

科学研究費助成事業 研究成果報告書

令和元年6月3日現在

機関番号：22604

研究種目：基盤研究(C) (一般)

研究期間：2016～2018

課題番号：16K06388

研究課題名(和文) 誘電泳動アセンブリにおけるナノ粒子構造体の凝集制御および積層診断

研究課題名(英文) Aggregation control and stacking diagnostics of nanoparticle structures in a dielectrophoretic assembly

研究代表者

内田 諭 (Uchida, Satoshi)

首都大学東京・システムデザイン研究科・准教授

研究者番号：90305417

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 3,700,000円

研究成果の概要(和文)：本研究で得られた成果を以下に列挙する。

(1) ピット型3次元誘電泳動デバイスを数値モデル化し、諸操作条件における粒子挙動を模擬した。(2) 基板材料やプロセス工程を吟味し、実デバイスを試作するとともに、標準粒子や金ナノ粒子による泳動捕集状況を観測した。(3) 制御パラメータに対して、金ナノ粒子のピット内凝集量の変化を精査した。(4) インピーダンス計測装置を構築するとともに、積層量に対する理論的变化を検討した。(5) ピット内における粒子付着の均一性を確認し、深度変更デバイスを試作した。(6) 印加電圧および時間をパラメータ化して、固着溶融の閾値を導出するとともに、制御システムの安定性を検証した。

研究成果の学術的意義や社会的意義

申請者が発展的に整備したDEPVMおよびDEPIMは、アセンブリとの同時操作が可能であり、迅速性と簡易性に優れている。また、ナノ粒子構造体の形成後では計測が困難な、経時的な凝集量や積層状態を定量化するため、作成デバイスを非破壊で評価できる。

一般にDEPアセンブリは、媒質中の界面分極効果により、様々な誘電粒子や金属粒子の操作が可能であり、その適用性は極めて広い。また、電気的な能動制御であるため、粒子形成状態の再現性も高い。将来的に本システムにおける堆積制御法と積層診断法が確立されれば、超伝導材料や生体有機材料を含む様々な粒状薄膜形成への展開も期待できる。

研究成果の概要(英文)：The results obtained in this study are listed below.

(1) The pit-type three-dimensional dielectrophoretic device was numerically modeled to simulate particle behavior under various operating conditions. (2) We examined the substrate materials and process steps, and prototyped the actual device, and observed the dielectrophoretic collection behavior of standard particles and gold nanoparticles. (3) Changes in the amount of intra-pit aggregation of gold nanoparticles were investigated with respect to control parameters. (4) In addition to constructing an impedance measurement device, changes in the amount of lamination were examined theoretically. (5) The uniformity of particle adhesion was confirmed in the pit, and a different depth device was made on a trial basis. (6) The applied voltage and time were parameterized to derive the threshold of sticking and melting. Moreover, the stability of the control system was verified.

研究分野：静電気学、計測センサ工学、放電物理

キーワード：誘電泳動 アセンブリ ナノ粒子 セルオートマトン ピット 陽子線描画技術

様式 C - 19、F - 19 - 1、Z - 19、CK - 19 (共通)

1. 研究開始当初の背景

近年、ナノテクノロジーの高度化により、トップダウン的な基板プロセスとボトムアップ的な微粒子合成の技術融合が進んでいる。実際、微細電極アレイ上にナノ粒子群を配列した高感度触媒センサや表面増強光学素子が試作されている。このような実用に即した機能性ナノデバイスを高精度かつ効率的に形成するためには、対象ナノ粒子を各種基板へ精密に配置接合する支援システムが必須である。

一般的な微粒子の配列手法として、自己組織化やナノプリンティングなどがあるが、非対称・立体構造への配置及び固着には限界がある。そのため、最近では不均一電界下における分極微粒子の動電現象である誘電泳動 (dielectrophoresis: DEP) を利用したアセンブリ技術が注目されている。本手法では、粒子群を電氣的に分離輸送して凝集制御することにより、複雑な立体構造の形成が可能である。申請者らも陽子線描画技術 (proton beam writing: PBW) を用いて、高アスペクト比の極微細柱 (ピラー) 及び極微細孔 (ピット) を有するアセンブリリアクタを作製し、Ag ナノ粒子の3次元的固着や濃縮積層に成功している。

上記に示した DEP アセンブリを実デバイスの開発に応用する場合、形成構造体の積層構成、機械強度や電気物性を非破壊で定量的に評価する必要がある。しかしながら、泳動凝集した構造体を迅速かつ簡便に診断する手法は現在のところ確立されていない。

申請者らは、これまで誘電泳動による微粒子捕集及び計測に関する研究を行ってきた。特に、前研究課題では、微生物を泳動濃縮して迅速に計数する誘電泳動インピーダンス計測 (dielectrophoretic impedance measurement: DEPIM) や泳動対象の速度分布から電気定数 (誘電率及び導電率) を評価する誘電泳動速度計測 (dielectrophoretic velocimetry: DEPVM) を発展させ、一般微粒子群の凝集量、形状及び電気定数の経時変動を即時に把握できる新測定技法としての見通しを得た。以上から、ナノ粒子の立体アセンブリに対する定量的な積層診断にも前研究課題で確立したこれらの手法が応用できると判断した。

2. 研究の目的

本研究の目的は、泳動濃縮を利用した粒子アセンブリリアクタを試作して、ピット内における複合ナノ粒子群の凝集制御条件を検証するとともに、形成構造体の構造因子及び電気定数を迅速かつ簡便に把握可能な積層診断システムを構築することである。期間内 (3 年) における到達項目の詳細を以下に示す。

- (1) 数値シミュレーションにより、各ピット構造における粒子の輸送凝集特性を精査する。
- (2) 粒子アセンブリリアクタを試作し、設計仕様に対する泳動性能を評価する。
- (3) 画像計測から粒子凝集量を導出し、操作パラメータ (電圧振幅、周波数、流量) に対する凝集制御条件を特定する。
- (4) インピーダンス応答と積層状態 (構造因子・電気定数) との定量相関を検証し、検量線を策定する。
- (5) 上記の相関データに基づいて堆積量や均一性を最適化し、固着条件 (接着添加量または直流バイアス値) を設定するとともに、リアクタの仕様を再調整する。
- (6) 複合ナノ粒子の積層アセンブリを実施し、本診断システムにおける検量線から構造体の形成状態を検証する。

3. 研究の方法

本研究の遂行は、研究代表者及び2名の研究協力者 (本学大学院生及び非常勤職員) によ

って行われる。基本的には、内田が泳動システムの構築と凝集積層評価、ならびに研究全般の総括を行う。大学院生は泳動現象の数値解析に関連した研究に従事しており、解析補助員として適宜参画することで、より効率的な研究推進が見込まれる。非常勤職員は微粒子計測を専門とする技術員であり、微粒子の調整管理やインピーダンス計測のデータ処理を支援する。

平成28年度は予備的な研究期間と位置付け、標準粒子の輸送凝集過程を数値的に模擬するとともに、既存の実験装置を基本とした粒子アセンブリリアクタを試作する。具体的な研究項目を以下に示す。

数値シミュレーションによるナノ粒子凝集の挙動検証

アセンブリリアクタ内を想定した標準粒子の凝集挙動を申請者らが開発したセルオートマトン解析コードにより数値的に模擬する。ピット構造の違いに対する電界勾配及び誘電泳動カ分布を導出して輸送特性を整理するとともに、粒子間相互作用による経時的な凝集領域を特定する。

粒子アセンブリリアクタの試作評価

上記特性を参考にして、粒子アセンブリリアクタを試作する。電極基板及びピット材には、顕微計測に適した透明な酸化インジウム錫及びアクリル樹脂を用いる。ピット構造はPBW装置を用いたリソグラフィとウェットエッチング処理により形成する。標準粒子の泳動観察から、設計仕様におけるリアクタ性能を評価する。

平成29年度は、粒子アセンブリの評価基盤として泳動凝集量とインピーダンス応答を計測し、凝集制御条件の特定及び積層状態における定量的相関の検証を行う。

凝集量の画像計測及び凝集制御条件の特定

本課題における操作対象として、触媒作用が期待できる貴金属ナノ粒子(Ag及びAu。試験用ならびにプラズマ合成と誘電体ナノ粒子(TiO_2)を用いる。電圧振幅、周波数及び流量を制御パラメータとして粒子凝集量を画像解析し、各粒子種に対する支配的電気力(誘電泳動力、電気泳動力、電気浸透力、電熱体積力)の定量的変化を精査する。さらに、前年度に得られた数値解析結果と比較して、泳動集積の凝集制御条件を特定する。

インピーダンス応答と積層状態との定量相関

泳動濃縮された微粒子群の電極間インピーダンス値の経時変化を電流増幅器に接続したインピーダンスアナライザで計測し、電子顕微鏡観察により得られた積層構造との相関係数を導出する。また、積層後のインピーダンス値から電気特性を解析する。

平成30年度は、これまでの結果を踏まえ、複合ナノ粒子アセンブリの最適制御を行い、迅速かつ簡便な積層診断システムを構築する。

均一積層条件の最適化及びリアクタの仕様調整

前年度に得られた相関データを統計処理して、堆積量や均一性に対する制御パラメータを最適化するとともに、有機剤または直流バイアスによる固着条件を設定する。上記プロトコルに基づいて、リアクタの流路及び電極仕様を再調整する。

積層診断システムの性能評価

供給流量を変化させて、複合ナノ粒子の泳動集積におけるインピーダンス応答を精査する。さらに、本積層診断システムにおける検量線から積層構造体における形成状態を検証し、システムの推定性能を評価する。

平成28年度は予備的な研究期間と位置付け、標準粒子の輸送凝集過程を数値的に模擬するとともに、既存の実験装置を基本とした粒子アセンブリリアクタを試作することを主目的とし、【課題1】数値シミュレーションによるナノ粒子凝集の挙動検証、【課題2】粒子アセンブリリアクタの試作評価、を行った。

【課題1】において、微細孔を多数配置したピット型誘電泳動デバイスの微粒子捕集部分を数値的にモデル化した。捕集対象は100 nm径の金ナノ粒子とした。粒子挙動解析については、申請者らが作成した生体粒子捕集解析用のセルオートマトン解析コードに、ナノサイズを考慮した各種作用力を新たに取り入れた。本数値シミュレーションにおいて、強電界領域における微粒子の凝集が確認された。また、捕集割合に対する周波数依存性、構造依存性、電圧依存性、濃度依存性が数値的に導出された。サンプル実験との比較より、粒子挙動の定性的な妥当性も示された。

【課題2】において、電極基板及びピット材として、酸化インジウム錫 (ITO) 及びアクリル樹脂 (PMMA) を用いた。ピット構造は、芝浦工業大学が所有する陽子線描画装置を利用し、リソグラフィとウエットエッチング処理により形成した。標準粒子として金ナノ粒子を用意し、工業用光学顕微鏡上でリアルタイムの泳動観察を、また、凝集処理後の蒸着サンプルについて走査型電子顕微鏡観察を行った。印加電圧が10-20 V程度、処理時間が数十分以内において、ピット内の数ミクロン程度の深さまで凝集堆積物が形成された。ただし、過度な印加電圧や処理時間に対しては、特異な凝集形態が生じることも確認された。

平成29年度は、粒子アセンブリの評価基盤として泳動凝集量とインピーダンス応答を計測し、凝集制御条件の特定及び積層状態における定量的な相関を検証することを目的とし、【課題3】凝集量の画像計測及び凝集制御条件の特定、【課題4】インピーダンス応答と積層状態との相関検証、を行った。

【課題3】においては、前年度に試作したピット型3次元誘電泳動デバイスを量産化し、各種条件における金ナノ粒子群の凝集挙動を観測した。光学顕微鏡による凝集成長及び走査型電子顕微鏡による最終凝集物の観察から、媒質導電率や粒子濃度の変化に対して、ピット周辺の凝集均一性が大きく異なることが分かった。また、粒子の誘電泳動に適した低周波数での電圧印加では気泡が発生し、粒子捕集を妨げることが示された。そこで、高周波の操作電圧に直流のオフセット電圧を重畳することで、捕集の効率化を実現した。また、金ナノ粒子に対する支配的電気力 (誘電泳動及び交流電気浸透力) のデバイス内分布を算出し、ピット周辺における実際の凝集過程をモデル化した。

【課題4】については、ピット内に捕捉された金ナノ粒子群による微小インピーダンス変化量を検出するため、インピーダンスアナライザに電流増幅器を接続した積層量計測系の構築を行った。また、誘電泳動デバイスの電極間インピーダンスを検出するための閾値を等価回路から推定した。現行の装置要件においては、計測電圧振幅の増加、または電極間隔の減少が必要であることが示された。

平成30年度は、これまでの結果を踏まえ、複合ナノ粒子アセンブリの最適制御を行い、迅速かつ簡便な積層診断システムを構築することを目標に、【課題5】均一積層条件の最適化及びリアクタの仕様調整、【課題6】積層診断システムの性能評価、を検討した。

【課題5】に関しては、3次元誘電泳動デバイスのピット内における粒子付着の均一性を数値解析結果及び走査電子顕微鏡の実測により都度確認し、深度を変更したデバイスを試作した。

【課題6】に関しては、固着条件として、印加電圧値及び印加時間をパラメータ化して、固着溶融の閾値を顕微観察するとともに、電圧電流制御におけるシステムの安定性を検証した。

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕(計 3 件)

- ・ 内田 諭, 「高電界による液中微生物への動電作用」, 静電気学会誌, Vol. 41, No. 6, pp. 259-263 (2017)
- ・ 中河原 僚介, 内田 諭, 澁谷 泰一, 西川 宏之, 「誘電泳動アセンブリにおける金ナノ粒子ダイナミクスの数値シミュレーション」, 電気学会論文誌 E (センサ・マイクロマシ部門誌), Vol. 137, No. 4, pp. 107-114 (2017)
- ・ 石田高広, 白井直機, 内田 諭, 朽久保文嘉, 「誘電泳動速度計測による熱処理酵母の代謝評価 低温加熱における処理時間の影響」, 電気学会論文誌 E (センサ・マイクロマシ部門誌), Vol. 136, No. 12, pp. 505-510 (2016)

〔学会発表〕(計 13 件)

- ・ 丸山大貴, 内田 諭, 加藤滉大, 西川宏之, 「ピット型電極を用いた三次元誘電泳動における直流オフセット電圧の影響」, 平成 31 年電気学会全国大会講演論文集, Vol. 3, 3-190 p. 269 (2019 年 3 月 12-14 日)
- ・ 河嶋涼介, 内田 諭, 西川宏之, 「ピット型誘電泳動デバイスにおける交流電気浸透の効果の数値解析」, 平成 31 年電気学会全国大会講演論文集, Vol. 3, 3-189 p. 268 (2019 年 3 月 12-14 日)
- ・ 堀 貴嗣, 内田 諭, 朽久保文嘉, 青木仁史, 「誘電泳動インピーダンス計測を用いた芽胞形成菌の電気特性評価」, 平成 31 年電気学会全国大会講演論文集, Vol. 3, 3-152 p. 225 (2019 年 3 月 12-14 日)
- ・ 川村直弘, 内田 諭, 朽久保文嘉, 円城寺隆治, 脇坂嘉一, 高野雅代, 「3次元誘電泳動デバイスを用いた腫瘍細胞分離における給電線の影響」, 平成 31 年電気学会全国大会講演論文集, Vol. 3, 3-150 p. 223 (2019 年 3 月 12-14 日)
- ・ 川村直弘, 内田 諭, 朽久保文嘉, 円城寺隆治, 脇坂嘉一, 「3次元誘電泳動デバイスを用いた血中循環腫瘍細胞の分離検証 流路内速度分布の数値解析による最適分離条件の特定」, 第 35 回「センサ・マイクロマシンと応用システム」シンポジウム, 30am3-PS-67 (札幌, 2018 年 10 月 30 日-11 月 1 日)
- ・ 堀貴嗣, 内田 諭, 朽久保文嘉, 青木仁史, 「温度変化処理を施した食材付着菌のインピーダンス計測」, 静電気学会講演論文集 2018, 14aC-2, pp. 207-208 (東京, 2018 年 9 月 13-14 日)
- ・ 丸山大貴, 内田 諭, 澁谷泰一, 西川宏之, 「相乗動電効果による金ナノ粒子の効率的三次元アセンブリ」, 平成 30 年電気学会全国大会講演論文集, Vol. 3, 3-169, p. 245 (2018 年 3 月 14-16 日)
- ・ 佐藤健太, 内田 諭, 朽久保文嘉, 円城寺隆治, 脇坂嘉一, 「3次元誘電泳動デバイスにおける血中細胞分離の数値シミュレーション」, 平成 29 年電気学会全国大会講演論文集, Vol. 3, 3-110, p. 169 (2017 年 3 月 15-17 日)
- ・ 中河原僚介, 内田 諭, 澁谷泰一, 西川宏之, 「三次元誘電泳動デバイス内の金ナノ粒子群に対する作用力の定量比較」, 平成 29 年電気学会全国大会講演論文集, Vol. 3, 3-109, p. 168 (2017 年 3 月 15-17 日)
- ・ 高松 聡, 内田 諭, 朽久保文嘉, 「青色光照射酵母における誘電泳動速度と代謝状態の相関」, 平成 29 年電気学会全国大会講演論文集, Vol. 3, 3-108, p. 167 (2017 年 3 月 15-17 日)
- ・ 中河原僚介, 内田 諭, 澁谷泰一, 西川宏之, 「誘電泳動アセンブリにおける金ナノ粒

子ダイナミクスのシミュレーション」, 第 33 回「センサ・マイクロマシンと応用システム」シンポジウム, 25pm4-PS-004 (2016 年 10 月 24-26 日)

- ・ 佐藤健太, 内田 諭, 朽久保文嘉, 円城寺隆治, 脇坂嘉一, 「3 次元誘電泳動分離デバイスにおける細胞挙動の数値解析」, 静電気学会講演論文集 2016 ,30aC-2, pp. 127-132 (2016 年 9 月 29-30 日)
- ・ 加藤英子, 円城寺隆治, 内田 諭, 「多段式誘電泳動システムによる簡易細菌評価」, 日本防菌防黴学会第 43 回年次大会要旨集, p. 57, 26Pp-C05 (2016 年 9 月 26-27 日)

〔図書〕(計 0 件)

〔産業財産権〕

出願状況(計 0 件)

名称：
発明者：
権利者：
種類：
番号：
出願年：
国内外の別：

取得状況(計 0 件)

名称：
発明者：
権利者：
種類：
番号：
取得年：
国内外の別：

〔その他〕

ホームページ等

6 . 研究組織

(1)研究分担者

研究分担者氏名：

ローマ字氏名：

所属研究機関名：

部局名：

職名：

研究者番号(8桁)：

(2)研究協力者

研究協力者氏名：

ローマ字氏名：

科研費による研究は、研究者の自覚と責任において実施するものです。そのため、研究の実施や研究成果の公表等については、国の要請等に基づくものではなく、その研究成果に関する見解や責任は、研究者個人に帰属されます。