府田, 光連シンポ, 95
	$d=0.8 \mu\text{m}$ ($\lambda=1.5 \mu\text{m}?$)	マルチビーム レーザトラッピング TiO ₂	(製作のみ) Hongqiang, OL, 95

表1.2.1 これまでに実現された様々なフォトニック結晶 (3/4)

(e) 3次元結晶 (つづく)

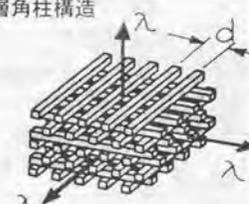
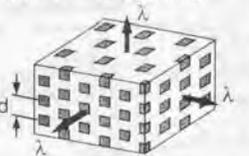
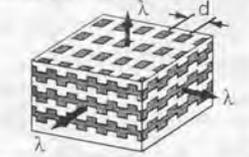
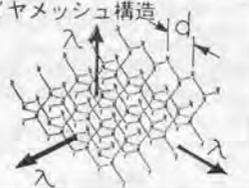
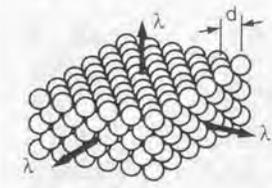
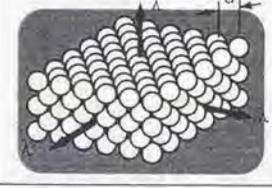
構造	最小寸法	製作方法/材料	研究成果
3方向傾斜円孔構造 	$d=0.46 \mu\text{m}$ $\lambda=1.2 \mu\text{m}$	EBリソグラフィ + RIE GaAs	透過スペクトル評価 バンドギャップ観測 Cheng, JVSTB, 95
	$d=85 \mu\text{m}$ $\lambda=125 \mu\text{m}$	LIGA 高分子, セラミクス	透過スペクトル評価 バンドギャップ観測 Feiertag, APL, 97
積層角柱構造 	$d=235 \mu\text{m}$ $\lambda=600 \mu\text{m}$	リソ+エッチング+ ガイドに沿った組立 Si	透過スペクトル評価 バンドギャップ観測 Özbay, OL, 94
	$d=4 \mu\text{m}$ $\lambda=10 \mu\text{m}$	MBE + リソ + RIE + 選択エッチング+ レーザ回折位置決め + ウエハ融着 GaAs系	透過スペクトル評価 バンドギャップ観測 野田, 光学, 98
2次元パターン積層構造 	$d=0.79 \mu\text{m}$ $(\lambda \sim 1.43 \mu\text{m}?)$	リソグラフィ + エッチング Si/SiO ₂	(設計のみ) Fan, APL, 94
	$d=1.4 \mu\text{m}$ $\lambda=2 \mu\text{m}$	リソグラフィ+RIE + スピンコート Al/高分子	透過スペクトル評価 バンドギャップ観測 McIntosh, APL, 97
2.5次元パターン積層構造 	$d=0.32 \mu\text{m}$ $\lambda=0.96 \mu\text{m}$	リソグラフィ+ バイアススパッタ $\alpha\text{-Si/SiO}_2$	光線伝搬方向観察 スーパープリズム 効果発見 Kosaka, PRB, 98
ワイヤメッシュ構造 	$d=66 \mu\text{m}$ $\lambda=75 \mu\text{m}$	レーザCVD Al ₂ O ₃	透過スペクトル評価 バンドギャップ観測 Wanke, Science, 97
	$d=40 \mu\text{m}$ $(\lambda \sim 80 \mu\text{m}?)$	リソ+エッチング+ マイクロ組立 Si	(部品製作のみ) Keller, MEMS, 97

表1.2.1 これまでに実現された様々なフォトニック結晶 (4/4)

(e) 3次元結晶 (つづき)

構造	最小寸法	製作方法/材料	研究成果
微小球 3次元配列 	$d=0.11 \mu\text{m}$ $\lambda=0.4 \mu\text{m}$	コロイド結晶 それを乾燥したもの さらに焼結したもの ポリスチレン SiO ₂	分散曲線計測 透過スペクトル評価 バンドギャップ観測 ブラッグ回折角計測 自然放出制御 Miguez, APL, 97等
微小球 3次元配列の間隙充填 	$d=0.28 \mu\text{m}$ $\lambda=0.46 \mu\text{m}$	上記結晶 + 色素溶液浸透 or CVD ポリスチレン, SiO ₂ + 色素, 半導体	透過スペクトル評価 バンドギャップ観測 自然放出制御 Petrov, PRL, 98等

載した。また、格子定数 d としているものは必ずしも結晶学上の厳密な格子定数ではなく、特徴的な周期構造のサイズ程度の意味である。

1 次元結晶

ただの誘電体多層膜（ミラーやフィルタ）も一種の1次元フォトニック結晶である。誘電体多層膜は光波帯では十分に確立した技術で、現在は既に X 線領域の短い波長の電磁波に対してどう実現するかが課題になっている [59, 60]。また、周期構造の屈折率のコントラストを上げて反射率を向上するために一方の材質を空気とした多層膜も反応性イオンビームエッチング (RIE) などのエッチング技術の向上により実現できるようになってきた [61, 51]。普通はこれらをフォトニック結晶と呼ぶことはない。

1.5 次元結晶

垂直円孔導波路ブラッグ共振器は MIT の Joannopoulos らが提案している光導波路のための1つの要素である [62, 46]。結晶と言っても数周期程度しかなく、幅も高さも波長よりも小さい程度のこの構造物は、本研究で期待する有限フォトニック結晶の一つの将来の形を呈示しているように思われる。導波路構造のために反射や透過のスペクトルは非常に鋭い。一方、通常はフォトニック結晶とは呼ばないが、ファイバブラッググレーティングもこれと同様の効果を持っているはずである [63, 64]。

2 次元結晶

キャピラリを配列して加熱して延伸する方法 [65, 66, 67] とエッチングに寄与する電荷の動きを制御してアスペクト比の高い構造物を実現する技術 [68, 69, 70] により2次元結晶が製作され、面内に進む光に対して完全な PBG 実現できることがすでに示されている。

2.5 次元結晶

半導体技術を用いて製作できるのは面内方向に微細な構造を持ち、かつ薄い構造物である。従って、半導体技術で実現できるのは2次元結晶ではなく、厚みが光の波長と同じ程度の2.5次元ということになる。半導体プロセスで実現できる典型的

な構造物だけあって、報告されているもののほとんどが実際に GaAs 系材料を使って発光できるもので、完成度は極めて高い。

浅い孔をあける方法は PBG 形成の点では屈折率コントラスト上不利であるが、結晶層が導波路面としても機能するので実験的にはどれも良い結果が得られている [48, 71]。

円柱を立てる方式は PBG 上有利なので多くの研究がなされている。実際にフォトニック結晶による光滞留でのレーザー発振も観測されている [72, 73, 49, 74, 75]。

変わったものとして、微小球を配列する方式がある [76, 77, 78]。国府田らによる結晶が国内のいくつかのグループで様々な面から実験的に評価されている [79, 80, 81, 82, 83]。ところが、この自己組織化単層結晶については、明確に理論と対応の付くバンド効果と呼べるものの実証には至っていない。これはおそらく微小球のサイズの不均一による結晶性の問題ではないかと思われる。確かなかなか広い単結晶領域が得られず、どうしても多結晶体になってしまうことはよく知られている。

3 次元結晶

3次元結晶は特に PBG による自然放射の完全制御を実現する上では極めて重要で、ありとあらゆる多様な技術がこれまでに投入されている。

まず、3方向から傾斜した円孔をあける構造は、俗に Yablonovite 型結晶とも呼ばれ、すでに GaAs の反応性イオンエッチング (RIE) で数層の光波用結晶が製作されている。しかしながら、PBG と呼ぶにはあまりにも減衰の小さな透過ディップが観測できたに過ぎない [84, 85, 86, 87]。

角柱を積層する構造はマイクロ波・ミリ波の領域で Özbay によって段階的に微小化されてきたが [88, 89, 90, 91]、この構造を一気に光波帯で実現することを Noda らが試みている [47, 92, 93, 51]。基本的にはスリット列の入った平板部品のアセンブリで実現する。Özbay はシリコンウエハを積層する際にはこれを手作業で行ない、位置決めにはガイドピンを用いたようである。Noda らはこれを現在利用可能なすべての先進的な微細加工技術をつぎ込むことで実現しようとしている。スリットは RIE でシャープに作り、これをウエハ融着により組立、不要部分は選択エッチングで切り放し、また、位置決め時はレーザー回折光をモニターすることで高精度にできるようになっている。欠陥の導入などを考えると組立が有効としている。

フォトニック結晶のように本質的に3次元性が重要な構造物を実現するには基本が平面加工である半導体プロセスは一般には向いていない。しかし、半導体技術

得意な2次元パターンをうまく積層していくことで3次元結晶も実現可能である。Fanが早い時期にこれを提案したが[94]、その後の実際の製作に関する報告は一切ない。また、金属を意図的に用いた結晶なので少し特殊な例になるが、スピントコートを用いて比較的厚めの膜を積層していく方法もある[95]。3次元結晶で本当にPBGと呼べるような大きな透過スペクトルの落ち込みが観測されている。コロイド以外の手法では、この結晶の波長 $2\mu\text{m}$ でのPBGがこれまで報告された中で最小ではないかと思われる。

これと似たものとして、凹凸のある2.5次元的パターンを形成しておき、その上に薄膜を交互に成長させて3次元結晶を実現する方法がある[96, 97, 55]。川上らはバイアススパッタ法にてこれらの形状が自己組織的に一定に保たれる条件を見付け出し、すでに光波帯の格子定数を持った結晶を製作している。

マイクロ波領域では、金属のワイヤで作った3次元の網目構造がバンドギャップを示すことがわかっている[98]。これと同様の構造がレーザCVDでも実現されている[99]。また、シリコンでその部品を製作し、マイクログリッパでこれを組み立てることを計画しているという報告もある[100]。

3次元結晶でも微小球を自己組織的に配列したものが用いられる[101, 102, 103, 104]。これはコロイド結晶として、その光学特性も含めて古くから研究されている。溶液中のコロイド結晶の状態では格子定数は粒子間の静電的相互作用によっていろいろに選択できるのであるが、溶媒を乾燥させてしまった結晶は最密充填になっており、体積分率は一定で、振れるパラメータはほとんど存在しなくなってしまう。

これをベースに間隙を半導体材料のCVDや色素溶液で充填して屈折率コントラストを逆転する例が最近多く報告されている[105, 58, 106]。PBGを形成するためには間隙の屈折率が高い方が有利なためである。

実現例のまとめ

以上の整理結果を見ると、特に3次元結晶について、他と異なる特徴がいくつか見える。まず3次元結晶以外では、実現されている構造物はすでに光波帯に適用できる寸法や実際に将来発光デバイスとして使用できる材料で製作されている。これに対して、3次元結晶では様々な材料が用いられ、また、必要とされる寸法よりも何桁も大きいものも混ざっている。これは3次元微小構造物の製作技術がまだ十分に発達していないため、まずは本当にそのような3次元の形が実現できるのか、そのような形を作ったとしたら本当に期待される特性が得られるのか、を調べる極

めて初歩的な段階でしかないことを示している。その中で、唯一光波帯で良質の結晶を製作することのできる微小球配列による結晶では、フォトニック結晶の示す物理現象を丁寧に調べる多様な実験が先行して進められている。

1.2.7 フォトニック構造物研究の現状—その他の構造物—

2連球

その他の構造物としては波長程度の大きさの球を2個並べた2連球に関する研究が進められている。これも多重散乱の一つの極限で、単一散乱体が複数近接したらどうなるかを調べる最も簡単な多重散乱系である。あるいは最も簡単なフォトニック結晶とも最も簡単なランダム系とも言える。

物理的に興味があるのは、個々の球の共鳴モードが2球近接によってどのように変化(分裂)するかに尽きる。このような問題は原子が結合して分子ができるときの電子軌道の変化、すなわち結合軌道と反結合軌道の生成と同じで、電子波に対してよく理解されているこの現象が光の場合にどうなるかが関心の的である。

一般に数学的に扱いやすいのは1個だけの対象、あるいはそれが無限に規則正しく並んだもののどちらかで、意外に数個の物体で構成された構造物は扱いにくいものである。2球の結合問題は単一球の共鳴散乱の確立当初より関心を持たれていたが、数学的に扱うことができるようになったのはつい最近である[107]。興味深いものとして、ランダム媒質の重要な効果であるコヒーレント後方散乱効果を2連球系について解析し、わずかであるがこれが発生することを理論的に調べた研究がある[108]。これは2連球をランダム系のもつ最も単純な要素と考えたものである。

しかし、実験的に球径の揃った球を2個だけ、あるいはそれ以上並べることが困難であるため[109]、まだ実験的にはあまり意味のある結果は得られていない。

任意微小構造の近接場像解釈問題

デバイスにつながる話ではないが関連ある話題として、近接場光学顕微鏡で一体何が観察されているのか、理想的なプローブとはどのようなものかを考える問題がある。あまり多重散乱問題としてはとらえられていないが、おそらく最も困難な究極の多重散乱問題である。

これまでにプローブ内部や先端の電界の計算は広く行なわれているが、明快な像解釈のルールはないようである[110, 111, 112]。この電界はプローブ自身も含めた

境界条件下での Maxwell 方程式を解くことにより求められるので、対象とする系を限定できれば詳細に像を解釈できる。例えば、対象の方が厳密に特定できる単一分子の蛍光観察に関しては、プローブ先端での分子の位置や向きによって検出画像がどうなるか系統的に解析できるので、逆に1個1個の分子がどちらを向いていたかまで既に実験的に検出できている [113]。

近接場光学顕微鏡が相手にするのは正体不明の構造物であるが、そもそも素性のはっきりした周期構造物や2連球におけるフォトンの挙動ですら上記のように発展途上であることを考えると、まだしばらくは明快な解答は得られないように思われる。しかし、最適なプローブが明らかになり、それが再現性良く実現できるようになるという実験側の革新が起これば、プローブ側の条件を絞れるので状況が変わるだろう。

1.2.8 フォトニック構造物研究の構造性と課題

フォトニック構造物研究の構造と従来の研究の位置付け

これまで、本研究の動機となる問題意識の説明をするために、多くの紙面を使ってこれまでの関連する研究の現状をすべて説明してきた。

ここで光散乱現象に関する研究の構造を整理してみると図1.2.7のように表せる。フォトニック構造物研究は3極構造をしている。それぞれの頂点に、単一散乱体(実際には球)の Mie 散乱、それを規則正しく無限に並べたフォトニック結晶、ランダムに無限に並べたランダム媒質の研究が位置する。この3つの頂点とは、要するに理論あるいは実験が容易な極端な系である。それぞれの頂点におけるフォトンの振る舞いはそれぞれに特化した理論あるいは描像で記述されている。Mie 散乱ではベクトル球面波で光の電界が厳密に記述できる。フォトニック結晶中の光の挙動は周期構造物のバンド理論により記述され、それぞれの方向に、ある周波数の光がどの程度の速度で伝搬していくかという分散関係を議論する。ランダム媒質中では光は粒子とみなされ、これが散乱体に次々に衝突しながらランダムに進んでいくという統計的な扱いをする。このそれぞれの頂点の中では何事もつじつまが合うように説明され、それぞれの理論の方法にのっとって、理論的にも実験的にも系統的に調べられている。

2連球は、単一散乱を基礎として、結晶あるいはランダムの方に一步だけ踏み出した位置にある。2連球はもっとも簡単な結晶と考えても良いし、ランダムと考

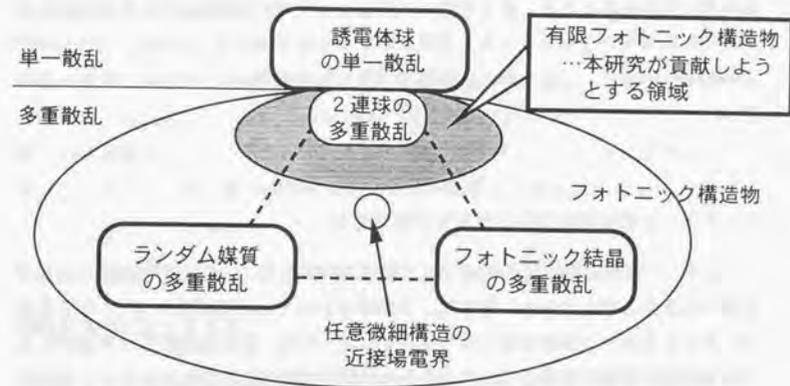


図1.2.7 フォトニック構造物研究の構造性

えても良い。このあたりでは結晶とランダムとの区別は意味がない。一方、任意微細構造物の近接場電界問題は三角形の中央に位置する、単一散乱体でもなければ、周期的に並んでいるわけでもなく、かといって統計的なランダムなものでもどれでもなく、明らかに扱いが困難な位置にいる。

光と物質系の相互作用は発光ダイオード、フォトダイオード、レーザ、各種ディスプレイなど、重要な機能デバイスの基礎原理の宝庫である。しかもすでに、1個の球、その結晶あるいはランダムな媒質において、光が構造物により特異な振る舞いをすることが明らかにされてきた。この分野から新しいジャンルの光デバイスや光材料が現れることは疑いようがない。特にフォトニック結晶、中でもSMLEDや微小光回路は注目を集めており、重要な素子になるであろう。しかし、これらはほんの端緒に過ぎない。もっと大きな可能性があるはずである。このことを次に考察する。

フォトニック構造物研究のこれからの重要領域

フォトニック構造物がデバイスとして利用されるときに、それがどのような形で実現されるかを考えてみる。工学的には無限系というのは現実的でなく、必ず有限系、それもなるべく簡潔な系として実現される。また、単調な周期系では必ずしも要求の特性は実現できないであろうから、望み通りの特性を持たせるように各部を人為的に最適化し、個々の散乱体もちよとずつ大きさや間隔が異なるようなものになるであろう。つまり少数の多様な散乱体を多様に3次元的に配置した有限フォトニック構造物、というものがデバイスとして有望である。ここで有限という言葉の意味は、散乱体が数個から数10個程度であることと、大きさの上でも無限に大きい部分がない何もかも波長サイズの大きさ、ということである。

他の周波数帯を探すと、そのような有限フォトニック構造物の実例は確かに存在する。電波の八木・宇田アンテナが正に10個程度の波長サイズの長さを持った散乱体を波長の1/10程度の間隔で3次元的に配列した構造物になっている。これをそのまま縮小した形で光波にとって役に立つかどうかは疑問であるが、光の領域でこれに相当する有限構造物が重要とする主張は、知る限り本研究の他にはない。

このような構造物の図1.2.7での位置を考えてみると、図中に示したように、単一よりは大規模であるが無限ではなく、均一な結晶でもなく、ランダムでもない三角形内部の上部あたりになる。この領域はどの頂点の枠組みにも収まらない中間

的・過渡的な部分であり、まずはこの領域が学問として取り扱えるようになる必要がある。

有限フォトニックデバイスを実現するために必要とされている研究は、まず少数の散乱体からなる3次元有限フォトニック構造物の多重散乱において、どのような現象が期待できるのか、どのような工学応用形態があるのかを探索することである。探索と言ってもまったく指針がないわけではない。すべてのフォトニック構造物に共通の物理現象は、共鳴的な散乱と配列の相互作用により発現している。有限個の共鳴散乱体が多様な相互配置によってどのような光学特性を示すか、どのような光学現象を引き起こすかということを明らかにしていくことが求められているのである。

これまで、共鳴散乱だけの効果は、単一球の散乱や微小球レーザで調べられてきた。また、弱い散乱体の配列・周期構造だけの効果は回折格子、ホログラフィ、X線における結晶回折で古くから利用されてきた。しかし、両者の相乗効果については、フォトニック構造物の研究が始まって以来の新しい課題である。

1.2.9 有限フォトニック構造物研究のために必要な技術

理論と実験における見通し

このような有限フォトニック構造物における共鳴と配置の相互作用を研究するためにどのような技術が必要とされているのであろうか。現在は、理論的にも実験的にもこのような系を扱うことは難しい。だからこそ図1.2.7でこの領域が大きく抜けているのである。しかし、理論上も実験上も状況は好転している。

まず、理論計算手法については、ベクトル球面波展開法が少しづつ複雑な系に適用できるようになってきた。ベクトル球面波展開法によるフォトニック構造物の計算は、Mie散乱理論をOhtakaが拡張したことにより可能になった[30, 114, 115, 116]。他の数値計算による方法に比べると、解析的に導かれる要素モードの総和として電界を記述するので、個々の共鳴の結合していく様子などの物理的なイメージの見通しが立てやすい[1]。その反面、適用できる系が極端に限定される。しかしこれも、従来は無限に球が配列した系しか扱えなかったが、ごく最近になって数個の球の共鳴の結合の解析に用いることができるようになってきた[117, 118, 119]。また、時間領域差分法(FDTD)の発達によっても任意の3次元的な構造の電磁界を調べることができるようになってきた。このような数値計算手法は解いてみないと結果が

分らないので系統的な知識を得るには不向きであるが、与えられた任意の構造物について詳細に解析するには強力なツールとなる。

もう一つは、実験の面での進歩である。光学顕微鏡や電子顕微鏡の観察下でのマイクロマニピュレータによる微小物体の操作がデモンストレーションされるようになり [120, 121], マイクロメートルオーダーの誘電体の球を、1個1個操作して3次的に配列する作業も不可能とは言えない状態にまで到達している。本研究では、この技術が有限フォトニック構造物研究のための実験面でのブレークスルーになると考えている。それは1個1個の散乱体の持っている共鳴特性とその配置とを分離して扱うことができるからである。

それにしても、なぜマイクロメートルオーダーの誘電体の球を、1個1個操作して3次的に実際に配列することが不可欠なのか、を以下に整理しておく。

機械的微小球配列手法の重要性

まず、球を基本要素として実験をするのは、それが最も簡単なよく特性のわかった大きな共鳴を示す3次元散乱体だからである。各次元を持ったよく特性のわかった共鳴散乱体を考えると、1次元的な散乱をするものとしては無限平板（厚み方向の共鳴）、2次元的な散乱をするものとしては無限円柱（円形断面内の共鳴）、3次元的な散乱をするものとしては球（3次元共鳴）がある。無限平板の1次元配列は、実際に多層膜やエアギャップブラッグ共振器として製法も確立し、研究に用いられている。無限円柱の2次元配列は微小光回路の基本構造として研究が進められている。球の3次元配列は図1.2.4で示したように近年発表件数が増えているが、これは実験が簡単なことももちろんあるが、素過程が明確にできるという本質的な不可欠性もある。

その球が誘電体でないといけないのは、電子励起のともなわない、純粋な幾何学的構造による共鳴を調べるためである。

マイクロメートルオーダーであることは、電子準位系との相互作用を調べるには光波帯でないという意味がないからである。

また、多様な球を設計通りのところに配置するには、総体ではなく、1個1個の操作ができなくてはならない。

共鳴の強さは何次元的な共鳴であるかが本質的に重要である。特に電子系と輻射場の相互作用によって自然放光を制御することが目的の場合には、SMLEDがそうであるように3次元性が必要である。

最後に実際に配列を行なって実験をしなければならないのは、3次元の多重散乱問題は計算が可能になってきたとは言え、まだ現実には計算できることは限られており、基本的に実験によって進めて行かねばならないからである。微小光回路のような2次元無限円柱系の場合には、2つの偏光の自由度 (TE/TM) が混合せず独立なので、計算も容易であるし電界分布の見通しを立てるのも容易である。それに比べて球を基本セルとした3次元的な問題は、偏光の混合が起こるので、本質的に計算が困難で、直観的な見通しも立てにくい。

これからのフォトニック構造物研究において、マイクロメートルオーダーの誘電体の球を1個1個3次的に配列する技術が必要であるという主張は本研究独自のものである。

フォトニック構造物の研究で、最先端の微細加工技術を駆使してデバイスを目指した研究が進められている一方で、このように球を1個1個並べることが重要と主張することは違和感を感じるに違いない。しかしながら、発展途上の学問においては様々な面をサポートする様々な技術が必要で、どれも同じように重要なはずである。例えばフォトニック構造物研究における両者の役割は次のように説明できる。

有限個の共鳴散乱体が多様な相互配置によってどのような特性を示すかは、共鳴を示す物理系に普遍的な問題である。機械工学でも防振などの問題がこれにあたるが、科学技術上より大きなスケールの問題を探してみると、原子と化合物分子の関係がある。原子は電子の共鳴構造物であり、分子は共鳴体である原子の近接により新たな共鳴準位を持つようになる。1種類だけの共鳴体、例えば炭素だけではグラファイトやダイヤモンドしかできないが、例えば2種類用意して炭化水素化合物を考えるだけでも結合形態により多様な分子が形成される。炭化水素では、電子すなわち共鳴モードの結合の仕方によって多様な結合が生じる。例えば、 σ 電子は外部と反応しにくく、 π 電子は反応性に富んでいる [122]。さらに共役 π 電子系が形成できると、 π 電子は非局在化し、電気伝導にすら寄与するようになったり、ベンゼン環のような環状共役 π 電子系では共鳴により安定な分子単位構造が実現できる。スカラー波とベクトル波という大きな違いがあるので、光の共鳴の場合にこれらの個々の現象がどのような形で現れるかわからないが、自在なフォトニック構造物を製作する技術とは、光に対する原子を取っ替え引っ替え並べたり離したり、別の原子をくっつけたり置き換えたりする“化学反応”によって、多様な化合物分子を実現する物理化学的技術といえる。これに対してSMLEDを目指して邁進している3次元フォトニック結晶を目指す研究は、高品質な単結晶材料を目指す冶金学的研

究と呼べそうである。また共鳴やその結合は波動に関する共通の現象であるから、フォトニック構造物以外にも同じように究極的には機械的配列技術が本質的な役割を果たす対象がいろいろありそうである。

機械的微小球配列手法と他の手法の比較

微細加工技術を用いた研究は、共鳴と配列の相乗効果を調べたり、見通しの良い設計原理を追求することが必要なフォトニック構造物の探索的研究には適していない。微細加工技術でかたまりから削りだした3次元構造物では、個々のセルの形がいびつで共鳴特性が明確でないで、個々のセルの共鳴と配列のそれぞれの効果、相乗効果を分離して議論ができないからである。また、3次元系は現在の微細加工技術ではそもそもマイクロメートルオーダーの実現が困難である。その反面、2.5次元以下ならマイクロメートルオーダーの製作も可能で、対応する計算手法も確立している。微細加工技術が有効である。また、SMLEDのようにひとたび系が限定された場合にも微細加工技術が重要である。

また、微小球の自己組織的配列手法では、すでにマイクロメートル微小球の3次元配列は可能になっている。しかし、多様な大きさの球の混在した構造物や意図的な乱れを設計通りには作れない。自己組織的配列で実現できる構造物は、巨大な多結晶体であって、2次元でも単結晶の製作は現状では困難であるし、3次元構造物では層数の制御が本質的に難しい。基本的に3次元の場合にはfccかhcpの最密格子になるとされているが、結局実験に用いている試料がどちらの格子なのかすら、わからずに研究を進めざるを得ない場合が多い[123]。しかし、液相での懸濁液の状態では、球の間隔を粒子濃度やイオン濃度で調整でき、基板などの効果が無視できるので理論で扱っているのに最も近い理想的な結晶が実現できるはずである。

一方、球を1個1個機械的に配列する本研究の手法にも問題点がある。3次元配列には現実には強い制約があり、球と球とが密着している系で、その中でも球の配置が安定な最密充填系に限られる。また、何かの上に並べるので、必ず基板の近接効果が存在する。この効果はまだ理論的にもあまり扱われていないので、重大な効果かどうかよくわかっていない。

こうしてマイクロメートルオーダーの誘電体の球を1個1個3次元的に配列することができれば、有限フォトニックデバイス実現のために必要な研究が推進できることは明らかになったが、そもそもこのような技術はまだ確立されていない。そこで、次に微小物体操作技術の現状を見て、何が必要かを考えてみる。

1.3 微小物体操作技術に関する研究の現状と課題

1.3.1 微小物体操作技術とは

微小物体操作技術とは、人間の眼の観察分解能や手・指の動作分解能、知覚分解能では実現が困難あるいは不可能な微小物体の操作を、機械や器具で支援することにより実現しようとする技術である。

技術分野の一つとしてこれをとらえるようになったのはごく最近のことだが、人間の一つの営みとしては太古の時代から存在する。微細な部品で構成された宝飾品や精密機械は、古くからその実現の困難さゆえに価値のあるものとして認められてきた[124, 125]。また、どんな手段を用いてもそれを行なうこと自体が尊いとされる先端医療や先端科学の分野でも、様々な工夫をして作業が行なわれてきた。目の分解能を補うための虫眼鏡や傷見(きずみ)、対象物を固定する器具や先端の細い器具などが開発され[126]、またどのように作業を進めればよいかという手技がそれぞれの分野で受け継がれている。しかし、微小物体を操作する技術そのものが機械工学研究の対象と見なされることはなかった。

ところが、近年の高度な集積人工物(機械や回路やシステム)への社会的要求や技術的挑戦意欲の際限ない高まりにともない、1980年半ば以降、研究開発現場で取り扱う対象物が人間の限界を超えるほど微細になり始めた。このころから産業における微小物体操作技術の重要性が認識されるようになった。

微小物体操作技術の現状を図1.3.1に示す[127]。微小物体操作技術の基本要素は観察と操作のための技術、すなわち、顕微鏡(観察機械)技術とマニピュレータ(操作機械)技術である。この図は世の中に存在する微小物体、それを観察する技術、操作する技術を示している。まだ開発中の技術については細線で示している。微小な対象物の代表的なものとしては、「粉」として集団で扱われているもの、生物の単位構造、精密機械や高密度電子回路の部品となる微小な工業製品がある。また、さらに微小な機械(マイクロマシン)部品を実現する技術が研究されている。観察技術としては、光学顕微鏡、走査型電子顕微鏡、走査プローブ顕微鏡などの技術が確立しており、どのような大きさの物体でも何らかの方法で観察できるようになっている。

一方、操作技術はそれに比べるとカバーしている領域がまだ限られている。現在、大別すると、ピンセットなどの器具を用いた人の手作業、実装機(ロボット)、特殊なものとして細胞操作技術がある。現在でも実体顕微鏡を覗きながらの人の手作

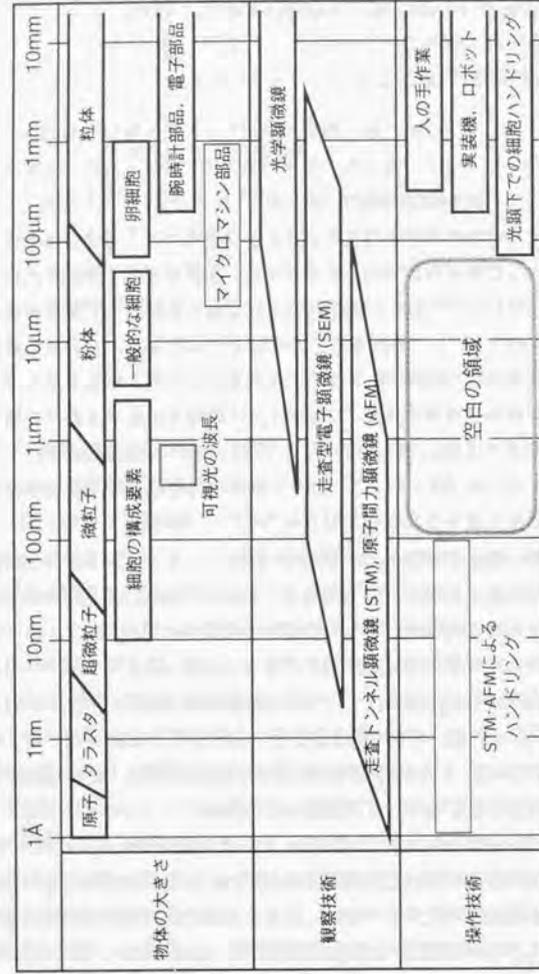


図1.3.1 物体の大きさ, 観察技術, 操作技術の関係

業による組立作業は産業において重要な役割を果たしている [128]. 近年, 対象物の微小化の特に著しい分野は高密度電子回路実装の世界である. 現在はずでに人間には取り扱えず, 機械でしか組立できない製品が登場しており, この業種では人間は関与することなく, 高速に自動で部品を組み立てていく技術が確立している. また, 細胞操作に関しては, 本来は先端科学現場での作業だったものが, 当たり前の医療技術としてそのままの形で一般化しており, 独特の技術分野を形成している [129].

一方, 小さな対象物の方に目を転じると, 走査プローブ顕微鏡が手軽に入手できるようになったこともあり, 単原子やクラスタの操作は研究室レベルでは広く行なわれるようになってきている [130, 131, 132, 133]. 特に単原子操作技術は, 電子の波動関数の人工操作の可能性を探るためのツールとして定着しつつある.

ところが, その中間の領域, 具体的には $0.1\mu\text{m}$ から $100\mu\text{m}$ の物体を操作する技術領域が未確立のまま取り残されている. 微細加工技術の発達により, 現在は $100\mu\text{m}$ よりも微小な, 明らかに人間に操作できない部品が続々登場しようとしている. このことが, マイクロマシン周辺の研究現場で微小物体操作技術の研究が重要視されるようになったきっかけとなっている [134, 135, 136]. これまでに, 光を使って非接触マニピュレーションする方法や, 光学顕微鏡下で精密なピンセットでつまんで操作する方法など様々な研究がなされているが, まだ何かの作業に利用可能な段階までは到達していない.

本節では, この空白の領域における微小物体操作技術研究の現状を分析し, 課題を明らかにする. そのために, 本論文では, 2つの観点から整理して現状を論じる. 一つは研究課題別の分類, もう一つは形態別の分類である.

1.3.2 研究課題から見た微小物体操作技術の現状

微小物体操作技術に関して, これまでどのような研究があり, 何が達成され, 何が課題として残っているかを整理することは実に難しい. 研究者がそれぞれに個人的な趣味やその人を取り巻く歴史的経緯に強く依存した独自のシステムを構築しているからである. 最高のシステムがあるわけではなく, それぞれに特徴的な要素を持っていたり, 一方で欠けている点があったりする. システム工学的な研究の結果とは本質的にこういうものであり, 従来は単にそれぞれが実現した事実を列挙することによって, 技術の現状を理解していた.

ところが、従来の研究をどのような問題意識を持って行なったかに基づいて整理してみたところ、以下のように9つの研究課題要素が存在することがわかった。個々の研究がどのカテゴリーに属するかを見るのではなく、個々の研究にどの要素がどれだけ含まれているかを見ることで、見通しよく整理できるようになった。そしてこれらの課題は微小物体操作技術研究の普遍的な構造を表していると思われる。図1.3.2にその構造を示す。このように整理することによって、これまでの研究でどの分野の研究が遅れていて、自分がどの分野で貢献することを求められているかを客観的に整理できる。

以下に、それぞれの課題別に見た研究の現状を整理する。

(1) マニピュレーションシステムの設計と統合

これはマニピュレーションシステムの自由度配置やどのような要素技術を組み込むべきかという構成論を論じた研究である。

Morishitaら[137, 138, 139]は、微細作業のためには作業工具の先端は観察視野の中心に固定しておき、周囲がそれに対して相対的に動く自由度配置が有効であること、作業の体験には立体画像、力情報、音の伝達が重要であることを示した。佐藤ら[140, 141]は組立のような複雑な操作には回転自由度の組み込みが不可欠で、そのためには工具先端とすべての回転軸と顕微鏡の視野の中心が一致する集動構成をとるべきであることを明らかにした。Koyanoら[142, 120]は、3次元空間における作業を行なうためには、さらに観察視野も同じ点を中心とした多面に配置した集動・集視構成が不可欠であることを示した。また、人間の世界と微小世界の何桁にもわたるスケールの乖離が引き起こす問題を解決するために、作業パッケージと呼ぶユニットごと部品を搬送・搬出することが重要であることを初めて指摘した。一方、Hümmelerら[143, 144]は、大きな対象物に対して微細な作業を可能にするには、巨大な真空チャンバの中でSEM鏡筒の方を動かして多面視することが有効であることを示した。また、米山ら[145]は、微小な世界でも対向する2組のピンセットを用いた左右の手の協調作業が有効であることを示した。

単なる物体操作だけでなく、他の要素と統合させたより巨大なシステムに関してもこれまで設計・統合が実現されている。Hatamuraら[146, 147, 148]は、微小機械の実現には部品加工と組立の一貫性が不可欠であることを指摘し、加工チャンバ、組立チャンバ、その両者の接続を保障するパレット搬送システムからなるシステムを提案・構築した。Sugaら[149]は、微小機械の実現には組立と接合の一

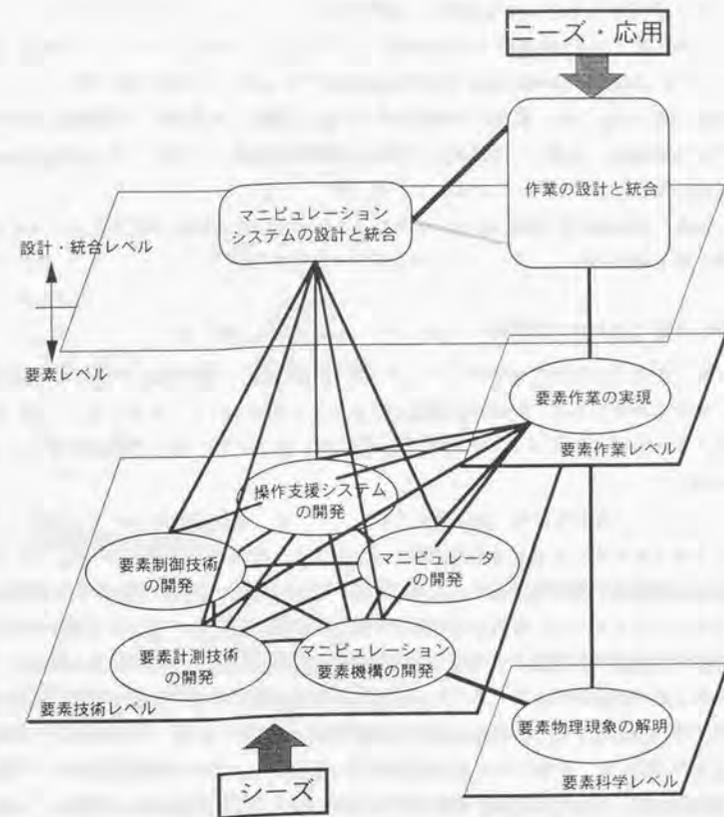


図1.3.2 微小物体操作技術に関する研究課題の構造的な階層図

貫性が不可欠であることを指摘し、超高真空下で、高速原子ビーム、イオンビーム、観察のためのSEMすべての光軸が1点で交差する構成のシステムを提案・構築した。Fraunhofer研究所を中心に進められているドイツの μ -FABプロジェクト[150, 151, 152]では、現行の半導体プロセスとの継続性を重視し、部品搬送を共通マガジンにより実現し、段階的にプロセスを集積・統合できるシステム構成を検討している。

また、Rambinら[153]はレーザマニピュレーションを用いた組立システムを提案している。

(2) マニピュレータの開発

マニピュレータのためのアクチュエータ、並進機構、回転機構の開発とその統合に関する研究である。次の要素機構とは必ずしも明確に区分できないが、しばしばマニピュレータがシステムの中核として重要な役割を果たすので周辺要素とは分けた。

ナリシゲ、島津製作所、Burleighでは、それぞれ、液圧駆動と送りネジ駆動、ボイスコイルとモータによる直動機構、インチワームから構成されたマニピュレータを主に細胞操作向けに市販している[129]。Morishitaら[137, 138, 139]は、SEM下のマニピュレータに有効な圧電素子で構造物を弾性変形させることを基本とした高精度微動機構と平板状に集積できる粗動機構を開発した。ETHのNanorobotプロジェクト[154]では、インパクト駆動により広い範囲で微細な動きが実現できる機構を実現した。また、Koyanoら[142]、Hatamuraら[146]、Mitsuishiら[155]、佐藤ら[156]は、それぞれに集動機構を持ったマニピュレータを開発した。一方、Russell[157]、Graceら[158]、Hunterら[159, 160]、Araiら[161]、Kallioら[162]は、モータやボイスコイル、液圧など異なったアクチュエータを用いているが、マニピュレータの骨格としてはパラレル機構を選択している。Tanikawaら[163, 164]はさらにこれを2組セットとしてマニピュレータとグリッパを一体としたような圧電素子駆動の2本指パラレル機構を開発し、極めて複雑な物体操作が容易に実現できるようにしている。

(3) マニピュレーション要素機構の開発

グリッパなどのエンドイフェクタやそのためのアクチュエータ、部品を固定するためのジグや搬送するためのパレット、その他の周辺要素に関する研究である。

微細な対象物が把持できるグリッパの研究例は非常に多い[165, 166]。また電界を用いて微小物体を付着させるハンドリング工具も多く開発されている。中尾ら[167]は、単極型の電圧を印加できる工具を、今野ら[168]は電界を先端に集中させるために同軸双極構成にした電界工具を、古谷野ら[169]はさらに外部電極を対象物の接地に用いる構成にした同軸双極型電界工具をそれぞれ開発し、物体操作が可能であることを示している。また、中尾ら[167]、Zeschら[170]は真空吸着工具による大気下での物体操作を示している。この他に、液体の表面張力を用いた吸着工具[167, 171]や、それらの先端から微小物体を離脱させるための振動離脱に関する研究[167]が行なわれている。

微小部品を搬送するためのパーツフィーダに関する研究や[172, 173]、効率的に微小対象物に対して作業を行なうためのパレット[148]やマガジン[174]も開発されている。

この他に、接合のためのマニピュレータに組み込めるヒータの開発も行なわれている[175, 176]。

(4) 要素計測技術の開発

画像計測や力計測など、操作における情報を呈示したり自動制御するための基礎になる技術である。

1方向からの顕微鏡画像からの3次元視覚計測[177, 178, 179]や多面視による3次元視覚計測[180, 181]が実現されている。また、力センサの開発例は非常に多い[165, 182]。特殊な力検出方法として、弾性体の変形を視覚計測することにより力を求めるものも報告されている[183]。

一方、操作される対象物側でなく、操作者側を計測する研究もある。操作者が操縦デバイスに加えている力やその向きを非接触測定する方法[184]、知的支援のために操作者の顔の向きを計測する方法[185]、操作者の加えている力をジョイスティック情報として検出する方法[147]などである。

(5) 要素制御技術の開発

視覚制御、力制御など、計測結果に基づいてマニピュレータの動きを制御したり、軌道計画などの知的な動作を生成する制御技術に関するものである。

顕微鏡画像に基づいた視覚制御[186, 187]、高感度力センサに基づいた操作力の制御[188]、視覚と力の両方の情報を用いた統合制御[189, 180, 190]などが報告さ

れている。

よりインテリジェントな領域を意識した研究としては移動微細作業ロボットの軌道計画 [191] や微小世界特有の付着状態の遷移に基づいた作業設計の考察 [192] などが行なわれている。

(6) 操作支援システムの開発

操作者への画像や作業に必要な数値などの情報提示、操作者に自然な情報入力方法の開発などである。

情報表示に関するものとして、仮想現実感の手法を用いて微小世界の様子を表現するもの [193]、机に埋め込んだディスプレイに顕微鏡画像を表示し、あたかも操作者が直接作業をしているかのように感じられるようにしたもの [184]、複数の焦点面の画像を左右の目に別々に呈示して光学顕微鏡の焦点深度の問題の解決を図ったもの [194, 178]、作業の主要な画像と操作情報などを圧縮伝送し、遠隔地からでもリアルな映像を見ながら作業ができるようにしたもの [195] などがある。

情報の入力の方に関しては、単にグラフィカルインターフェースを工夫して操作しやすくするもの [196] の他、抽象的な作業状態の入力だけで半自動作業を行なうもの [197]、操作者の意図を読みとって円滑で的確な操作を行なう方法 [198] などが研究されている。また、自分の居場所を見失わずに広い範囲でのいくつかの狭い作業領域に容易に到達できるような画像ナビゲーションシステムも開発されている [199, 200]。

(7) 要素物理現象の解明

付着や帯電など微小世界で作業をする上で問題になる独特の物理現象を扱う研究である。

従来主に粉体力学分野における付着力の理論がロボットの分野でも微小な対象物を扱う際に重要な役割を果たすことを指摘した研究 [201, 202] の他、実際に表面粗さの効果調べたもの [203]、表面粗さが酸化膜に覆われた金属部品の静電力に現す効果を調べて簡易理論式を導いたもの [204]、大気下での表面の導電性や粗さの影響を調べた研究 [205] などがある。

また、実際に微小物体操作システムを用いている際に問題になる現象を調べた研究としては、古谷野らの $10\mu\text{m}$ オーダの酸化膜で覆われた金属部品に対する対向面積の効果調べた研究 [120, 206]、齊藤らの $1\mu\text{m}$ の誘電体球の付着力の経時変化を

調べた研究 [121, 207] などがある。微小物体を組立・接合した部分の接合メカニズムを調べた報告 [208, 209] もある。

(8) 要素作業の実現

実際に、微小物体の把持・離脱、精密位置決め、接合などの作業を実施したり、その上での動作の工夫を扱った研究である。

微小世界では付着力が働くという事情から離脱時に確実に物体を工具から切り放すための手法を扱った研究が多い。1本の付着工具の回転動作による離脱 [142] や、付着力の異なる2本の工具を用いた離脱 [142, 210] の他、他の物体への擦り付けによる離脱などの方法 [170] が提案されている。特殊な特徴を示す物体にしか応用できない方法であるが、自発的に付着力が増していく性質を示す誘電体球に対して、工具の動きを使い分けることで破壊する界面を選択し、付着・離脱の操作を実現する方法も研究されている [211, 212, 121]。

物体を精密に位置決めする方法としては、物体を基板上を滑らせながら押して行き、徐々に位置合わせしていく方法 [188]、精度良く離脱できるように工具軌道を最適化し、位置合わせ作業を必要とせずに直接目的の位置に置く方法 [212, 121] などが研究されている。

物体の接合のための研究も多く、微小物体のハンダ付け [208, 213, 214, 215]、溶接 [176, 209]、接着 [216]、レーザーマニピュレーションしている対象物の接合 [217, 218] が報告されている。

(9) 作業の設計と統合

目標を実現するために作業を分析したり、作業を実現するための技術要素構成論を論じる研究である。

目標作業を実現するために様々な策略を練る作業は、世の中に多くの模範があり、具体的な製品を生産することが目的の企業では当たり前に行なわれている。通常は非公開で知ることにはできないが、高度に完成された系である腕時計の生産ラインにおける技術の紹介 [219] や、人手を自動化するための手法に関する報告例 [128] などが散見できる。

基礎研究の現場でもこの分野に分類できる研究が徐々に現れ始めた。将来の具体的なデバイス像を想定し、いかにこれを自動生産し産業化するかを研究した例として、光送受信器 [220]、表面実装光学系 [221]、マイクロ超音波モータのステータ

[222] を実現するためのプロセスが検討され、実際に作業が試行されている。また、マイクロ部品を組み立てる際にはXYZの簡単な動きだけで目的の作業ができるように部品相互の向きを初めから考慮することの重要性を指摘し、実際に $4\mu\text{m}$ 角の角穴に角柱を挿入する作業を並進自由度だけで実現した研究もある[100]。

この分野に分類できる研究では、構成する個々の作業要素や機構が独自の高度な技術であるかどうかは重要でなく、作業全体の設計とその統合の完璧さを追求している。

1.3.3 研究課題から見た微小物体操作技術の課題と本研究の位置づけ

微小物体操作技術に関する研究の構造的性

以上に概観してきた研究課題は、図1.3.2に示したようにいくつかの階層構造を形成している。まず微小物体操作技術研究は大きく、設計・統合レベルと要素レベルに分けられる。

要素レベルはさらに要素作業レベル、要素技術レベル、要素科学レベルからなる。要素技術レベルは研究例が圧倒的に多く、研究者の層が厚い領域である。これは研究者側のシーズと直結している部分で、従来の大きなロボットや情報システム、電子デバイス等を扱っていた研究者がそのまま対象を変更して流入してきたからである。基本的には他と共通の技術がそのまま、あるいは若干修正すれば微小物体操作技術に適用できる。実際には個々の要素技術は上位のシステムの設計・統合とは切り離して考えられず、システムをどう実現するかで、いくつかの要素技術間は切り放せないものとして研究開発される。要素作業レベルは要素技術が整って初めて研究が可能になるので、1995年頃からようやく報告されるようになったばかりである。しかし、要素作業の実現のためには必ずしもシステムとして統合されていなくても良いから、システムが不可欠ではない。要素科学レベルについて、例えば付着の理論は初めからスケール則を考慮して問題にされてはいたが、当初は過去の他分野の知見を集めただけの博物学的サーベイが行なわれていただけであった。要素作業を実際に進める上で問題が実際に強く認識されるようになり、ごく最近になって現実系の力学が議論されるようになった。また、この知見はハンドリング工具等の要素機構の設計上重要である。

設計・統合レベルは、本論文では「システムの設計と統合」、「作業の設計と統合」

に分けた。「作業の設計と統合」とは、ニーズや具体的な応用と直結する部分である。基本的にはこれが最高層である。これまでこのような課題が存在することを明確に示した議論はほとんどされていない。多くの場合、ニーズを考察した後、ここを通り過ぎて、すぐにシステムの設計論の話に移る。本論文でシステムと分けて、この「作業の設計と統合」という分野を設けたのは、ある微小物体操作作業を実現するために、必ずしも何かの統合されたシステムが不可欠とは限らないからである。システムは作業実現のひとつの手段に過ぎない。一方、「システムの設計と統合」は、要素技術をどのようにとりまとめて必要機能を満たす実体を実現するかを考える課題で、比較的早くから意識的に研究されている[146, 139]。

ここで、「システムの設計と統合」、「作業の設計と統合」の上下関係についてコメントしておく必要がある。どのような微小物体操作技術を実現しようとするかでこの相対関係は変化する。ある工業製品の組立など、限定された作業に特化すると、作業設計こそが重要で、特に高度なマニピュレーションシステムを必要としないで実現することもあり得る[219, 220, 221]。逆に組立対象の汎用性を重視すると、システムの方が主役になる[146, 150]。これは対象とする作業をシステムの設計・統合により限定し、その枠の中だけでの作業だけを考えることになるからである(このことを図1.3.2のシステムの設計・統合と作業の設計・統合を結ぶ薄い線で示した)。しかし、基本的にはシステムは作業設計・統合の手段でしかない。

従来の研究の問題点

従来の研究を見ると、図1.3.2の左半分のシステムとその要素技術に関する研究は盛んである。それに対して右半分の現実の作業の実現に関する研究はまだ始まったばかりである。特に、ある具体的な機能を持った対象物を微小物体操作によって実現するために作業を設計し、製作した構造物の評価や応用まで至る一つの完結した作業を実現した例はここに挙げた数例しかない。システムが作業の実現を目標として盛んに開発されているにも関わらず、実際に作業を遂行するために何が必要かは、ほとんど注目されていないのである。

微小物体操作システムを開発する目的として、大量生産を挙げる例は少ない。Scientific Instrumentation, すなわち、基礎研究レベルの特殊機能素子や実験サンプル、マイクロマシンなどの試作・開発のための単品作業を目的とする場合がほとんどである。しかし、いずれの研究も特徴的な作業の一部分を切り出したデモンストラクションによって操作の実現性を確認し、その結果から可能なのは自明である。

と主張するにとどまり、肝心の実際の作業でそれを応用して新しい価値ある知見を得るに至った例は知る限りない。その一方で、実際のマイクロマシンや特殊機能素子の基礎研究開発はこれらのシステム開発とは別のところで着々と進められている。例えばマイクロマシン分野では、微小物体操作技術を使わずに人間に組立てできるように、製作対象物の設計を見直すことが一つの成功のポイントとなっている[223, 224, 225]。

このようなすれ違いが生じている理由には二つあるように思われる。一つは、微小世界については、まだ一連の目的の作業を遂行するために必要な技術や知識の体系が整っておらず、本質的に作業の実現まで到達することが難しいことが挙げられる。例えば、多くの研究が重要な課題として挙げているように、微小物体の付着のメカニズムがよくわかっていない。また、目に見えない微小物体のマクロ世界とのやり取り一つとっても、どうやって初めに部品を置いておくべきか、どうやって完成した構造物を取り出すべきかという些細なことも明確な方法論があるわけではない。もう一つ、古くから開発されている生物作用のマニピュレータが生物研究者側から出てきた技術であるのと違って、現在進められている微小物体操作技術がシース側から出てきた研究であるという要因もあるように思われる。システムの開発という点にばかり力点が置かれ、実際の利用に不可欠な作業の設計・統合の問題が真剣に考察されていなかったように思われる。

Instrumentation という技術は、必要な機械を設計製作することという狭い意味の言葉ではなく、欲している知識を獲得するために必要なすべての工学的手法を指すものはずである。Instrumentation において実際に求められるのは、システムとしての完成度や高度さや新規性ではなく、一連の意味ある作業を最後までやり遂げることができる完備さである。そのために確立すべきなのは、材料の準備から製品の使用までに必要な諸技術からなる、第三者にも利用可能な総合技術体系のほうである。ひとたびこの技術体系が実際に新たな知識を獲得するためのツールとして利用されれば、利用して初めて発せられる要求も新たに数多く集まり、実質的な開発のループがここで初めて回り始めるのである。

現在の微小物体操作技術に求められているのは、Instrumentation にまでまずは完成することである。

微小物体操作技術における本研究の位置づけ

本研究は、「フォトリソグラフィ構造物研究」の現場において、1個1個のマイクロメートルオーダーの誘電体の球を3次元的に配列するという、一つの作業が必要とされていることを明らかにし、その設計と統合を行なうものである。これまでに1個1個のマイクロメートルオーダーの誘電体の球を3次元的に配列する研究は知る限りでは行われていないので、本研究がこの作業の設計・統合をする初めての研究である。さらに、物理学研究に必要な微小物体操作作業、と視野を拡げてみても、工学的にその作業の設計と統合を行なう最初の研究と思われる。その推進の上で重要なのは、個々の要素の独自性や新規性やシステムとして統合されていることではなく、作業遂行に必要な要素技術や知識が一通りすべて揃っていることである。本研究では、微小球の機械的配列のための作業の設計を行ない、利用可能なシステムや技術はそのまま利用し、足りない要素については順次確立していく。

1.3.4 実現形態から見た微小物体操作技術の現状

次に、実現形態から見た微小物体操作技術研究の構造的な整理をする。微小物体操作技術は、図1.3.3に示すように、まずは非接触か接触か、どのような操作手段を用いるか、どのような観察手段を用いるかで大別できる。

非接触マニピュレーションには、様々なエネルギーが用いられる。光(レーザーマニピュレーション)[226]、超音波[227]、電界[228, 229]、磁界[230]などがあり、極端な例として、何もしないというセルフアセンブリ[231, 232, 233]がある。しかし、本研究で興味があるのは、1個1個を操作する手法である。そうなるこの中で対象となるのはレーザーマニピュレーションに限られる。他の非接触手法は1個1個ではなくて無数の微小物体を一度に扱うものである。また、レーザーマニピュレーションの観察手段は実質的には光学顕微鏡に限定される。

接触マニピュレーションは、ハンドリング工具で機械的につまんだり付着させて操作するもので、どのような観察手段を用いるかで分類できる。光学顕微鏡観察下・電子顕微鏡観察下のマニピュレーションでは顕微鏡下にマニピュレータを配置して行なうが、走査プローブ顕微鏡による方法は顕微鏡を観察と操作の手段に兼用する。

以下にそれぞれの現状を整理する。

列できると思われる。

しかしながら、光学顕微鏡の限界によりこれより微小な物体を扱うことは現実には困難である。また、光学顕微鏡は焦点深度が浅いので、3次元作業には何かの工夫が必要である。

(3) 走査電子顕微鏡観察下接触マニピュレーション

主な作業例には、Johanssonら [175, 208] による数 $100\mu\text{m}$ の微小物体の共晶接合による組立作業、畑村ら [147, 148] や Fraunhofer 研究所のグループ [143] による数 $100\mu\text{m}$ の微小物体の勘合組立作業がある。また、Koyanoら [142, 120] は、それより微小な数 $10\mu\text{m}$ の金属球が把持・離脱できることを、齊藤ら [211, 212, 121] はさらに微小な $2\mu\text{m}$ の高分子球が把持・離脱できることを示している。

現在、 $2\mu\text{m}$ 以上の微小球については、誘電体も含めて1個1個を操作できることまでわかっている。顕微鏡の分解能ははるかに高いのでそれよりも微小な対象物の操作や、焦点深度が深いのでそれらを3次元的に配列することも可能と考えられているが、これまでに確認されていない。

懸念される問題点としては、真空中で、電子ビームが照射されているという極めて特殊な環境であるので、力学的に微小物体操作や配列が困難であるかもしれない。従って、まずこの環境が微小物体操作の場として利用可能であるかどうかを明らかにすることがこれからの課題である。

(4) 走査プローブ顕微鏡による接触マニピュレーション

これまでの主な研究としては、走査トンネル顕微鏡 (STM) による原子の操作、分子の操作、 C_{60} の操作などが報告されている [130]。科学の現場で原子を並べて電子を閉じ込める檻構造などが作られて、電子の波動関数の人工制御の可能性やその有効性が調べられている。原子間力顕微鏡 (AFM) を用いた物体操作研究としては、 10nm 程度のクラスタ操作 [131, 132] や、直径 20nm 程度のウイルス操作 [133] が報告されている。特に AFM は入手しやすく操作も手軽なので、ハンドリング手段としても関心が高まり作業例が増えつつある。

現在、 100nm 程度以下の微小球を1個1個操作することが可能である。また、AFM を用いる場合には、真空中、大気中、液中、いずれの環境でも動作可能である。

この方法の大きな問題点としては、作業性がある。観察のためのプローブそのものを操作のための工具として代用するので、観察・操作が同時には実施できず、作業の成否が実時間ではわからない。微小物体の付着メカニズムは未解明で、有効な付着制御技術があるわけではない。そのため、本質的に試行錯誤に頼ってハンドリングせざるを得ない。これを実時間性の欠如した状況で実現せねばならないのである。また、観察時には対象物を移動させないで表面をなぞり、操作時にはカンチレバーを破壊することなく対象物を移動させねばならない。一つのカンチレバーでこの両方の作業を実現することを考えると、適切な付着力を持った対象物と基板の組み合わせを注意深く選ばねばならない。ちなみに、この分野の論文では一般に粒子を「押して移動する」と表現されているが、実際は付着力で引きずっていると推定される。また、走査プローブ顕微鏡は、基本的に極めて凹凸の小さな2次元的な対象物を観察するための技術である。そのために3次元構造物組立のような立体的な作業やできたものの観察は困難である。また、通常は走査できる範囲は狭いので、 100nm 以上の物体の操作や広い範囲での大規模作業は困難である。

1.3.5 実現形態から見た微小物体操作技術の課題と本研究の位置づけ

実現形態から見た微小物体操作技術のそれぞれの特徴を表 1.3.1 に整理した。対象物寸法が $5\mu\text{m}$ 程度以上の場合には光学顕微鏡観察下での接触マニピュレーションが様々な点から有効と思われる。本研究で目的としている、サブ μm も含めたマイクロメートルオーダーの誘電体の球を1個1個3次元的に配列する作業を実現するには、走査電子顕微鏡 (SEM) 観察下マニピュレーションの方が適していると思われる。SEM の場合の対象物寸法の下限がどこに存在するかは明らかではないが、 $1.5 \sim 5\text{nm}$ 程度という分解能から考えると 10nm あたりまでは期待できそうに思われる。SEM の問題点は、これまでの作業例が少なく、実際に利用可能かどうか明らかでないことである。特に環境の特殊性から、様々な問題が生じることも容易に想像できる。

SEM 下での微小物体操作の可能性は、すでに古谷野・齊藤の先駆的な研究により、ある程度のことが明らかになっている。

古谷野は、微細作業の分析に基づいて、システム構成や基礎現象理解に必要な次の3つの課題を明らかにした [120]。第一に、顕微鏡視野内で対象物の移動・回転

表1.3.1 実現形態から見た各種微小物体操作手法の特徴

操作手法	微小性	3次元性	発生力	環境	異方性 粒子
レーザーマニピュレーション	△ 1~10 μ m	○	×	△	△
光学顕微鏡観察下 接触マニピュレーション	△ 1~10 μ m	○	◎	◎	◎
走査電子顕微鏡観察下 接触マニピュレーション	○ 100nm ~10 μ m	◎	◎	×	○
走査プローブ顕微鏡による 接触マニピュレーション	◎ 原子~ 100nm	×	△	◎	×

が必要であることを示した。そのために、集動・集視構成を持った電子顕微鏡下微細作業システムを初めて構築した。第二に、微小世界の力学に基づいた把持・離脱手法の確立が必要であることを示した。そのために、数10 μ mの物体の電顕下での付着力学を実験・理論で解明し、工具と向き合う面積が付着力に大きな影響を与えることを明らかにした。さらに対向面積制御による付着・離脱手法を提案し、実験的に有効性を実証した。第三に、人間世界と微小世界の不整合を吸収する仕組みが必要であることを指摘し、作業パッケージの概念を提案した。古谷野は以上のように、「微細作業」という作業について、それが対象とする領域や工学的な課題などを整理に最初し、後に続く研究者に多くの指針を提示した。しかしながら、作業の最小要素である1個の物体の把持・離脱を示しただけで、複数の物体で構造物を組み立てられる可能性を示さなかった。また、作業パッケージも抽象的な提案にとどまった。古谷野の扱った対象物は、将来の実装工学に重要と思われる20~30 μ mの酸化膜に覆われた金属球に限定されており、より微小な対象物操作の可能性は示さなかった。古谷野の離脱手法は回転を伴ったり一時的に2本の工具を両方とも対象物に接触させる複雑な動作を伴うので、特に回転の機械要素の精度を考えると10 μ m以上の物体にしか現実には適用できないと考えられる[180]。また、誘電体の操作については、可能性を考察するにとどまった。

一方、齊藤は、2 μ mの誘電体微小球を対象を限定し、回転自由度を用いずに付着・離脱する手法を確立した[121]。それに先だって、この環境下でのこの対象物に関しては付着力の顕著な経時変化が起こることを発見し、これを静電力とクリープによる効果と説明した。次に、この性質に基づいて、工具で対象物に加える力の向きを制御することで、希望する接触界面だけを破壊して付着・離脱する手法を提案した。実際に、十分な精度で対象物の位置計測と軌道生成が可能であれば、2 μ mの誘電体微小球を試行錯誤に基づくことなく、高い確度・精度で自動操作できることを示した。しかしながら、齊藤も作業の最小要素である1個の物体の把持・離脱を示しただけで、複数の物体で構造物を組み立てられる可能性を示さなかった。また、対象物は2 μ mの誘電体微小球に限定し、それ以上やそれ以下の対象物操作の可能性や指針を示さなかった。

これに対して、本研究では、2 μ m以下の誘電体微小球がSEM下で扱えるかどうか、どの程度微小なものまで操作可能かを明らかにする。また、多数のそのような物体を2次的に配列したり、3次的に積み上げることが可能かどうかを調べる。さらに、そのような微小物体操作技術を利用して1個1個のマイクロメートル

オーダの誘電体微小球を3次的に配列するという一連の作業を遂行するには、どのような要素技術や知識が必要かを明らかにし、それを構築・解明する。

こうして、これまで利用可能かどうかわからなかったSEM観察下接触マニピュレーション手法が、フォトニック構造物研究に実際に有効な研究手法であることを証明する。

1.4 本研究の目的

本研究の目的は以下の通りである。

マイクロメートルオーダの誘電体の微小球を1個1個機械的に操作して3次的に配列する手法を確立し、この手法がフォトニック構造物の研究において実際に有効な研究手法であることを証明する。

1.5 本研究の方法

1.5.1 本研究の構造

本研究は、フォトニック構造物研究に必要とされる、1個1個のマイクロメートルオーダの誘電体微小球を機械的に3次元配列する手法を確立することと、その手法が実際にフォトニック構造物研究において有効であることを証明することの二つの要素から成り立つ。

1.5.2 フォトニック構造物研究に必要な微小物体操作技術の確立

本研究ではまず、フォトニック構造物を設計してから、微小物体操作によってそれを設計通りに製作し、その構造物の光学特性を評価する一連の作業を実現するために、欠けている技術の構築や知識の獲得を行なう。そのために、一連の作業の分析に基づいて作業手順を設計すること、および、実際の微小物体操作作業を試行することにより、要素となる技術や知識について現在獲得されている要素と、本研究で新たに開発するべき要素を明確にする。必要な知識を整理したり要素技術を確立する上では、類似の作業が必要とされた場合にはできる限り広く適用できるように、表面的な事象にとどまらず、物理的な原理にまで踏み込んで普遍的な知識を獲得することを主眼に置くこととする。

1.5.3 フォトニック構造物研究における有効性の証明

実際にこれらの要素を統合して、設計通りのフォトニック構造物を製作し、光学特性の評価により、フォトニック構造物に関する新たな知見を得る。具体的にはまず、これまでに数値計算によって特性のわかっている構造物を製作し、特性を調べ、製作した構造物が予想通りのフォトニック構造物特有の特性を実際に示すことを証明する。このことにより、本手法で製作した構造物により実験的に得られる様々な光学特性がフォトニック構造物と光の作用によって生じるものであることが保証できる。次に、これまで理論的にも実験的にも特性が調べられていない構造物を製作し、フォトニック構造物特有の特異な特性が観測できるかどうかを調べる。

1.6 本研究の工学研究としての意義と特徴

本研究は、工学研究としての確立されている型にあまりうまく適合していないので、どのような意義があるのか見出しにくいかもしれない。新たなマニピュレーションシステムの構築を目指すわけでもないし、新たな光デバイス製作を目指すわけでもないからである。

しかし、研究手法の確立を目指す点、および、応用形態の見込みを持って重要な基礎研究領域を特定している点で、工学的観点からの研究である。

研究手法の確立を目指す点での工学研究としての意義

この点において、本研究が物理研究でなくて工学研究であることを示すのは容易である。

物理研究は目指す実験サンプルが沢山の試行の後に偶然にでも1個できればよい。しかし本研究は、誰にでも同じ研究手法が利用可能なように、似た環境を構築する上での研究計画の道筋を与え、その環境において必要な知識を与え、同じ技術が実現できるように、再利用可能な普遍的な知見を与えることを目的としている。このことが本研究が工学研究たるゆえんである。

また、それによって、本論文は以下の特徴を有している。走査型電子顕微鏡下でのマイクロメートルオーダの微小物体操作において遭遇しうる問題、そのメカニズム、考え方、実際の対処の仕方の例を実験及び調査に基づいて網羅している。それぞれの場合によって重要な問題は異なるであろうが、だいたいここに記述されている知識があれば対処の糸口はつかめるはずである。また、実際には光学研究に限定

して進めているので必ずしもすべての場合を尽くしているわけではないが、なるべく普遍的な議論を展開するように心がけた。

Scientific Instrumentation という言葉は、応用先や存在意義のありかを模索し、他の先端分野を目ざとく探してはよりすがらうとする、昨今のロボット工学や機械工学全般で軽々しく用いられる言葉であるが、本研究では本当の Scientific Instrumentation とはどのようなことかを示してみたい。

応用形態の見込みを持って重要な基礎研究領域を特定している点での工学研究としての意義

工学の役割は、一般に物理現象の具象化とそれをより効率よく再現性良く発現するための最適化である。その前提として物理的描像が得られている必要がある。

本研究は、工学的に実現されてきた種々の周波数領域でのそれぞれの電磁波利用技術から普遍的特徴を抽出することにより、デバイスの欠落している領域を指摘し、どういう系の物理が明らかにされるべきか、工学側から注文を付けるものである。具体的には、これまで物理学研究では扱われることのなかった、少数の散乱体からなる3次元有限フォトニック構造物の重要性に着目し、そこでのフォトン挙動を知ることが重要と主張し、その研究手法を確立することを本研究の目的としている。本研究は、視野に入れている時間スケールが普通より大きな工学的研究である。

1.7 本論文の構成

以上、第1章では、電磁波を人間が応用する上で今後の重要な課題であるフォトニック構造物に関する研究の現状、および、その研究の基礎となる微小物体操作技術に関する研究の現状を述べた。本研究の目的を、マイクロメートルオーダーの誘電体微小球を1個1個機械的に3次元配列する手法がフォトニック構造物研究に有効であることを証明することと定め、そのための方法について概説し、本研究の意義について整理した。これ以降の本論文の構成を図1.7.1に示す。

第2章では、1個1個の微小球を機械的に配列する作業を分析し、手法の確立に必要な知識や技術を明らかにする。第2章の結果を個々に詳細に議論するのが第3~6章である。

第3章では、微小球配列のためのシステムの設計手法を明らかにする。

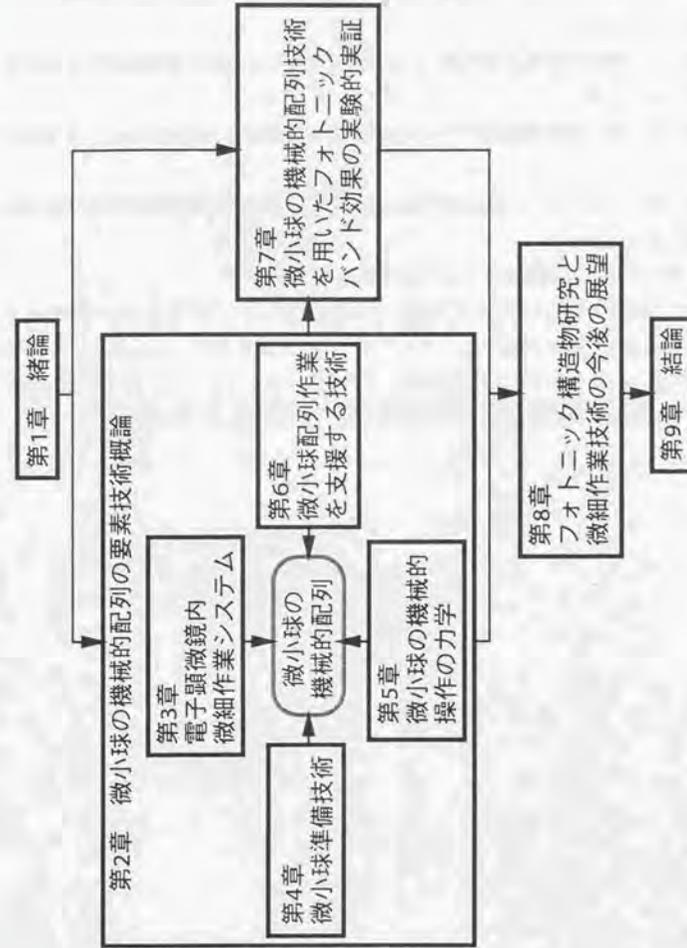


図1.7.1 本論文の構成

第4章では、配列に先立って微小球をどう準備すればよいかを明らかにする。
第5章では、微小球の力学を理論的・実験的に議論し、操作にあたって検討すべきことを明らかにする。
第6章では、微小球配列作業を遂行する時に必要ないくつかの周辺技術とその有効性を明らかにする。
第7章では、微小球配列技術がフォトニック構造物研究に有効であることを証明する。
第8章では、フォトニック構造物研究と微細作業技術の将来の展開の可能性について考察する。
最後に第9章では本研究で得られた知見をまとめる。

本論文は同様の作業を行ないたいという研究者が現れたときになるべく効率よく経験や知識を伝えられるように、ハンドブック的に技術要素ごとに整理してみた。したがって、必ずしもすべての項目がシリアルには並んでおらず、後方参照も頻繁に使用せざるを得ない。

第2章

微小球の機械的配列の要素技術概論

本研究の目的は、あることを解明したいという実験の計画に基づいてフォトニック構造物を設計し、微小物体操作によってフォトニック構造物を設計通りに製作し、製作したフォトニック構造物の光学特性を評価する、という一連の作業を実現する手法を確立することである。

本章では、そのために、一連の作業を分析し、どのように作業を進めるかの手順を計画（設計）し、現在の技術で可能な要素と、本研究で新たに開発するべき要素を明確にする。

2.1 微小物体操作技術に基づいたフォトニック構造物研究における作業の分析

2.1.1 作業に要求されること

作業に要求されることを整理してみると以下ようになる。

フォトニック構造物を設計通りに製作するための要求

- マイクロメートルオーダー ($0.1 \sim 10 \mu\text{m}$) の物体が扱えること。
- 設計通りの屈折率を持った誘電体材料が扱えること。導電性を持たせるためにコーティングを行うなどの操作は、物性を著しく変化させるので許容できない。
- 設計通りの大きさを持った球が扱えること。
- 1個1個の物体が扱えること。
- 設計通りに物体を3次元配列できること。ただし、本研究では密着配列だけを考えることとする。もちろん、球どうしが互いに接していなくて、空中に浮いているような位置関係のものが実現できれば可能な実験の幅が広がるであろうが、第8章にて述べるように、密着配列を基礎にして球の構造を工夫することでほとんどのことは可能になる。また、具体的な配列の仕方については結晶学で詳しく調べられている。本研究ではこの中でも特に単純な、体心立方格子 (bcc)、面心立方格子 (fcc)、六方最密格子 (hcp)、ダイヤモンド格子、単純格子 (sc、または NaCl 型格子) などが互いに密着するように実現できれば良いこととする (図 2.1.1)。

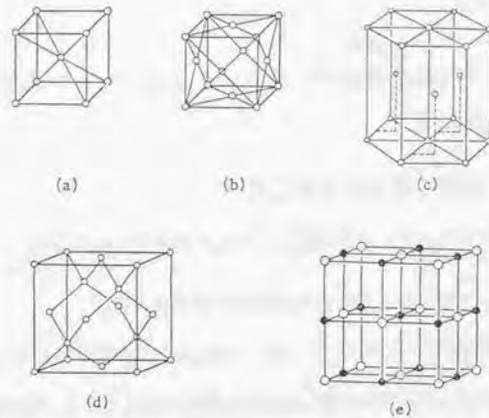


図2.1.1 代表的な格子構造
 (a) 体心立方構造(bcc)
 (b) 面心立方構造(fcc)
 (c) 六方最密構造(hcp)
 (d) ダイヤモンド型
 (e) NaCl型

フォトニック構造物の光学特性の評価や製作・評価の繰り返しのための要求

- 構造物だけの光学特性を調べられること。これはその微小構造物を異なる実験系に移動しても探し出してアクセスできること、および、構造物周囲の影響を除去して構造物だけによる特性の評価ができることを意味している。
- 基板が構造物の光学特性の評価に適していること。光学実験を行なうためには、微小球を配列する基板を通して光を照射したり検出したりすることになる。目的の波長の光に対して、吸収を示さず、あまり屈折率が高くなく、干渉による共鳴を持たないことが基板に求められる。
- 後で追加作業ができること。これは一度製作した後にも、球を追加したり、引き抜いて除去したり、移動したりできることを意味している。

2.1.2 作業に課される制約条件

また、必ずしも本質的でないが、本研究では課題が生じたときの解決方法の指針として、以下の制約条件を判断の際に考慮することにした。

- 通常の実験室環境で可能なこと。SEM 下のマニピュレーションシステムは現在では入手が困難な設備であるが、本研究ではこれに相当するものが入手できたら後は通常的环境で可能になり、第二、第三の特殊設備を必要としないで解決することを心がける。

2.2 フォトニック構造物研究のための微小物体操作プロセスの実現

2.2.1 基本方針と要求の実現のための課題

以上の要求を満たすために、次のような微小物体操作プロセスを採ることを基本方針とする。

人の操縦により、走査電子顕微鏡観察下にて、1本の針を用いて、接触マニピュレーションで作業を行う。

現在は、前節の要求をすべて満たす方法は存在しない。しかし、もっとも近道なのがこの方法であると考えた。それは、前節で見たようにすでにマイクロメートル

オーダの物体の操作が可能と思われる結果が得られていること、観察装置の焦点深度が深く、3次元構造物の配列に適切と思われること、という理由によっている。特殊なハンドリング工具を専用に開発するような方法もあるであろうが、通常の実験室において、SEMとその中で相対移動できるステージさえ入手できれば作業が可能になるように、すでに有効性が確認されている簡単な1本の針状工具での作業を考える。また、まずは一連の作業が実際に実現できるようにすることが重要であるので、作業の自動化なども目標としない。

一方で、この方針を採ったことにより、それぞれの必要機能や制約条件に対応した次のような様々な課題が生じ、本研究ではこれを解決せねばならない。

- マイクロメートルオーダの誘電体の球が1個1個操作できるか、
- 設計通りの仕様の球が入手できるか、
- 設計通りに3次元密着配列できるか、
- 光学特性の評価に適した基板上に配列できるか、
- 光学評価の時に構造物にアクセスできるか、
- 構造物の部分だけの光学特性を評価できるか、
- 後で構造物に対して追加作業ができるか、
- すべての操作が一般的な実験室環境で実現できるか、

2.2.2 本研究における解決の方法

上記の各課題を本研究では次のように解決する。

マイクロメートルオーダの誘電体の球が1個1個操作できるか

すでに入手可能なマニピュレータを使用し、システムの開発そのものは研究課題としない。マイクロメートルオーダ、すなわち、 $0.1 \sim 10 \mu\text{m}$ の範囲のすべてが操作可能かどうかを検討し、限界を与える物理現象とその限界を取り除くための指針を明らかにする。また、微小物体の力学を検討し、操作可能な条件や操作を可能にする方法を明らかにする。

設計通りの仕様の球が入手できるか

すでに商業的に入手可能な微小球を利用することにする。これを基板上のある程度の範囲に1個1個がばらばらになるように散布することにより材料を供給することとし、そのための方法を確立する。必要な球の大きさの仕様を満たすためには、使用時に1個1個を評価し、選別(分級)することにする。

設計通りに3次元密着配列できるか

配列された構造物の形状を評価しつつ配置・調整することにする。構造物を製作する位置は基板上の都合の良い場所で構わないこととし、基板上の構造物の位置は設計対象としない。その代わりに、任意の位置に電顕内と光学系の両方で効率的にアクセスできる方法を確立することにより、都合の良い任意の場所に製作した構造物でもその後の光学評価ができることを保証する。また、本研究では密着配列の中でも、さらに基本的な配列である最密配列に限定し、まずこれが可能であること証明する。

光学特性の評価に適した基板上に配列できるか

一般に絶縁性である誘電体の帯電メカニズムを解明し、電顕内で使用可能な光学基板はどのようなものであればよいかを明らかにする。

光学評価の時に構造物にアクセスできるか

電顕内と光学系の両方で同じ構造物にアクセスできる方法を確立する。

構造物の部分だけの光学特性を評価できるか

微小球を散布した中の任意の場所に構造物を製作することを許容する代わりに、光学系側の構成の工夫により、特定の領域だけの特性を評価できることを要求する。

後で構造物に対して追加作業ができるか

接合作業を行わずに配列を遂行することを試みる。

- 形状評価をして個々の球の位置が設計通りであるかどうか確認しながら、配置・修正を繰り返す。
- 完成した構造物を電子顕微鏡から取り出す。
- 大気下の光学定盤上の光学実験系に試料を移動する。
- 構造物に光学系の焦点を合わせる。電顕内で製作した目に見えない微小構造物を、再び光学系で探し出して焦点を合わせることを可能にする手法を、まとめて微小構造物移動支援手法とここでは呼ぶ。
- 光学実験系では構造物の光学的評価や期待された特性が得られるかの特性評価を行なう。
- 実験の内容に応じてはここで再び電顕に戻って構造物を改変したりする。
- その結果に応じて光学実験の計画を進めたり修正したりし、再び一連の作業を繰り返す。

この作業はフォトニック結晶研究のために必要なものであるが、このプロセスには微小物体操作とそれによりできた構造物の利用の普遍的要素が、接合を除いては一通りすべて包含されている。他の作業のためにもここに現れる基本作業は利用可能である。

2.3 微小球の機械的配列のための要素技術

前節で決定した微小球の配列作業を実際に実現する上で、何を確立せねばならないか、何を明らかにせねばならないかを以下に整理する。

微細作業システム設計法

電顕観察下接触マニピュレーションを用いることにしたとはいえ、走査型電子顕微鏡にも様々な種類のものがあり、中にはここでの目的に適していないものもあるかもしれない。あるいはどのような機種についても共通に抱えている問題点や注意すべき点があるかもしれない。マニピュレータについては現在はまだ容易に入手できるわけではないが、例えば自分で設計・製作する上で、あるいは特別に製作を依頼する上で、どのようなことを考えてどのようなことに注意しなくてはいけないの

か、ということはこれまで明らかにされていない。本研究では、微細作業システムに関する知識を整理し、システムが有する限界とそれを支配する物理現象を理解し、微小球の配列のための電顕下微細作業システムの設計手法を明らかにする。

微小球準備技術

微細作業システムが入手できた次は、実験に用いる微小球を入手しなくてはならない。また、基板上にばらまいておくとはいえ、その後の作業に都合の良いばらまき方と都合の悪いばらまき方があるかもしれない。また、このような微小球は大きさや形状が目的に十分なほど揃っているかもしれないし、揃っていないかもしれない。揃っていない時には、自分に都合の良いものだけを選別しなくてはならない。本研究では、微小球に関する知識の整理、分散方法の確立、選別のための計測手法の確立を行なう。これは、Microscopy と呼ばれる顕微鏡利用技術においては、いわゆる“Preparation”として一つの重要な技術分野を構成している要素技術である。

機械的操作の力学知識

本研究では、誘電体微小球や絶縁性誘電体基板を電顕下で扱わねばならない。そのために、付着メカニズムや帯電メカニズムを理解する。結果論であるが、電顕観察下のマイクロメートルオーダーの誘電体微小球のハンドリングは比較的容易である。電顕にマニピュレータさえ入れれば、やりたいと思う作業は相当のことまでできる。ところが、材料や電子ビームの条件によって、微小球を拾うのが難しくなったり、あるいは針から離れてくれなくなったりする。このような事態に陥ると、急にそもそもどうしてそれまでは拾い上げることができていたのか、ということを理解し、何らかの理にかなった対策を講じなくてはならなくなる。これも結果論であるが、本研究では、どの材料のどの場合に付着力がどうなる、というハンドブック的な一覧表を完成させることはできなかった。しかしながら、本研究では、微小球の付着・離脱操作において問題が生じたときに、掘り所になる知識を整理し、また実際の現象が説明できない部分については系統的な実験を行ない、どのような要因を考えなければならぬか、目の前の作業はどうしてうまく行っていると思われるのか、を説明する。

作業支援技術

電顕で観察しながら並べるとはいえ、何も目印のない平滑な基板の上でまっすぐに並べると、それがまっすぐであることを確認することも難しいことである。基板上の都合の良い場所に微小球を配列するとはいえ、いざ光学実験をしようとしてサンプルを取り出したら、何しろ作った構造物は目に見えないほど小さいのであるから、その都合の良い場所がどこだったか見付け出すのは至難の業である。このように、作業を試みたら誰もが共通に問題を感じるということについて、どのような工夫が有効であるのか（それはまったく学術的ではないが）、実際にそれを適用した結果はどうであったかをいくつかの事例について説明する。

これらの諸要素技術が第3～6章にそれぞれ対応している。必ずしも各々が技術的に高度なものであったり学術的価値のあるものではなく、むしろいずれも普通は工学研究において省みられないような、些末な技術的課題である。しかし、これをすべて確立・解明して揃えない限り、マイクロメートルオーダーの誘電体の球を1個1個3次元的に配列する、というフォトニック構造物研究に必要な作業は実現できないのである。最後に第7章でこれら一連の作業を実際に行なった例を示す。

第3章

電子顕微鏡内微細作業システム

本研究では電子顕微鏡の開発もマニピュレータの開発も、また作業の自動化も行わない、ただ存在する要素で微細作業システムを構築し、テレオペレーションで作業を行なう。

本章では電子顕微鏡やマニピュレータの性能の一部は実験をもとに整理し、電顕内微小球3次元配列作業を行なうために必要なシステム構成法の考え方の指針を明らかにする。特に本研究の過程で新たに明らかになった作業環境の問題については、別に節を設けて詳述する。

3.1 走査型電子顕微鏡

3.1.1 走査型電子顕微鏡の原理

動作原理

物質にkVオーダーの電子ビームを照射すると2次電子や反射電子が発生する(図3.1.1)。2次電子はエネルギーが数eVしかないので、さらに加速して検出器まで導く必要がある。一方、反射電子は入射電子と同程度のエネルギーで後方散乱される電子であるので円環状検出器を対物レンズの下に置いておけば自動的に検出できる。一般には2次電子の方が電子ビームが照射された部分のしかも極表面層部だけから発生するため、高分解能観察には適している。

システム構成

図3.1.2に走査型電子顕微鏡の原理図を示す。電子ビームを走査し、一般には2次電子、場合によっては反射電子量を輝度として同期して表示する[235]。

分解能を決める要因

顕微鏡の最も重要な性能は分解能であるが、これは以下の3つの要因によって決まる。

- 電子ビームそのものの特性：電子銃と電子レンズ系の性能で決まる
- 外部磁場の影響
- 外部からの機械的振動の影響：特にマニピュレータの機構上・制御上の振動

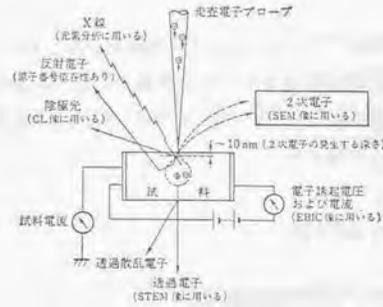


図3.1.1 入射電子による物体からの情報

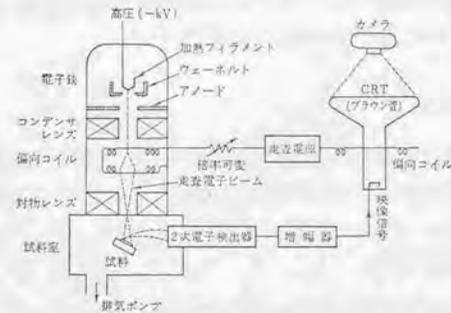


図3.1.2 走査型電子顕微鏡の原理

3.1.2 走査型電子顕微鏡の種類

様々なSEMが市販されているが、特性を考える上で着目すべき重要な要素は電子銃の形式、対物レンズの形式、真空度の3つである。

電子銃による分類

大きく分類すると熱電子放出型電子銃と電界放射型 (FE: Field Emission) 電子銃とに分類でき (図 3.1.3) [236]。両者の間には分解能や取り扱いの上で大きな隔りがある。市販品を選択する上では熱電子放出型の方は、さらにタングステン (W) フィラメントと6ホウ化ランタン (LaB₆) フィラメントに分けて考えるべきである。電界放射型にもさらに冷陰極電界放射型と熱電界放射型があり、それぞれに特徴がある。

W フィラメント：タングステン線をヘアピン状に折り曲げたもので、もつともありふれた安価な電子源である。分解能は3~5nm程度が期待できる。フィラメントの交換が50時間程度 (数日から1ヶ月に1回) ごとに必要である。その寿命の間も徐々にヘアピン先端が蒸発して細くなるので、輝度や分解能などの特性が刻々ドリフトする。

LaB₆ フィラメント：LaB₆単結晶をヒータに接合したもので、手軽に高輝度、高分解能が得られる。寿命は1000~2000時間 (年に1~2回交換) と長く、安定である。

冷陰極 FE：分解能を求めるならこれが最適である。通常レンズで1.5nm、インレンズ型対物レンズで0.5nmの分解能が得られる。高輝度 (W フィラメントの100~1000倍) で寿命は事実上、半永久的である。しかし、非常に不安定で10時間に1回はフラッシングをしてチップ先端を初期化しなくてはならない。ビーム電流を安定化する制御系は当然組み込まれているが、それでもフラッシング直後は数分の単位で輝度が低下し、安定時間はフラッシングから2~3時間経ってからの数時間だけである。また、電子銃部分には超高真空が必要であるのでベークングなどの維持作業は必要である。

熱 FE：分解能は冷陰極より若干落ちるが、電流が大きく安定している。描画装置や画像処理による自動マニピュレーション向きと思われる。しかし、電子源

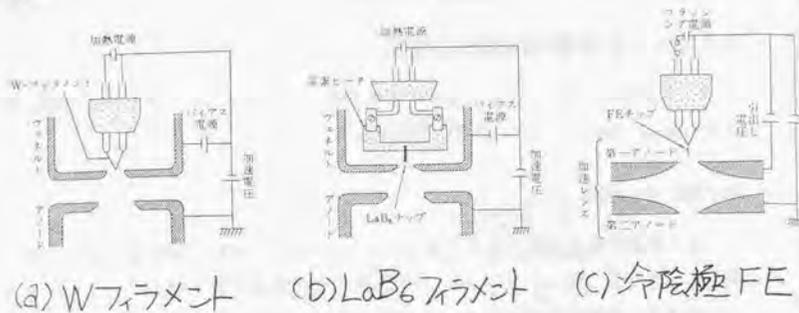


図3.1.3 各種電子銃の基本構成

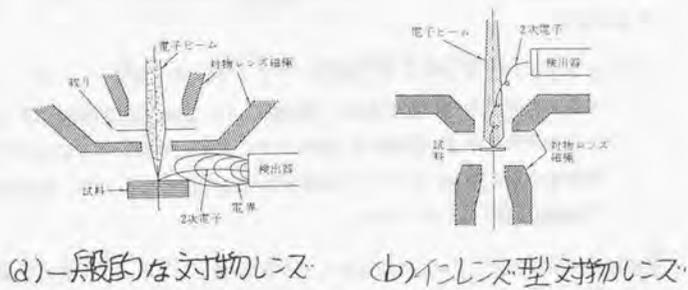


図3.1.4 各種電子レンズ系の基本構成

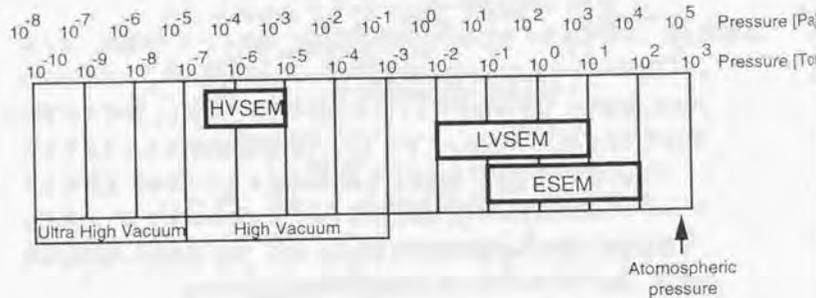


図3.1.5 各種真空度領域の走査型電子顕微鏡

を常に通電加熱し続けなければならないことや、寿命があることから維持の面で難点がある。

電子レンズ形式による分類

一般的なレンズとインレンズ型対物レンズの2種類が基本的であり、場合によってはその中間的な性格を持ったものも使用される。レンズの基本構成を図3.1.4に示す[236]。

一般的な対物レンズ：対物レンズの5～30mm程度下に試料を置く。この対物レンズ下端から対象物までの距離を作動距離、一般にWD (Working Distance) と呼び、SEM観察上極めて重要なパラメータである。対物レンズ下には広大なスペースがとれるので、大型試料やマニピュレータの設置に適している。

インレンズ型対物レンズ：強励磁した対物レンズの上下磁極の間にサンプルを側方から挿入する形式である。これは分解能を極限まで高める目的で製作されたもので、試料サイズは数mm角程度で、これを特別の試料ホルダに取り付けて観察する。冷陰極にこのレンズを組み合わせると0.5nmという原子解像に迫る分解能が達成できる。残念ながらマニピュレータの取り付けを考えるとインレンズはあまり現実的でなく、SEM観察下マニピュレーションの大きな特徴である立体的な作業のメリットも損なわれる。

真空度による分類

近年SEM技術で性能上特に大きな変化があったのは試料室真空度の多様化である。各社それぞれに独自の分類をしているが、ここでは真空度および原理上の差異に着目し、一般的なSEMである高真空SEM (HVSEM)、低真空SEM (LVSEM)、環境制御型SEM (ESEM) の3種類に分類する(図3.1.5)。

HVSEM：真空度： $1 \times 10^{-8} \sim 5 \times 10^{-7} Torr$ 。

もっとも一般的なSEMである。導電性のない材料を観察する場合、導電性コーティングが不可欠である。生物試料などは特殊な手法で乾燥してから観察する必要がある。2次電子を加速して捕集し観察信号とする。元素判別、表

面凹凸の定量計測などを目的とする場合には、反射電子も検出できるが、分解能は低下する。

LVSEM：真空度：0.01～2Torr.

NaturalSEM, Wet-SEM, LV-SEM など各社各様の呼び方をしている。真空度は目的に合わせて調節できるようになっている。一般には高真空ポンプも備えており、HVSEMとしても機能する。導電性のない材料もイオンによる中和機構が働くので観察でき、生物試料のような湿ったサンプルも観察できる。しかし、反射電子しか検出に用いることができないので分解能があまり良くない。また、検出器は対物レンズ直下に置くためWDがあまり小さくできない。一方、WDを大きくすると電子ビームがガスによる散乱で拡がり、分解能が急激に低下する。2次電子は捕集電界で放電が生じるために使用できない。

ESEM：真空度：0.1～20Torr[237].

導電性のない材料もイオンによる中和で観察できる。2次電子を低い電圧で加速して生じるイオン増倍を積極的に利用している。2次電子が利用できることで高分解能でイオン増倍により高感度検出が可能である。湿ったサンプルだけでなく液体そのものまで観察できる。しかし、これも電子ビームがガスによる散乱で拡がるので実用的なWDは5mmしかとれない。

第5章にて詳述するように特に本研究のマニピュレーションにおいては非導電性試料の帯電が重要な問題になる。したがって、LVSEMやESEMを使えば解決するように思われる。ところが本章で後に述べるように、実は電顕下マニピュレーションの大きな制約を与えているのは真空中や試料表面に浮遊したり付着している汚染物分子の析出である。実際、LVSEMの大きなメリットは無処理で試料を観察できることである反面、汚染物析出が激しいので手際よく観察作業を進めなければならない。このほかに、ガスにより電子ビームが散乱されて本質的に高い分解能が得にくいこと、検出器が対物レンズとマニピュレータの間にはいるので、WDが小さくできないことでさらに分解能を損なうことなど、多くの問題がある。残念ながらこれらのSEMは μm オーダの微小物体のハンドリングには現状では、本質的に役に立たないのである。ただし、生の生体試料を電顕下で解剖するなどのまったく新しい応用の展開はこれらのSEMによって今後急速に拡がるに違いない。

3.1.3 微小球機械的配列に必要な電子顕微鏡性能

基本的に必要な機能は、以下の2つである。

- 作業の様子を実時間で観察できること
- 物性、形状が重要なことから対象物に変形、変質、汚染を生じさせないこと

この必要機能をさらに詳細に整理すると以下のようになる。

作業に必要な分解能：分解能は対象物サイズの100～1000分の1程度は必要であろう。ビームそのものがこの程度の能力を持つことに加え、磁場による振動の影響も考慮が必要である。形状が球の場合に限っては、重心位置を見ていれば良いので多少分解能が不足していても作業できる場合はある。設計通りに配列できるかどうかは観察像の精度（寸法の対応、歪）に依存するのだから細かい像が分解できるだけでなく、絶対的な精度も求められる。

作業に必要な観察範囲：最大視野は対象物サイズの100～1000倍程度まで取れる必要がある。これは人間に全体のサンプルの中でどこを観察しているかを認識できるようにするためである。したがって観察範囲のダイナミックレンジ（倍率可変範囲）は $10^4 \sim 10^6$ も必要である。これは光学顕微鏡のズーム比がせいぜい10程度しかないことを考えると非常に大きな値であるが、これが実現可能なことがSEMの特徴である。

作業に必要な電子ビーム条件の変更：第5章で詳述するが、電子ビームの加速電圧によって対象物の帯電の様子はかなり自在に制御できる。つまり分解能などの性能を落とさずに、様々な加速電圧が実現できる必要がある。加速電圧を下げると一般に分解能が落ちてしまうので、帯電防止のために加速電圧を下げたときにも十分な分解能が実現できるよう、分解能は十分に余裕がある必要がある。

視野選択の自由度、視線選択の自由度：通常の電子顕微鏡は鏡筒が最も大きな構造物で固定されているので、視野や視線の移動はマニピュレータ側にその自由度を設け、対象物側を移動させる必要がある。

作業に必要な応答速度：本研究はすべてテレオペレーションで行なうので、操作者が視覚フィードバックを行なって適切な制御を行わなければならない。人

間にとって実時間であると認識できるためには10Hz以上の画像呈示速度が必要であろう。ビデオレート(30Hz)で十分な画質の画像が呈示できれば問題ない。

マニピュレータに適合する寸法：もちろんマニピュレータを十分納められる試料室スペースが必要である。特にマニピュレータを設置するためにはWD側も10mm程度以上必要である。

その他：現実的な時間(1時間以内)で排気できることが実際の作業では重要である。また、画像信号の記録を考えると、画像表示・処理・記録などの周辺ビデオ装置と信号形式が共通であることが必要である。

最後にマイクロメートルオーダの物体の操作という本研究の目的に照らし合わせて必要機能を整理すると、以下のようになる。

- 分解能、振動レベル $\leq 10\text{nm}$
- 倍率可変範囲 $\sim 10^5$
- 加速電圧：数100V \sim 数10kV
- ビデオ出力可能
- 高速走査でノイズを低減する画像積算機能
- インレンズ型でない比較的大きな試料室サイズ
- 液体窒素トラップによる高速排気

3.1.4 微小球機械的配列作業のための電子顕微鏡の選択

本研究では、以上の必要機能を満足する走査型電子顕微鏡として、高真空型の冷陰極型FE-SEMで通常のレンズ形式を持つものを選択し、必要なオプションを揃えた。

本研究で用いるSEMの仕様(日立, S-4200)

分解能：1.6nm($V_{acc} = 15\text{kV}$, $WD = 5\text{mm}$), 5.0nm($V_{acc} = 1\text{kV}$, $WD = 5\text{mm}$)
ビデオレートでは10nm程度

倍率： $\times 20 \sim \times 500,000$
(70段階, 2.5×10^4 の倍率可変ダイナミックレンジ)

加速電圧：0.5 \sim 30kV(100V単位で設定可能)

画像信号：どのような走査速度の時にも常にNTSC信号として出力。画像積算機能も付属

試料室サイズ：180 \times 180 \times 180mm

観察可能WD：5 \sim 40mm

液体窒素トラップ

増設したもの フルレンジ真空計(Balzers, PKR250)： $4 \times 10^{-9} \sim 760\text{Torr}$
アンチコンタミトラップ：対物レンズと試料の間に挿入して真空度向上
反射電子検出器、3次元画像解析装置(日立, RD500)：垂直分解能5nm
デジタル画像取込装置(日立, EMpire2000)
デジタルビームコントローラ回路, RS-232C外部制御インターフェース

研究の初期に用いたSEMの仕様(JEOL, JSM-5300)

分解能：4.5nm($V_{acc} = 30\text{kV}$, $WD = 8\text{mm}$)
ビデオレートでは100nm程度か

倍率： $\times 15 \sim \times 200,000$
(25段階, 1.3×10^4 の倍率可変ダイナミックレンジ)

加速電圧：0.5 \sim 30kV(5kV以上は5kV単位でしか設定できない)

画像信号：TVモード時のみNTSC出力可能。写真モード時は出力できず

試料室サイズ：150 \times 150 \times 150mm

観察可能WD：8 \sim 48mm

増設したもの 液体窒素トラップ

双眼立体視装置(サンヨー電子)：立体視を試みたがあまりうまく使えず
画像改善装置(浜松ホトニクス, DVS-20)：画像積算機能実現のため
電離真空計

実際のSEM分解能の評価結果

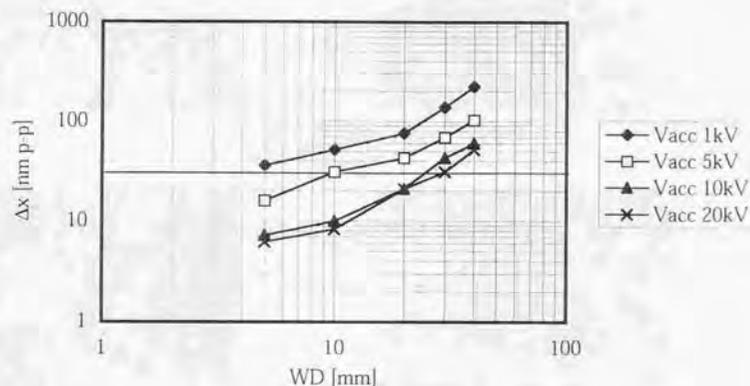
カタログ値は $WD = 5mm$ という最も良い条件での結果である。実際にはマニピュレータを取り付けるとこのような小さなWDは実現できない。電子ビームが大きなWDを進行する間に外部磁場により偏向され分解能を低下させる。加速電圧 V_{acc} とWDを変えて写真上のエッジのゆらぎから分解能を系統的に評価した。結果を図3.1.6に示す。以下の関係が得られた。

- 分解能 $\propto WD$
- 分解能 $\propto V_{acc}^{-1/2}$

この結果は電気素量 ϵ_0 の電荷を持った電子が V_{acc} の電圧で加速され、 $(2eV_{acc}/m)^{1/2}$ の速度でWDの距離を進むのに要する時間が長いほど、偏向も大きいと考えたときの子想に一致する傾向である。このことから、1/2乗でしか効かない加速電圧を高くすることよりはWDを小さくする効果の方が大きいことがわかる。図3.1.6の結果から、 $\phi 600nm$ の微小球を操作するために、直径に対して1/20すなわち30nmの分解能を得ようとするとき、 $V_{acc} = 10kV, WD = 20mm$ 程度を実現しなくてはならないことがわかる。実際にはこのほかにマニピュレータの機械的な振動の影響も考慮が必要である。

実際に有効な画像積算数の評価結果

走査型電子顕微鏡の画像は100秒程度かけてゆっくり走査したときにカタログの分解能が得られると言うのであって、ビデオ観察している高速走査画像は非常にノイズが多く、高分解能のSEMを使用してもこの生の画像を見ながら作業するのは実際には困難である。従って、時間方向に画像を積算する処理(リカーシブフィルタリング)が不可欠である。積算枚数 N を多くするとS/N比は $N^{1/2}$ に比例して向上するが、その分、昔の映像が混在しているので実時間操作の上では障害になる。そこで、様々な積算枚数で実際に得られる画像とその時の操作者の受ける印象を調べた。その結果を図3.1.7に示す。 $N = 16$ 程度以上では画像は非常に鮮明で、それ以上は積算してもあまり効果がわからない。しかし、画像の遅れがひどく、それ以上では作業にはならない。作業を進める上では $N = 4$ 程度まではそれほど違和感を感じなかった。これは人間に呈示する画像は必ずしもビデオレートである必要はなく、7.5Hz程度で良いことを示唆している。しかしこの映像の場合には $N = 4$



(a) WDに対する電子ビームの揺れ幅

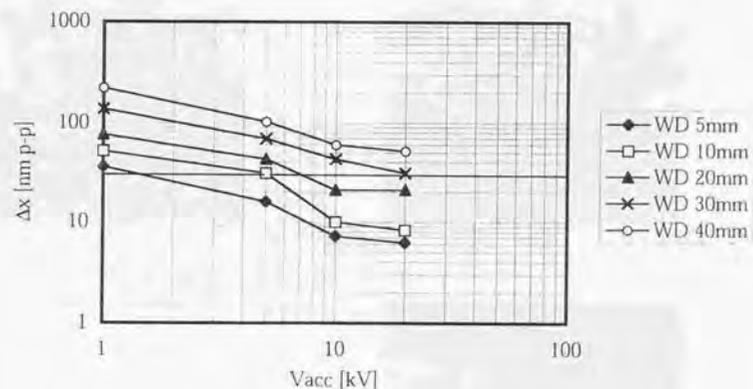
(b) V_{acc}に対する電子ビームの揺れ幅

図3.1.6 走査型電子顕微鏡の実際の使用環境での分解能

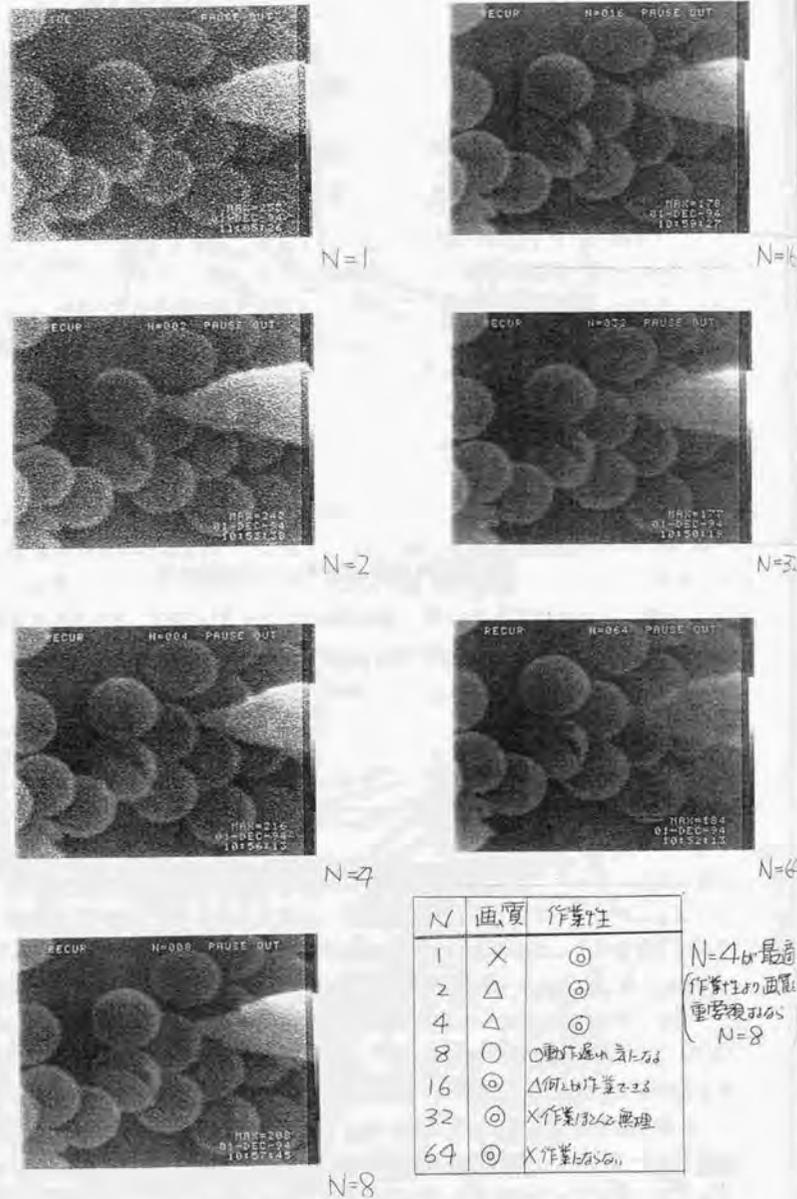


図3.1.7 走査型電子顕微鏡の画像積算の効果

N	画質	作業性
1	X	◎
2	△	◎
4	△	◎
8	○	◎動作遅いから
16	◎	△何れ作業も遅
32	◎	X作業の中心無理
64	◎	X作業の中心無理

N=4が最適
作業性の画質
重視後の
N=8

では画質が満足できるとはいえず、結局、 $N = 8$ が画質の点でも動作遅れの点でも妥協して作業が遂行できる最適値と判断できた。これは観察している画像にも依存するはずであるが、本研究の多くの作業の経験を通じて、マイクロメートルオーダの対象物を扱う限りは $N = 8$ が適切と感じられた。本研究では冷陰極電界放射型電子銃を選択したが、ほぼ同等の分解能が得られ、1桁大きな放出電流が得られる熱電界放射型電子銃の方が、電流が多いためおそらく高速走査でもノイズが少なく、マニピュレーションには好都合であったかも知れない。

3.2 マイクロマニピュレータ

3.2.1 電子顕微鏡用マイクロマニピュレータの基礎

電子顕微鏡用マイクロマニピュレータとは、電子顕微鏡の試料室という操作者とは物理的に隔てられた空間で試料に対して相対的に変位や回転をする装置である。基本構成に関する検討項目を整理すると以下のような。

動作原理：電気式アクチュエータと電気信号による操作信号の送信が多い。機械式で手動マイクロメータで操作する方法も使用される。流体圧式駆動も古くは用いられていた。

自由度：視野を決定するための自由度、ワークの中で作業する位置を決定する自由度、視野内で操作するための自由度が必要である。また、個々の自由度について直進・回転がある。操作腕の数も複雑な作業を行なう場合には重要な仕様である。

アクチュエータ：並進には、圧電素子の静的動作を利用するもの、圧電素子の動的動作（尺取機構、インパクトドライブ）を利用するもの、従来から行われているようにモータにボールネジなどの直進変換機構を組み合わせたものなどがある。回転には、モータをそのまま用いる。角度精度はマクロと同じでよいので特に微細作業だからという考慮は必要ない[140]。

電気的結合：ジョイスティック等で操作情報を入力し、そのままアナログ電気回路で駆動する場合、ジョイスティックやキー等の入力を一旦コンピュータに入力し、デジタルあるいはアナログ電気回路で駆動する場合、ジョイスティック、

キー等で入力された情報をただ変換して出力するだけでなく、種々の知的処理を施して出力するデジタルあるいはアナログ処理（自動作業、感覚フィードバックなど）する場合、などがある。

操作方式：ジョイスティックが代表的である。アナログ、デジタル方式の他、変位として入力する場合、力として入力する場合、倒した方向に1ステップずつ動作させる場合、倒した量を速度として出力する場合などがある。一方、特に間にコンピュータを介する場合にはダイヤル、キー、双方向デバイスなど様々なインターフェースが使用可能である。

電顕用マニピュレータの入手方法に関する状況は以下の通りである。光学顕微鏡用のマイクロマニピュレータは幾つかのメーカーから容易に入手できる。しかし、電顕用は容易に市販品が入手できる状況ではない、技術的に本質的に困難なわけではなく、ニーズとの兼ね合いで事業化に値するかどうかという判断に起因する問題であろう。実際には電顕を使用していて必要を感じた研究者が自ら製作したり、そのような技術を持つ研究者や企業に製作を個別に依頼しているのが現状である。

3.2.2 電子顕微鏡用マニピュレータの歴史と現状

ここでは現在までの開発の歴史をそれぞれの代表的な特徴を挙げながら整理する。

第1世代の電顕用マニピュレータ

光学顕微鏡用のマニピュレータは1920年代から開発が進み、1960年代初期にすでに圧電素子を利用したものも含めてほしいの形が試作され、1970年代には機械式あるいは流体圧式の縮小機構を用いる現在の形にほぼ落ち着いている[129]。電顕用マニピュレータはそれに比べると真空チャンバ内の作業となることが障害となりこれに比べると開発が遅れている。

しかし、光顕と同じく生物・医療試料の顕微解剖の要求が強く、1970年代にはマイクロマニピュレータを用いたSEM観察下顕微解剖は一つのSEMの利用技術として広く認識されるに至っている。Pawleyの100nmの分解能を持った圧電素子駆動マニピュレータがこの時期の代表的なものである。この時期は電顕メーカーでもマニピュレータの重要性が強く認識され、日立製作所の永谷らが多くの生物試料の解剖の事例を残している[235]。日立は現在でもマニピュレータを標準オプション

として販売しているが、これは手動のいわゆる超高真空機器の“マニピュレータ”である。

第2世代の電顕用マニピュレータ

1980年代後半から1990年代に入ると、生物学ではなく、マイクロデバイスの組立や現象解明を目的としたマニピュレータが現れる。これらは通常の市販SEMをベースとし、比較的容易に着脱できるタイプである。

Morishitaのマニピュレータ：圧電素子のヒステリシスを歪ゲージで弾性変形部の変位量を計測しフィードバックすることを特徴としている。並進3軸のみから構成される。後に独自の粗動機構ですべてを圧電素子で駆動し数10mmもの可動範囲もつ機種を開発している。実験によりLSI配線の不良解析に有効であること示した[137, 138]。エンドイフェクタとして専用のグリッパやカセンサも開発されている。その他に専用のヒータも開発された[213]。SEMのオプションポートに取付可能な簡易版もあり、このタイプは市販されている。この簡易版マニピュレータは位置決めは手動で行ない、SEMの標準試料台上のサンプルを操作できるようになっている。

Johanssonのマニピュレータ：DCモータ駆動で、並進3軸+手首回転の4自由度を備えている[175]。圧電素子駆動のグリッパやヒータも内蔵されており、1辺100~300 μm 程度の比較的大きな物体の組立の事例が示されている[208]。もともとの開発の目的は接合現象の解明や、接合を用いたマイクロモータの開発のツールとしてである。

Kammrath & Weiss GmbHのマニピュレータ：DCモータ駆動で主に材料試験用に用いられている。他にも多点ブロービングシステムなど、多様な製品例が紹介されている。ヨーロッパ地域だけで個別に製品を開発している。

Koyanoのマニピュレータ：回転2自由度を持つ5自由度で、腕を2本持ち、光学顕微鏡による側面視が可能な構成になっている。これまでは微小物体のハンドリングスキル研究のツールとして用いられているが[142]、その完成度の高さから実際の様々な微細作業への適用が期待されている。

Topometrics社の電顕用AFM：AFMをSEM試料室に取り付け、SEMでカンチレバーを斜めから観察し、どこをAFM観察しているかわかるようにした

システムである。これも一つのマニピュレータと考えると良いだろう。

第3世代の電顕用マニピュレータ

1990年代半ばになると、これらを発展させて顕微鏡を含めたシステムすべてを専用に構築した大規模なマニピュレーションシステムが現れる。前世代のものが観察を主目的としてそれに操作機能を付加する形であったのに対し、これらは微小物体に適した生産システムとして設計・製作され、電子顕微鏡は結果的に採用された観察デバイスとして必要な場所に取り付けられ、主従が逆転している。

Hatamuraらのシステム：回転軸を多数備え、完全6自由度を実現して、さらに同等の機能を持った2本の腕を持ち、2本のSEM鏡筒で多面視を行なう。さらに加工室と一体となっており、一連の加工から組立までがすべて一つのシステムの中で実現できるようになっている [146]。

Sugaのシステム：超高真空用のシステムで完全6自由度を実現している。イオンビームやFABなどの加工ビームがすべて視野に一致するように配置されており、接合・組立システムとして開発された [149]。

ブラウンホーファー研究所のシステム：SEM鏡筒が大きな真空チャンバの中で可動する大規模なシステムである。視覚装置の方を様々な方向に向けることができるので、必ずしも作業対象物が小さい必要はない [144]。

3.2.3 微小球機械的配列に必要なマニピュレータ性能

基本的に必要な機能は、以下の2つである。

- 用意された対象物を目的の状態に移動する作業に必要な軌道を生成できること
- 人間が視覚情報を得て生成する動作に追従できること

この必要機能をさらに詳細に整理すると以下ようになる。ここで動作を生成するマニピュレータ本体とその先端に取り付ける工具（エンドイフェクタ）にはそれぞれに求められる機能が異なるので、マニピュレータのことだけでなく工具のことも重要である。

マニピュレータ

作業に必要な分解能・防振能力：分解能は対象物サイズの100～1000分の1程度は必要であろう。また、工具先端の振動をこの程度に抑制できないといけない。

作業に必要な可動範囲：可動範囲は対象物サイズの1000倍程度必要である。これは人間の操作可能なサイズの最小寸法が1mm程度であることから決まる。したがって動作範囲のダイナミックレンジは $10^5 \sim 10^6$ すなわち16～20bitsも必要である。1個のアクチュエータでこれだけのレンジをカバーするのは困難であるが、粗微動の階層構成にすることで実現できる。

作業に必要な自由度：ある形状を持った物体の位置や姿勢を目的の通りに整列されるためにマニピュレータに必要な自由度の構成はGrohおよび牧野により整理されている（図3.2.1） [238, 239]。球に限っては3自由度並進のみで操作可能である。円柱、円盤など軸対象部品は5自由度（並進3+回転2）で操作可能である。それ以外の形状はすべて6自由度すべてそろったマニピュレータでなければ任意の姿勢を実現することができない。

ところが、現実には上記の要求を満たさない自由度の不足したマニピュレータでも作業が遂行できる場合がある。

例えば、古谷野によるマイクロ鳥居やマイクロ五重塔の角穴へのインサート作業がその例である [140]。6自由度必要なはずの作業を5自由度で実現している。真空ピンセット先端面で部品の平面部と面内位置は自由になるように拘束し、対象物が角穴に幾何学的に沿うように自動整列させることを利用している。あるいは積極的に向きを変えるための固定腕を設置し、これに部品を接触させて向きを変化させる手法も用いている。

もう一つの例として、Johanssonのマニピュレータを用いて3つの部品から成るマイクロ鳥居を組立・接合した作業がある [208]。これは6自由度必要なはずの作業を4自由度で実現している。グリッパ把持部での回転を利用して基板にならうように回転する操作を利用している。ただグリッパで部品の面を拘束してしまっているため、すべての部品を同じ向きに沿ってしか並べられない。

このような周囲の環境との接触を積極的に用いた物体の位置や姿勢のマニピュレーションは相山らにより研究されており、微小世界でのマニピュレーション

分類	寸法関係	M	H	部品例	必要自由度 (G-M)
球	$A=B=L$	3	3		3
半球製品	$L < A$ $L \sim A$	1	1		5
		1	0		
		0	3		6
		0	1		
		0	0		
軸物	$L > A$	1	1		5
		1	0		
		0	3		6
		0	1		
		0	0		

図3.2.1 操作対象物の対称性と必要な自由度

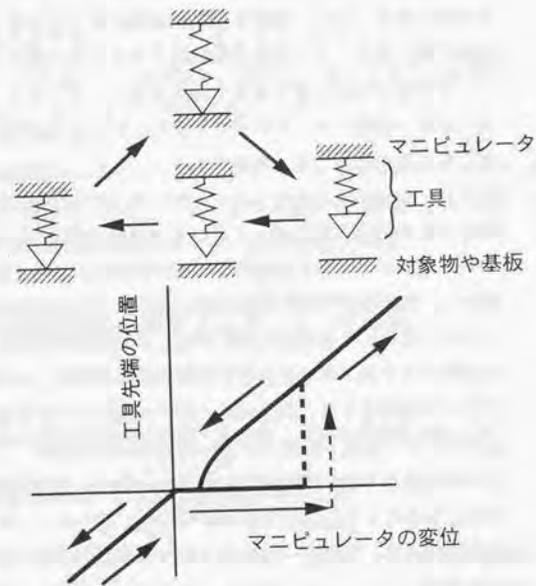


図3.2.2 工具剛性が低い場合に観察されるヒステリシス

ンはその好例となっている [240].

以上は物体操作そのものに必要な自由度であるが、このほかに、視野を選択するための自由度、視線を選択するための自由度も必要である。前者は本質的に不可欠なものである。後者は最近の Koyano, Hatamura, Suga, Klein のシステムはいずれも有しているが、後者の自由度がないマニピュレータの場合には代わりとなる情報を得るための代わりの技術が本質的に必要である。本研究はそれに該当するので第6章で議論する。

作業に必要な応答速度：応答周波数 $\geq 20Hz$ 程度あれば十分で、それ以上に余り高くても人間が操縦する以上は必要ない。

人間の指先での機械の操縦時に必要とされる周波数特性についてはあまり調べられていない。しかしながら、脊髄反射や上位中枢神経反射の時定数がそれぞれ 25ms, 70ms 程度であることから、数 Hz 程度では不足しており、10 ~ 20Hz 程度の周波数特性が求められると思われる [241].

SEM に適合する寸法：当然ながら SEM に収納できなくてはならないのであるが、重要なのは WD の設定である。WD は分解能に大きく影響するので、一般には作業点に対物レンズ下端から 15 ~ 30mm 程度にまでは近付けることが必要である。

工具

本研究では工具というと先端に対象物を付着させて移動する針状工具に限定して考える。

対象物との間に十分な付着力が作用すること：これは付着力自体が研究対象なので第5章で別途扱う。

観察を妨げないこと：工具先端サイズ \approx 対象物サイズの 10 ~ 数 10%

対象物を必要な範囲で拘束できること：例えば先端が球形や円錐形では対象物は側面に回り込むので先端には適度な大きさの平面が必要である

作業に必要な剛性を有すること：これは通常あまり指摘されないことなので、まずはなぜ剛性を気にするかの説明が必要である。

縦剛性

表面力による付着力の働く世界では有限の剛性を持った物体が表面に接近・離脱するとき、ヒステリシスを示す(図3.2.2, 第5章にて詳述)。そのため、極端な場合、工具のストロークの範囲で離脱できないこともある。少なくとも、工具の操作の上では“バックラッシ”として働くのでこれが無視できる程度でないと非常に作業がしにくい。

JKR理論[242, 243, 244]によると γR のオーダーの付着力(γ は表面エネルギー $\approx 0.1 \sim 1 \text{ J/m}^2$, R は先端の曲率半径)が作用するわけであるから、 $R = 1 \text{ nm}$ というものが針でも $0.1 \sim 1 \text{ nN}$ 程度の付着力は作用する。本研究では $1 \mu\text{N}$ 程度の付着力が主に観察されている。このとき剛性 $> 10 \text{ N/m}$ でないとせっかく 10 nm の分解能のマニピュレータをもちいても、 100 nm ものバックラッシが生じることになる。

一方、あまり高いとわずかな操作ミスや凹凸の接触などにより過度の力が作用し、容易に工具や対象物の破損に至るので、結局一般に 100 N/m という値に落ち着く。

横剛性

横から物体を滑らせて位置合わせするときに付着力と同程度の摩擦력에抵抗して作業できなくてはならない。

固有振動数

あまり低いと防振できないのでこの点でも剛性は大きい方がよい。

その他にも、工具や基板の電気的接続を必要に応じて変更可能であることやヒータの設置など、個別の要求に応じて必要な機能もある。

最後にマイクロメートルオーダーの球の操作という本研究の目的に照らし合わせて必要機能を整理すると、以下のようになる。

マニピュレータ

- 分解能, 振動レベル $\sim 10 \text{ nm}$
- 可動範囲 $>$ 数 mm 以上
- 並進3自由度でよい、つまり最も簡単な構成のマニピュレータで十分。
- 応答速度 $> 20 \text{ Hz}$

- SEMに適合する寸法

工具

- 工具先端サイズ \sim 数 100 nm , 先端面平面
- 縦剛性 100 N/m (通常のAFMカンチレバーの1000倍程度)

3.2.4 微小球機械的配列作業のためのマニピュレータの選択

本研究ではMorishitaにより開発されたNanoRobotII(HMI社)を利用する[138]。発展途上のマニピュレータの世界においてシンプルで信頼性が高いことがこの装置の特徴である。

本研究で用いるマニピュレータの仕様

自由度構成：自由度とそれぞれの可動範囲は以下の通りである(図3.2.3)。

- 視野選択(ベースステージ)：可動範囲 40 mm , 分解能 10 nm , 視野面内2軸
- 作業領域選択(左手)：可動範囲 15 mm , 分解能 10 nm , 3軸
- 作業(右手)：可動範囲 $15 \mu\text{m}$, 分解能 10 nm , 3軸

分解能・振動： 10 nm 以下の分解能と振動安定性を持つ。これは図3.2.4のステップ駆動時の変位応答の実測結果による。

SEMへの取付：JEOL, JSM-5300と日立, S-4200に取付可能

どちらも標準状態で $\text{WD} = 35 \text{ mm}$, アタッチメントを製作し $\text{WD} = 15 \text{ mm}$ の実現を可能にした。WDは工具先端位置に固定され、垂直には圧電素子範囲でしか動かない。このため、WD調整のためにマニピュレータを対物レンズに衝突させることがない安全側の設計になっている。

本研究で用いる典型的な工具・その製作方法・機械的特性

ガラス管やガラス棒の熱加工を採用した。先端の平面部は金属をエッチングした針では実現困難である。それはサブ μm の平面を残して平面研磨しなくてはならないからである($\phi 20 \mu\text{m}$ 程度なら研磨でも製作可能)。

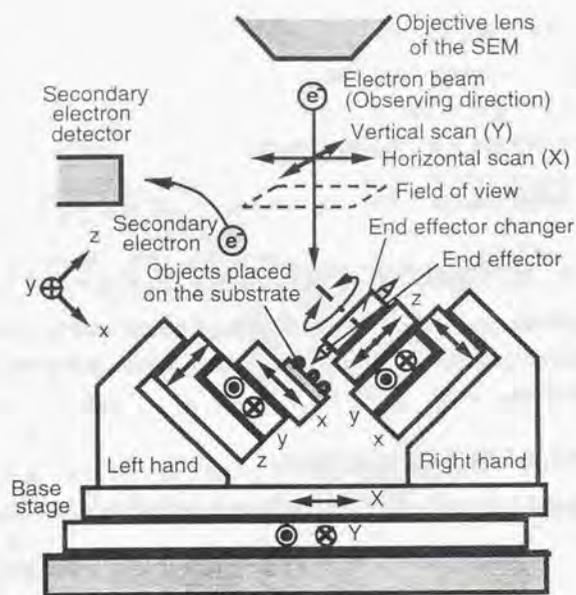


図3.2.3 NanoRobotIIの構成

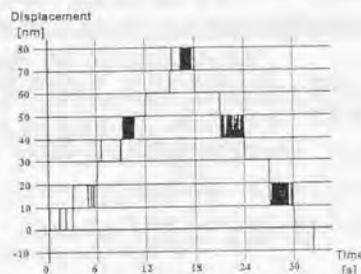


図3.2.4 NanoRobotIIのステップ駆動特性と振動（右手Y軸の例）

専用のピベット製作器を用い、PtIr ヒータで加工部を熱して重りで引っ張る（ナリシゲ、PB-7、PB-10）。特徴は先端が劈開された状態で仕上がるので軸に垂直な平面が必ずできることである。しかも温度と重りで再現性よく製作できる。ガラス工具はしなやかで破壊するまでは塑性変形しないので、むしろすぐに塑性変形する金属よりも使いやすい。表面はSEM 観察のために Au スパッタ（厚さ 40～80nm）する。スパッタなので斜め上に向けて保持しておけば裏にもコーティングできる。

加工パラメータは予備実験により最適化した。ヒータと重りを系統的に変化したときの加工結果を図 3.2.5 に示す。温度が低いと延びずに破断して太い針になる。μm オーダのハンドリングで必要なサブ μm の先端径は容易に実現可能である。先端径以外にもそこにいたるマクロな形状が重要で、横剛性が低すぎると作業が困難になる。10 程度程度のペンシル形が都合がよい（図 3.2.6）。このようなガラス製工具の剛性は齊藤・荻野によって評価されており [121]、一般に縦剛性が 170N/m、横剛性が 15N/m である。

本研究で用いる基板

本研究では主に 3 種類の基板を用いる。使い分けは 5 章・7 章にて説明する。実際には付着力の調節や微小球の分散のために、さらに表面に別の物質をコーティングしたりする。

Au/Glass：0.9 mm 厚のスライドガラスを 5 mm 角に切断し、Au をスパッタ 40～80nm したものを。

ITO/Glass：厚さ 1 mm のソーダガラスに ITO、すなわち In_2O_3 (Sn 5%) を厚さ 189nm に蒸着し、これを 5 mm 角に切断したものを。

SiN：厚さ 1 mm の 8 mm 角の Si 板の中央部の 3 mm 角の領域に厚さわずか 300nm の膜が貼られたもの。

3.3 微小球機械的配列のための作業環境

3.3.1 作業環境に起因する諸問題

電子顕微鏡内という作業環境は、電子ビームが照射され、高真空の世界である。したがって、特有の現象として、帯電（第 5 章にて詳述）、汚染物の析出、乾燥、

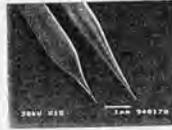
おもり個数		ヒータ目盛		
軽いおもり	重いおもり	850	900	950
2	0	—	 0.86/1.04	—
2	1	 3.48/4.02	 0.97/1.14	 0.77/0.70
2	2	—	 1.14/1.09	—

図3.2.5 ガラス工具の加工条件と先端形状の関係



図3.2.6 本研究で用いた典型的なガラス工具形状

加熱、変質が生じる。また、乾燥や加熱によって対象物そのものの形状が破壊されてしまうこともある。これらを考慮して試料を作成することが走査電子顕微鏡の基本で、走査電子顕微鏡の避けられない制約条件と考えられている [235]。

その一方で、これらの条件を少しでも緩和する目的で、低真空SEM、環境SEM、試料冷却ステージ等のハードウェアや、独特の各種乾燥法、金属被覆法などの手法が開発され続けている [237, 235]。

本研究で行なう微小球配列作業にとっては、特に汚染物析出が重要な問題である。図3.3.1に障害例を紹介する。特にサブ μm 粒子を観察するときには、この程度のごとは日常的に起こる。これでは対象物が汚染物に埋もれてしまうので作業そのものが遂行不可能である。一般にSEMで写真を撮るときには手際よく調整して撮影に移るようにとの消極的な対策しかなされず、汚染の詳しいメカニズムや本質的な防止方法はSEMに関わる学問の分野でも製造メーカーの開発現場でもあまり調べられていない。図3.3.1のように顕著な汚染物析出が観察されることを考えると、微細加工技術として析出物がそのまま使われたり、そうして作った原子間力顕微鏡プローブが市販されたりしている現状も無理もない [75, 245, 246, 247, 248, 249]。

本研究を進める内に、 $\phi 1 \sim 2\mu\text{m}$ 程度の微小球は問題なくハンドリングできるのに、わずかに小さな $\phi 500\text{nm}$ 程度の球を扱おうとすると作業中に次第に観察しにくくなる現象を頻繁に経験した。当初は真空度の悪化などにより顕微鏡の分解能が低下したものと思っていたが、次第に対象物そのものが変化し、表面に皮膜ができるために観察しにくくなるのがわかってきた。本節では、この現象を系統的な実験により調べ、何が要因でこのような現象が起こるのか、どうすればより小さな対象物を扱うことができるのかを明らかにする。

3.3.2 汚染物析出量計測方法

方法概要

スポット照射モードで一定時間電子ビームを基板垂直方向から照射する。それを試料台を45度に傾斜して観察し、析出した汚染物の形状をビデオテープ及びビデオプリンタで記録する。基本測定条件は以下の通りである。

- 加速電圧：30kV
- ビームモニター絞り、対物絞り、コンデンサ励磁：標準 (3,3,9)



(a) Ag微小球
エッジが二重に見える
(観察時間：80s)



(b) Ag微小球
エッジが二重に見える
特に左下の2つの球
(観察時間：80s)



(c) SiO₂微小球
高倍率観察時の視野状に
汚染物が析出した例
(観察時間：150s)

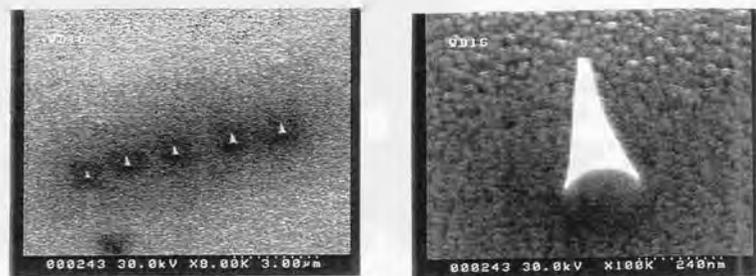
図3.3.1 汚染物析出による障害の例

- このときビーム電流：115pA
- WD：15mm
- 試料 Tilt：0
- 倍率：20,000（スポット照射なので基本的には関係ないが）
- 試料基板：Au（80nm）/glass
- SEM標準の試料室を使用
- 試料は試料台に初期はAgペーストで、後期は機械的に固定（これはその前後で結果に影響しないことを確認した）
- 照射時間：150s

必要に応じてこの条件を一部だけ変えて傾向を調べた。

予備実験

まずは観察される析出汚染物の何を評価すれば定量的に扱えるかを調べた。スポット照射するとどのように析出するかを図3.3.2に示す。このように円錐形のタワーが形成される。これからこの何を測定すれば良いのかをまず明らかにせねばならない。できれば高さなどの寸法だけで済めば測定が容易なのであるが、高さや底辺の直径からその都度体積を求めなければならないかも知れない。汚染物量は照射時間に比例するはずであるので、様々な照射時間の析出物の高さ、底辺の直径、体積と時間の関係を調べた。その結果を図3.3.3に示す。高さ、直径は時間に比例しないが、体積は比例する。これは合理的な結果である。従って、円錐状の析出物の高さや直径の両方の寸法を写真から計測して体積を算出し、単位時間当たり析出した体積を析出速度 [nm^3/s] として比較に用いることにした。析出速度は必ずしも安定な指標とも言えず、条件が同じでも析出速度には $\pm 20\%$ 程度のばらつきは生じることがある。



(a) 左から順に30,60,90,120,150秒間照射した結果

(b) その一つを拡大した様子 (照射時間: 150s)

図3.3.2 スポット照射により析出した汚染物

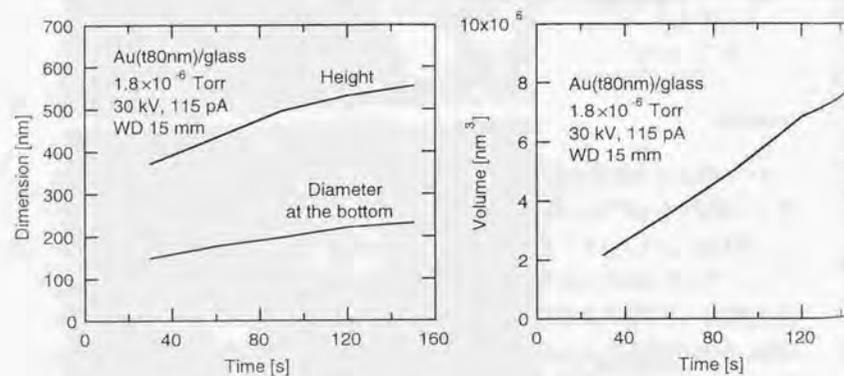


図3.3.3 析出した円錐の高さ、直径、体積と時間の関係

3.3.3 汚染物析出速度と電子ビーム条件の関係

目的

この析出量を小さく押さえることが微小物体ハンドリングに不可欠である。何をどうすれば析出速度を小さくできるのかを知るために電子ビーム条件を様々に変化させて析出速度との関係を調べた。

方法

倍率、加速電圧、ビーム電流、作動距離との関係を調べた。ただしスポット照射なので倍率は本来意味がない。影響がないことの確認のために測定した。ビーム電流や加速電圧の他に、絞リやコンデンサ励磁電流も変えることにより変化させた。

結果

図3.3.4にそれぞれのパラメータの影響を示した。

倍率：スポット照射なので変わらないと予想していたが、確かに変わらないことが確認できた。

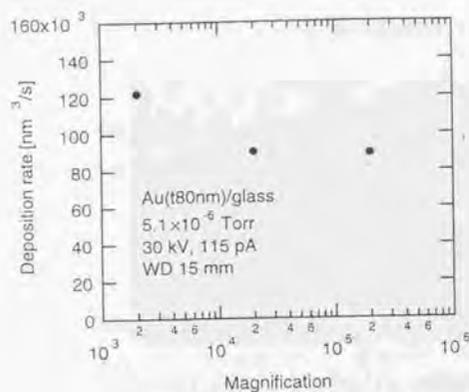
加速電圧：汚染物析出のエネルギーが加速された電子エネルギーから供給されると考えると相関があるはずと思ったが、変わらなかった。

ビーム電流：析出反応は入射する電子数が多いほど多く起こると考えたが、驚いたことに1桁以上変えても相関は見られなかった。

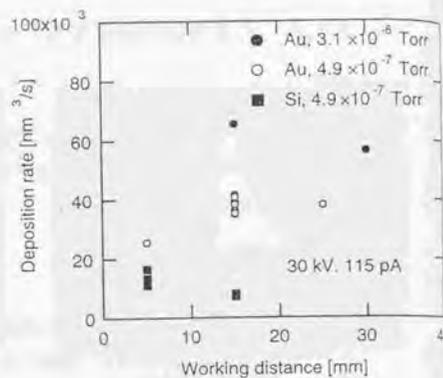
作動距離：ビームが真空中を通過した距離が長い方が汚染物原料に遭遇する量が多いので相関があると考えたが、同じ条件で比較する限りは影響はなかった。

解析

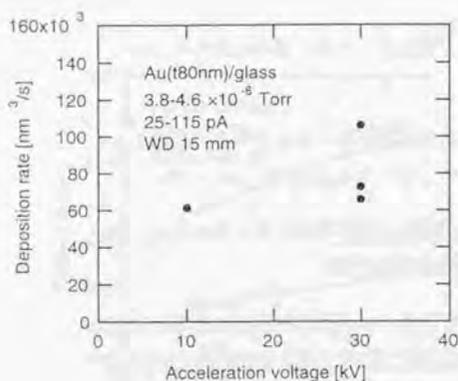
汚染物析出は電子ビームで誘起される気相化学反応(CVD)であるから、励起エネルギーすなわち加速電圧とビーム電流に強く依存すると期待していた。しかし、いずれも、観察可能なビーム条件の範囲では少なくとも相関がなかった。このことから、電子ビームは析出には十分すぎるほど供給されており、ガス分子の供給量の方が律速になっていることが推察される。



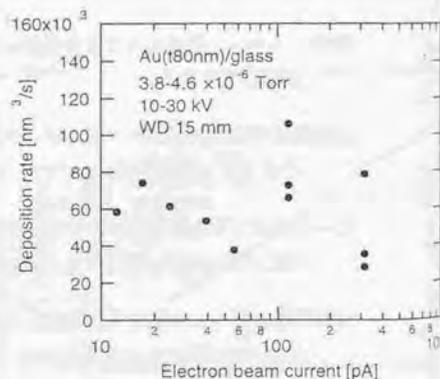
(a) 倍率の影響



(b) 作動距離の影響



(c) 加速電圧の影響



(d) ビーム電流の影響

図3.3.4 倍率・作動距離・加速電圧・ビーム電流と析出速度の関係

典型的な析出速度は $1 \times 10^5 \text{ nm}^3/\text{s}$ であった。原子1個の占める体積を 0.2 nm 立方とすると、毎秒析出する原子数は 1×10^7 個/sと見積られる。電子ビームの電流が $10 \sim 300 \text{ pA}$ とは、電子流量が $6 \times 10^{12} \sim 2 \times 10^{14} \text{ electrons/s}$ というのである。このことから、本研究のSEM環境とは、1個の汚染物原子に対して $10^5 \sim 10^7$ 個の 10 keV かそれ以上のエネルギーを持った電子が注入される環境、といえる。電子ビーム照射範囲に入った析出性の汚染物原子は残らず反応すると考えるべきである。

ここで本研究で扱う 10^{-6} Torr という真空環境がどのような物理的環境かを検討しておく。飛び交っている分子の速度は窒素を仮定すると 470 m/s で、平均自由行程は 50 m もある [250, 251]。このような分子が毎秒 $1 \mu\text{m}^2$ の面積に 4×10^8 個入射する。電子ビームが直径 0.1 nm 、長さ 15 mm の円柱であると考え、ビームに側面から飛び込んでしまう分子の数は 2×10^7 個/sとなる。たまたま毎秒析出する分子数に近い値になったが、うっかり電子ビーム行路に入ってしまった汚染物の大半は析出すると考えて大雑把には妥当なようである。しかし、浮遊しているガスの全てが析出に寄与する種類とも思えないし、WDの効果が見られなかったから気相からの供給だけでは説明できないのも確かである。

3.3.4 汚染物析出速度と真空度・材料の関係

目的

汚染物原子の供給量が重要なパラメータとわかった。汚染物の供給源は環境そのものと被照射材料が考えられる。真空度と基板材料の析出速度との関係を調べることで、どの程度の条件が実現できればどの程度の微小物体まで操作できるのかを検討する。

方法

本装置の真空系を図3.3.5に示す。油拡散ポンプとロータリーポンプを用いる標準的な高真空排気系である。油拡散ポンプからのオイルの戻りを防止するための液体窒素トラップが試料室下に装備されており、さらに試料室の試料直上に設置できる液体窒素式のアンチコンタミトラップも設置してある。単にトラップというときには試料室下の液体窒素トラップを指すことにする。SEM付属のベニング真空計

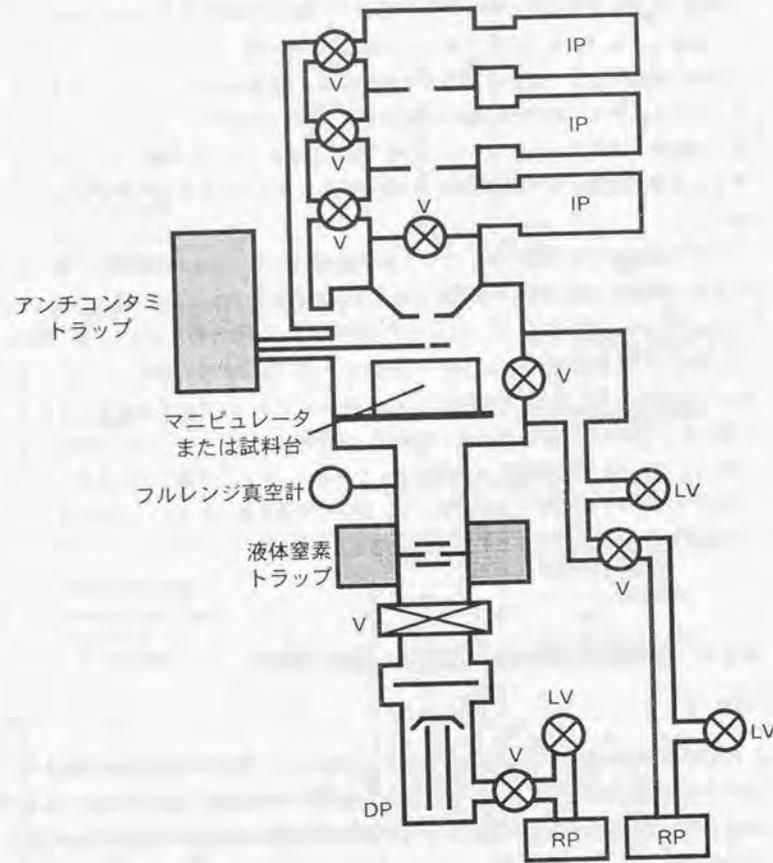


図3.3.5 本研究で用いたSEMの真空系

- IP : イオンポンプ
- DP : 油拡散ポンプ
- RP : ロータリーポンプ
- V : 真空バルブ
- LV : リークバルブ

は動作時には振り切れてしまっているため、新たにトラップの上にフルレンジ式のコールドカソード真空計を増設した。SEM 試料室の真空度は本来制御できるようにはなっていないが、長時間排気し続けて高真空になるまで待ったり、液体窒素トラップやアンチコンタミトラップを用いて真空度を $5 \times 10^{-7} \sim 1 \times 10^{-5} \text{Torr}$ の範囲で変化させた。また、試料基板はガラスに金をスパッタしたもの他、Si や SiN に変えて材料の影響を観察した。

結果：真空度と析出速度の関係

図3.3.6に真空度と汚染物析出速度の関係を示した。今度は明らかな相関がある。とはいっても、1桁の真空度の向上でせいぜい半分になる程度の緩やかな関係である。トラップを何も使用しないときの真空度は $1 \times 10^{-6} \sim 5 \times 10^{-6} \text{Torr}$ で使用履歴に依存する。トラップによる真空度の向上はせいぜい $5 \times 10^{-6} \text{Torr}$ が $1 \times 10^{-6} \text{Torr}$ になる程度の効果に過ぎない。しかもその時の析出速度の変化はわずか数10%向上するだけである。アンチコンタミトラップは真空度にも析出速度にも明確な効果は見られなかった。

結果：材料と析出速度

材料による違いはそれ以上に大きかった。Si は Au の 1/5 程度で、他の真空槽中で 1000°C 程度にベークしても前後で変わらなかったことから、もともとガスが出ない材料と思われる。一方、SiN はベークの前後で変化があり、なぜかベーク後に析出速度が大きくなった。Au 膜は低真空中でのスパッタでの成膜するので、汚染物が膜中に大量に取り込まれているのではないかと心配したが、ベーク後の SiN も同程度であることを考えると、もともとそれほどひどい状況でもない。逆に Si ですら劇的にけた違いに向上するわけではなく、せいぜい数倍の向上に過ぎない。

結果：基板材料と析出形態

興味深いことに基板材料によって析出する円錐の形状や外観が顕著に異なった。図3.3.7に示すとおり、Au はきれいな円錐状だが、Si は先端の丸いガウス型であった。SiN はベーク前にはガウス型で表面には直径 $10 \sim 20 \text{nm}$ 、長さ数 10nm のヒゲ状析出物が生じている。ところが、ベーク後には消滅して、Au のような円錐状

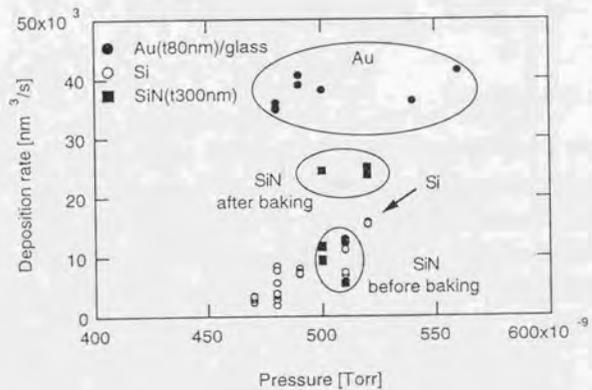
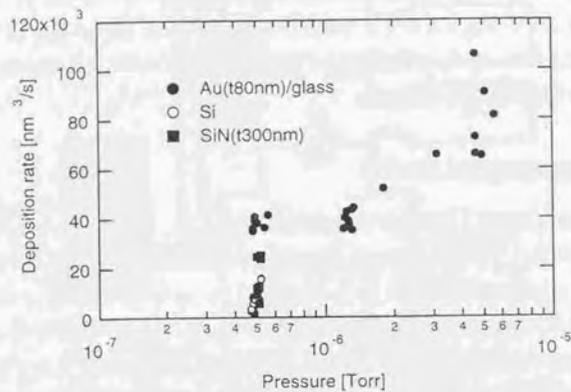
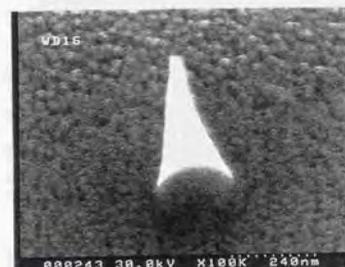


図3.3.6 真空度と汚染物析出速度の関係



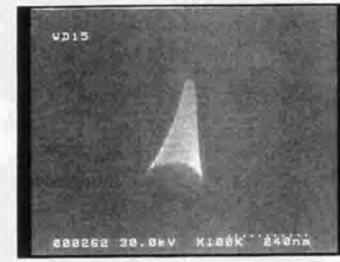
(a) 典型的な Au/glass 上の析出不純物



(b) Si (ベーク前後とも変わらず)



(c) ベークする前の SiN



(d) ベークした後の SiN

図3.3.7 材料や熱処理による汚染物析出形態の変化

に変化する。Si や SiN がガウス型なのは、いずれも析出量が少ないので過渡的な形状を示しているだけかも知れない。しかしベーク前後の SiN の質的な変化は明らかに基板側が析出に強い影響を持つことを示している。

解析

真空度のあまり良くない他の SEM ではアンチコンタミトラップを使用すると析出量が 1/5 ~ 1/50 に向上下することを確認している。我々の装置でアンチコンタミトラップすら影響しないということはポンプオイル由来のガス分子は十分除去され尽くしていることを意味している。すなわち、試料室下部の液体窒素トラップだけで十分機能し、通常言われている拡散ポンプオイルによる影響はなく、オイルフリー環境が実現できているのである。どうしても減らない部分は環境ではなくて基板材料に由来する。つまり、析出速度は真空度と基板材料の関数である。しかし、真空度や材料による変化がせいぜい数倍程度であることを考えると、劇的な改善は難しく、せいぜい $5 \times 10^4 \text{nm}^3/\text{s}$ しか実現できないと考えるのが現実的である。

3.3.5 微小球の大きさと汚染物析出形態の関係

目的

本研究で主に扱う $2\mu\text{m}$ の微粒子では汚染物の影響が気になることはない。しかし、経験的には 500nm を境に急激に汚染物の影響が激しくなるように感じられる。平板上ではなくて、実際に微小球に電子ビームを照射したときにどのように汚染物が析出するかを調べる。

方法

直径 200nm と 600nm の SiO_2 粒子、 400nm のポリスチレン粒子を SiN 基板上に散布しておく。同じような条件の場所を探し、 $500,000$ 倍で 150s 観察する。拡大観察前後の様子を比較する。

結果

図 3.3.8 に観察前後のそれぞれの微小球の様子を示す。 $\phi 200\text{nm}$ では $500,000$ 倍観察時の視野状に汚染物が析出している。それだけでなく観察時にはビームが照

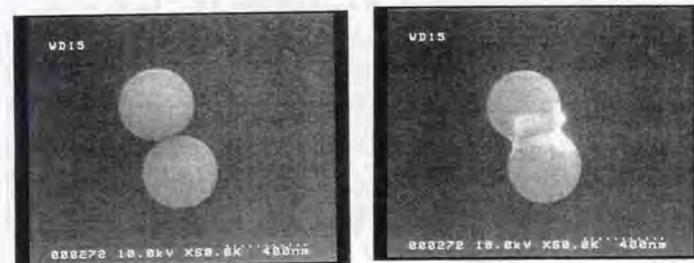
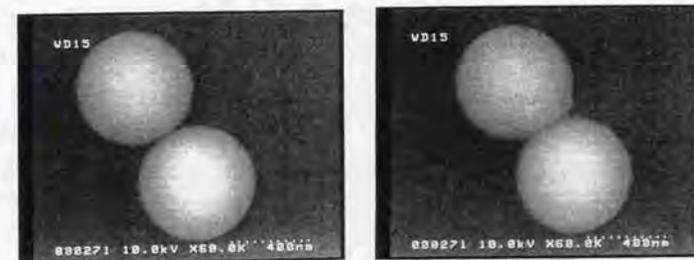
(a) $\phi 200\text{nm}$ の SiO_2 球(b) $\phi 400\text{nm}$ のポリスチレン球(c) $\phi 600\text{nm}$ の SiO_2 球

図3.3.8 粒子サイズによる汚染物析出形態の違い
左が拡大観察前、右が150s間の拡大観察後

射されていなかったにも関わらず、粒子全体に汚染物が付着し、厚さは20nm（粒径の10%）に達し、粒子そのものの直径が20%も増している。 $\phi 400\text{nm}$ は500,000倍観察視野部分では明らかに汚染物により粒子が接合されたように見えるものの、 $\phi 200\text{nm}$ に比べると析出量そのものが少なく、この結果からは直径の有為な変化は見られない。 $\phi 600\text{nm}$ はさらに影響は小さい。 SiO_2 に比べるとポリスチレンの方がガス放出が多く、激しく汚染物析出の影響を受けると予想していたが、微粒子材料による違いはそれほど大きくはなく、単に粒径だけで傾向が決まるようである。

解析

ビームがそもそも照射されていないところまで析出しているということは必ずしも入射ビームにより汚染物が析出するのではないことを意味している。これは物体から逆に出てくる反射電子を考えるべきと思われる。一般に物質中での電子の自由行程は数100nmとされている[235, 236]。したがって、平均自由行程よりも小さな物質の場合には側面などからも入射電子とほとんど同じエネルギーを持った電子が飛び出していき、平均自由行程よりも物体が大きい小さいかで汚染物が照射領域だけに付着するか、物体前面にわたって付着するかという様子が劇的に変化するのであろう。

3.3.6 汚染物析出が対象物の微小化に与える制約条件

以上により、二つの効果がわかった。一つは、いかなる電子ビーム条件でも一定時間中に一定量の汚染物が析出すること、もう一つは、ある大きさよりも微小な物体に関しては反射電子による汚染物析出も考慮に入れないといけないうことである。

一定の体積が析出することによる制約

新たにわかった重要なことは析出速度が真空度（圧力）と材料のみの関数で、電子ビームをどのように走査しても体積が同じ速度で増していくことである。この析出速度を $V[\text{nm}^3/\text{s}]$ とする。視野サイズを $L \times L$ （ $L[\text{nm}]$ は画面の縦または横の寸法）とすると、倍率 M は $M \propto L^{-1}$ の関係がある。体積 V が単位時間に $L \times L$ の面に均一に降り積もるのだから、単位時間に増加する汚染物厚さ t は、

$$t = V/L^2 \propto VM^2$$

微粒子が小さくなって操作時の倍率を高くしていくと、急激に析出が顕著に感じられるのも当然である。実際に重要なのは、その t がハンドリングしようとしている物体に対して相対的に無視できるかできないかということである。そこで、物体サイズ D を考える。一般にそれに比例した視野サイズで観察するので、 $D \propto L$ が成り立ち、考慮すべきことは t でなくて t/D である。したがって、

$$t/D \propto t/L = V/L^3 \propto VM^3$$

一つの構造物を製作するために同じ場所で1時間作業し続けて、析出により物体が何%大きくなったように見えるかを見積もった結果を図3.3.9に示す。1時間作業して視野サイズの1%の析出まで許容できるとすると現在の $1 \times 10^5 \text{nm}^3/\text{s}$ では視野サイズ $3\mu\text{m}$ 、倍率でいうと30,000倍になる。これは実感に非常に良く合っている。これをせめて $1\mu\text{m}$ の視野サイズまで向上しようとする、析出速度を $3 \times 10^3 \text{nm}^3/\text{s}$ まで下げなければならない。しかし、析出速度の真空度や材料との関係は図3.3.6に示すように緩やかでこれだけの改善は困難である。逆にこの傾向を外挿して、典型的な低真空SEMで扱える物体サイズを見積もると最小視野サイズ $10\mu\text{m}$ 、最高倍率10,000倍程度となる。この結果からは、おそらく $\phi 5\mu\text{m}$ 程度の微小球までなら低真空SEMでも扱えるであろうことがわかる。

反射電子も析出に寄与することによる制約

さらに微小化を制限するもう一つの条件が反射電子による析出である。しかし図3.3.9によるとこれよりも析出速度の影響の方が深刻であることわかる。図3.3.8から30kVの加速電圧の時に300nm程度と見積もり、図3.3.9に記入した。しかし、Whiddingtonの法則[252, 253]によると（第5章にて詳述）、入射電子の平均自由行程は加速電圧の2乗に比例するので、加速電圧を30kVから10kVに下げただけでも1桁の向上が見込める。従って、こちらの制約が支配的になることは現実にはない。結局の所、上記の真空度の劇的な向上を実現せねば、微小物体は扱えないのである。

3.3.7 微小球機械的配列に必要な条件

SEMの分解能を考えるとおそらく数10nmの物体まで操作できると期待していたのだが、意外にもサブ μm に真空度や材料に起因する大きな壁があることが明らかになった。現在の500nmあたりに限界があるという状況はそう簡単に改善でき

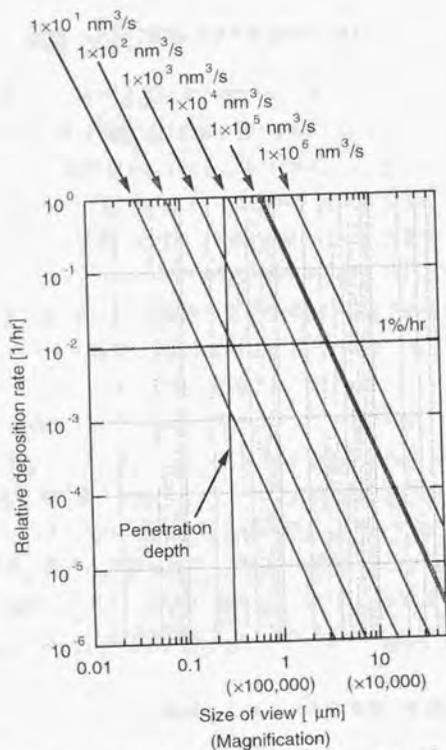


図3.3.9 汚染物析出量の物体サイズとの関係

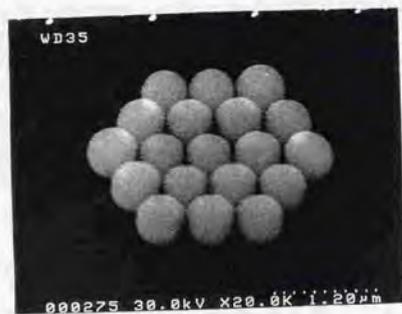


図3.3.10 本研究で配列した最小の微小球 (直径600nmのSiO₂)

そうでない、本研究全体を通じて、試料室下の液体窒素トラップは必ず使用した。また、アンチコンタミトラップは必要に応じて使用した。本研究では最終的に最小φ600nmのSiO₂粒子までしか、自在に構造物を製作することができなかった。図3.3.10に本研究で製作した最小構造物の例を示す。かろうじて可視光が波長900nm程度の近赤外光でフォトニック構造物の効果を調べられる程度の大きさである。

これは真空度の問題とはいえ、排気系をターボ分子ポンプ等に変更していわゆるオイルフリー環境にして解決する問題ではない。トラップが十分に機能した上で、材料由来のガスに起因する問題は解決できた結果が上記の結果である。これをさらに向上するには真空度の桁違いの向上、すなわち超高真空化が本質的に不可欠である。それともなると、基板やマニピュレータなどすべてのものを脱ガスのためにベーキングできる作業システムに根本から構築し直す必要がある。また、それともなると操作可能な対象物も大きく限定されることになるであろう。より微小な物体を操作するためのマニピュレーションシステムについては、第8章にてあらためて議論する。