

令和 4 年 6 月 1 日現在

機関番号：12701

研究種目：基盤研究(B)（一般）

研究期間：2019～2021

課題番号：19H02039

研究課題名（和文）液滴操作によるマルチマテリアル微細3Dプリンティング技術の開発と応用

研究課題名（英文）Development and application of multi-material 3D microprinting based on droplet manipulation

研究代表者

丸尾 昭二（Maruo, Shoji）

横浜国立大学・大学院工学研究院・教授

研究者番号：00314047

交付決定額（研究期間全体）：（直接経費） 13,400,000円

研究成果の概要（和文）：本研究では、材料浪費とコンタミネーションの無いマルチマテリアル2光子造形法を開発した。本手法では、基板上に配置した複数の液滴材料を遠隔操作しながら、3D造形物を一体作製する。実験では、液滴を駆動する条件を最適化した。さらに、液滴の入れ替え時に造形基板の位置決めを高精度に行うために、フェムト秒レーザーによって硬化するボクセルを検出するオートフォーカス法を考案し、高精度な位置決めを実現した。そして、実際に複数種類の樹脂材料を用いてマイクロレンズやメタマテリアルを試作した。

研究成果の学術的意義や社会的意義

本研究では、次世代のものづくりのキーテクノロジーの一つである超高精細3Dプリンティング技術において、複数種類の材料を用いて、複雑な3D微小構造体を一体造形するマルチマテリアル3D造形法を実現している。マルチマテリアル3D造形法を用いることで、樹脂のみならず樹脂と金属の複合体も形成できることから、高性能マイクロレンズ、マイクロマシン、メタマテリアル、医療用足場など多様な応用デバイスを創製できるため、高付加価値製品の創出に大きく貢献することが期待できる。また、本手法で考案した液滴材料の遠隔駆動技術は、3D造形のみならず、化学合成・分析や表面修飾など幅広い分野への応用展開も期待できる。

研究成果の概要（英文）：In this study, we developed a multi-material two-photon lithography without material waste and contamination. In this method, multiple droplets of material placed on a glass substrate are remotely manipulated to fabricate a heterogeneous 3D microstructure. In our experiments, we optimized the experimental conditions of droplet manipulation. In addition, an autofocus method that detects a voxel polymerized by focusing a femtosecond laser was devised to achieve high-precision positioning of the glass substrate when replacing droplets. Then, microlenses and metamaterials were fabricated using multiple types of photocurable resins.

研究分野：アディティブ・マニュファクチャリング

キーワード：アディティブ・マニュファクチャリング 3Dプリンティング 光硬化性樹脂 マイクロ光学素子

## 1. 研究開始当初の背景

近年、3D プリンティング技術が急速に発展し、樹脂、金属さらにはセラミックスを用いて複雑な 3D 構造体を形成する多様な造形技術が開発されている。3D プリンティングの利点は、大型製造プロセスや金型技術を用いることなく、3D-CAD モデルから所望の 3D 構造体を直接造形できる点である。この利点を活かして、単なる部品の試作だけでなく、さまざまな機能を有する最終製品を迅速にオンデマンド製造することが期待されている。そのため、樹脂や金属などの単一材料からなる 3D 部品の作製だけでなく、複数の材料を組み合わせる機能デバイスを作製する研究が活発化している。これまでに、例えば、樹脂に電子部品を内蔵したセンサーや、3D セラミックス構造体に電気配線を付与した電子部品、特性の異なる材料を組み合わせる傾斜材料を駆使した機械部品などが試作されている。これらの製造工程は、従来法のように複数の加工プロセスを組み合わせることなく、組立工程も不要で機能デバイスを一括作製できる。このため、製品の微小化、加工精度の向上や製造コストの大幅削減など多くの利点がある。

このようなマルチマテリアル 3D 造形へのニーズは、マクロスケールの 3D 造形だけでなく、我々が研究開発を行ってきた微細な 3D 光造形の分野にも拡大している。例えば、我々は、光重合と光還元を組み合わせる樹脂と金属からなる微細な複合構造の一体造形 (Optics Express 16, 1174 (2008))、2 種類の樹脂を用いて作製した構造体のうち片方の樹脂のみを選択的に磁性体で被膜した磁気駆動マイクロマシンなどを実証している (Micromachines 8, Article No. 35 (2016))。しかしながら、これまで行われてきたマイクロレベルのマルチマテリアル 3D 造形では、造形物を形成した基板を取り外して洗浄した後に、再び造形装置に取り付けて、別の材料で造形するという作業が必要であり、材料を入れ換える作業の繁雑さと位置決め精度の問題があった。また、実際に造形物に使用する樹脂材料は、滴下した樹脂液滴の 1/10000 以下の量であり、貴重な樹脂材料の浪費も大きな課題となっていた。

## 2. 研究の目的

本研究の目的は、マイクロ光造形法に基づくマルチマテリアル造形法において、光硬化性樹脂の廃棄量を大幅に低減し、異種材料のコンタミネーションを抑制できる新たな造形手法を開発することである。具体的には、ごく最近、我々が考案した微小樹脂液滴を遠隔操作する方法を用いて、複数の材料を置換しながら造形物を一体作製できるマルチマテリアル 3D 造形法を開発する。このために、液滴駆動の特性を調査し、さまざま樹脂材料の駆動特性を明らかにする。そして、具体的な小用デバイスとして、複数の材料を用いて、高性能マイクロレンズやメタマテリアルなどの 3D 機能素子の創製を目指す。

## 3. 研究の方法

我々が開発する複数液滴を用いたマルチマテリアル造形法では、まず、ガラス基板上に複数の光硬化性樹脂および未硬化樹脂を洗浄するための洗浄液を配置する。そして、所望の樹脂液滴を造形エリアまで移動する。次に、ガラス基板下部からフェムト秒レーザーを集光・走査することで、2 光子マイクロ光造形法を行い、3D 微小構造体の一部を造形する。そして、この樹脂液滴を再び元に位置に移動させ、その後、洗浄液を同様に遠隔操作して、造形エリアに形成されている造形物を洗浄する。この工程を繰り返すことで、異種材料のコンタミネーションを抑制しながら、造形に用いる樹脂材料を再利用しながら、マルチマテリアル 3D 構造体を一体造形することができる。よって、従来法のように基板を取り外して、未硬化の光硬化性樹脂を洗浄・除去する工程が不要となるため、樹脂の廃棄量を大幅に低減できる。また、液滴状態の洗浄液に、造形物を含浸させるだけで、造形物周辺の未硬化の光硬化性樹脂を十分に洗い流すことができるため、異種材料のコンタミネーションも大幅に抑制できるという特徴がある。

## 4. 研究成果

本研究では、まず、複数種の光硬化性樹脂の液滴を移動させる駆動条件の探索を行った。この結果から、粘性の異なる樹脂 A、樹脂 B のいずれも駆動することができ、駆動速度は、粘性の低い樹脂 A のほうが、粘性の高い樹脂 B よりも大きくなることがわかった。また、未硬化樹脂を洗浄するための洗浄液も同様に駆動できることがわかった。

次に、液滴を移動し、樹脂の入れ替えを行った際に、造形位置のズレを最小化するために、光硬化性樹脂を点露光によって硬化させた硬化形状 (ボクセルと呼ぶ) の観察画像から、基板の光軸方向の位置を検出する独自のオートフォーカス手法を提案・開発した。図 1 に、本手法の概要を示す。本手法では、ガラス基板の内部からレーザーを照射し、徐々にガラス基板を下げながら、ボクセルの画像を取得し、開始直後のボクセルが現れていない画像との輝度値の変化を計測することで、ボクセルが基板上に現れた位置を決定する。図 2 は、100nm ずつ焦点を上昇させたときのボクセルの硬化形状の SEM 像と、そのときの硬化点の明視野像およびローパスフィルタ処

理を施したときの画像を示している。この結果から、ボクセルの高さが 250nm の時には、画像処理した画像において硬化点が現れていることがわかる。また、図 3 は、このときの画像の輝度値の合計と基準画像の輝度値の合計との差をプロットしたグラフである。この結果から、輝度値の合計の差を計測することでボクセルを検出できることがわかった。

そこで、本手法の有効性を確認するために、オートフォーカス機能の有無による造形物の違いを評価した。実験では、100 $\mu$ m 角のらせん状パターンを 25 個造形した。その結果、オートフォーカス機能を使わない場合には、基板の傾きによって一部しか造形できなかった (図 4(a))。一方、オートフォーカス機能を用いて、造形毎に焦点位置を検出して造形することで、25 個のパターンをすべて造形できることを確認した (図 4(b))。この結果から、本手法を用いることで、複数回の材料入替を行った場合でも位置ずれなく高精度な 3D 造形が可能となる。

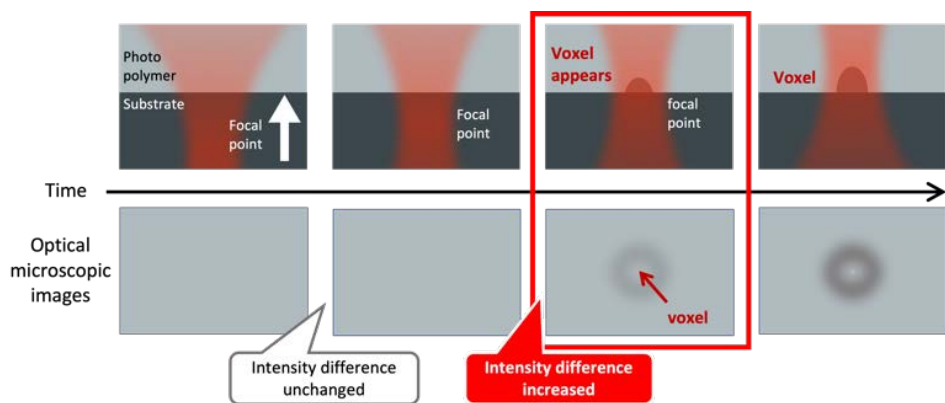


図 1 焦点近傍の画像からボクセルを検出する方法

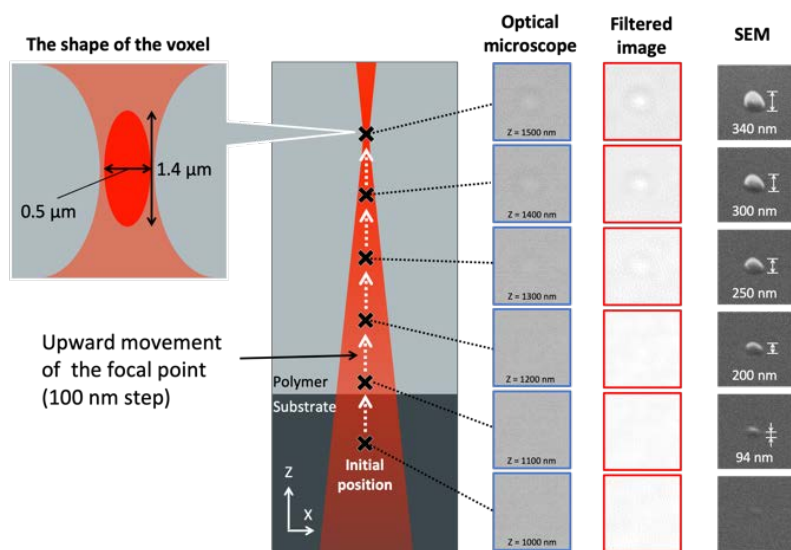


図 2 焦点を移動させながら形成したボクセル画像と硬化したボクセルのSEM像

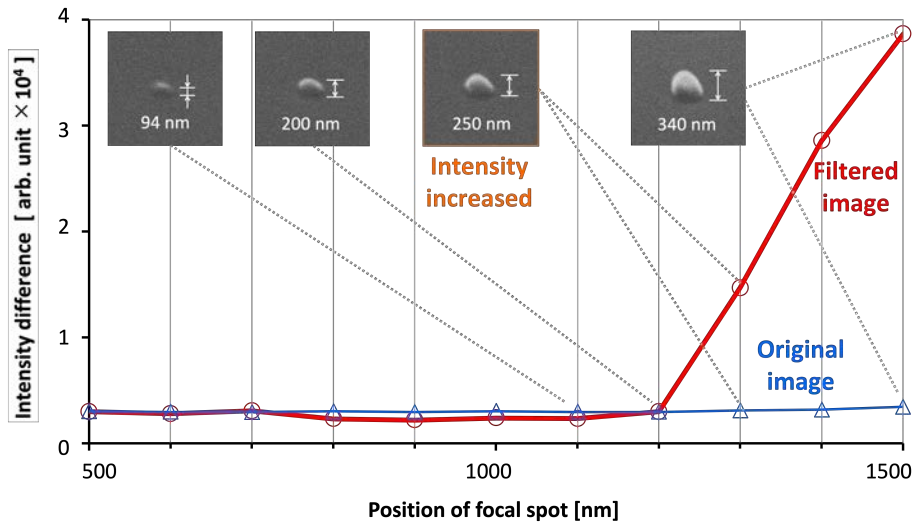


図3 ボクセル画像の輝度値合計の差を計測した結果

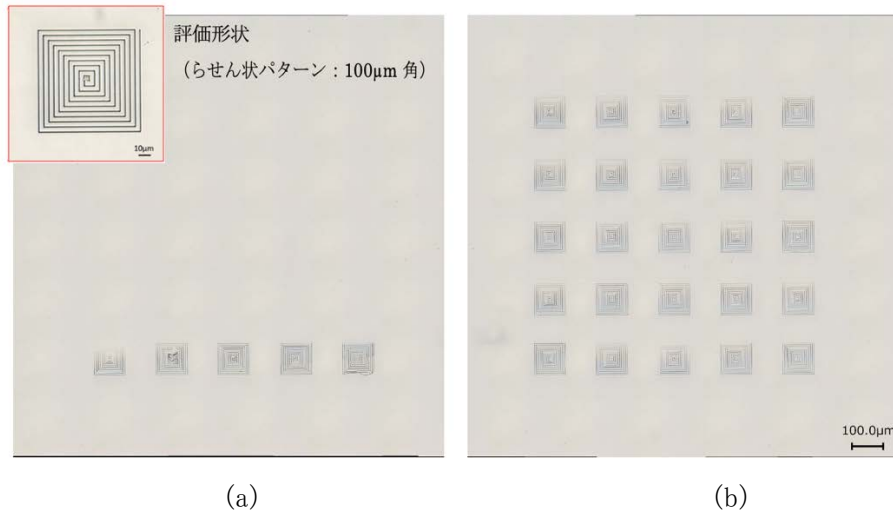


図4 オートフォーカス機能の有無によるらせん状パターンの造形結果  
 (a) オートフォーカス機能なしの造形結果(5個目以降は造形に失敗)  
 (b) オートフォーカス機能ありの造形結果(25個すべてが造形できている)

最後に、構築したマルチ材料2光子造形装置とオートフォーカス機能を用いて、屈折率の異なる樹脂を用いてマイクロレンズを試作し、光学特性を評価した。また、2種類の樹脂を用いてメタ材料のプロトタイプを試作も行った。今後、本技術は、フォトニクス、メタ材料、マイクロマシンなど幅広い応用が期待できる。

## 5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計4件（うち査読付論文 1件/うち国際共著 0件/うちオープンアクセス 1件）

1. 著者名 丸尾昭二	4. 巻 56
2. 論文標題 マイクロ光造形による3次元セラミックス構造の作製と応用	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 セラミックス	6. 最初と最後の頁 714-717
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） なし	査読の有無 無
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 丸尾昭二	4. 巻 87
2. 論文標題 3Dプリンテッド・マイクロマシンの進展	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 精密工学会誌	6. 最初と最後の頁 734-739
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.2493/jjspe.87.734	査読の有無 無
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 丸尾昭二	4. 巻 65
2. 論文標題 マルチマテリアル光造形法の進展	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 日本機械学会 計算力学部門ニュースレター	6. 最初と最後の頁 34-37
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） なし	査読の有無 無
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 Fujishiro Yoko, Furukawa Taichi, Maruo Shoji	4. 巻 28
2. 論文標題 Simple autofocusing method by image processing using transmission images for large-scale two-photon lithography	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 Optics Express	6. 最初と最後の頁 12342 ~ 12342
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1364/OE.390486	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスとしている（また、その予定である）	国際共著 -

〔学会発表〕 計16件（うち招待講演 12件 / うち国際学会 4件）

1. 発表者名 丸尾昭二
2. 発表標題 マイクロ・ナノ3Dプリンティングの最新動向：新技術・新材料による革新的な3Dプリント製品の創出
3. 学会等名 TCT Japan カンファレンス（招待講演）
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 丸尾昭二
2. 発表標題 マイクロ3Dプリンティングの進展：基礎からマイクロマシン・フォトニクス応用まで
3. 学会等名 次世代センサ・アクチュエータ委員会 第24回定期講習会（招待講演）
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 丸尾昭二
2. 発表標題 レーザー・マイクロ3Dプリンティング：基礎と最新動向
3. 学会等名 光とレーザーの科学技術フェア 2021（招待講演）
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 丸尾昭二
2. 発表標題 マイクロ光造形技術の進歩と将来展望：光硬化性材料と造形法の多様化による高付加価値製品の創出
3. 学会等名 日本3Dプリンティング産業技術協会 材料研究会（招待講演）
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 丸尾昭二
2. 発表標題 アディティブ・マニファクチャリングによる次世代ものづくり
3. 学会等名 日本機械学会 2021年度 年次大会（招待講演）
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 丸尾昭二
2. 発表標題 ガラスとセラミックス材料を用いたマイクロ光造形技術の進展
3. 学会等名 公益社団法人日本セラミックス協会「第34回秋季シンポジウム」（招待講演）
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 丸尾昭二
2. 発表標題 マイクロ3D造形技術の進展
3. 学会等名 第95回レーザ加工学会講演会（招待講演）
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 丸尾昭二
2. 発表標題 マイクロ光造形によるガラス・セラミックス3D構造体の作製
3. 学会等名 一般社団法人ニューガラスフォーラム「第1回 評価技術研究会」（招待講演）
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 丸尾昭二
2. 発表標題 Multi-material 3D Printing using Photopolymers
3. 学会等名 The 38th International Conference of Photopolymer Science and Technology (ICPST-38) (招待講演) (国際学会)
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 丸尾昭二
2. 発表標題 Additive Manufacturing of Ceramic Structures at the Micrometer Scale
3. 学会等名 8th International Congress on Ceramics (ICC8) (招待講演) (国際学会)
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 丸尾昭二
2. 発表標題 レーザー光を用いたマイクロ・ナノ3Dプリンティング技術の進展
3. 学会等名 レーザー学会 学術講演会 第40回年次大会 (招待講演)
4. 発表年 2020年

〔図書〕 計0件

〔出願〕 計2件

産業財産権の名称 造形装置、液滴移動装置、目的物生産方法、造形方法、液滴移動方法、造形プログラムおよび液滴移動プログラム	発明者 丸尾昭二、平田穂高、古川太一	権利者 同左
産業財産権の種類、番号 特許、PCT/JP2020/009634	出願年 2021年	国内・外国の別 外国

産業財産権の名称 造形装置、液滴移動装置、造形方法、液滴移動方法、造形プログラムおよび液滴移動プログラム	発明者 丸尾昭二、平田穂高、古川太一	権利者 同左
産業財産権の種類、番号 特許、2019-158495	出願年 2019年	国内・外国の別 国内



〔取得〕 計1件

産業財産権の名称 造形装置、液滴移動装置、目的物生産方法、液滴移動方法及びプログラム	発明者 丸尾昭二、久保田 将、古川太一	権利者 同左
産業財産権の種類、番号 特許、特許第7039057	取得年 2022年	国内・外国の別 国内

〔その他〕

-

6. 研究組織

氏名 (ローマ字氏名) (研究者番号)	所属研究機関・部局・職 (機関番号)	備考
---------------------------	-----------------------	----

7. 科研費を使用して開催した国際研究集会

〔国際研究集会〕 計0件

8. 本研究に関連して実施した国際共同研究の実施状況

共同研究相手国	相手方研究機関
---------	---------