

令和 4 年 6 月 10 日現在

機関番号：12601

研究種目：挑戦的研究（萌芽）

研究期間：2019～2021

課題番号：19K21913

研究課題名（和文）空間局在光場並列制御によるナノ除去加工分解能・新概念光励起加工法の挑戦

研究課題名（英文）Challenge of New Concept of Photo-Excited Nano-Removal Processing by Parallel Control of Spatially Localized Light

研究代表者

高橋 哲（Takahashi, Satoru）

東京大学・先端科学技術研究センター・教授

研究者番号：30283724

交付決定額（研究期間全体）：（直接経費） 4,900,000円

研究成果の概要（和文）：レジスト微細形状やソフトマテリアルに対して10nmスケールの微小加工分解能での除去修正加工が実現できれば、マイクロマシニング分野に大きな波及効果が期待できる。本研究ではそのような新しい加工法の実現を目指して、空間光場制御・フォトン励起型マイクロ加工ツールの作成方法を検討した。新しくマイクロレジンを光放射圧で制御することで、マイクロ加工ツールのコアユニットが作成可能であることがわかった。

研究成果の学術的意義や社会的意義

本研究の実現により、例えば、微細レジスト構造の修正加工が可能となる。これにより、エラーがあった形状を捨てることなく、活用できたり、あるいは通常のプロセスでは加工できないような、複雑三次元形状の創成が可能となり、マイクロ生産工学として意義深い。

研究成果の概要（英文）：The realization of removal and correction processing of resist microtopography and soft materials with a micromachining resolution of 10 nm scale is expected to have a significant ripple effect in the field of micromachining. In this study, we investigated a method of creating a spatial light-field-controlled and photon-excited micro-machining tool to realize such a new machining method. It was found that the core unit of the microfabrication tool can be fabricated by controlling the microresin with optical radiation pressure.

研究分野：ナノ・マイクロ光加工・計測

キーワード：ナノ・マイクロ加工 レーザートラップ 空間局在光場制御 放射圧並列制御

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、研究者個人に帰属します。

## 1. 研究開始当初の背景

レジスト微細形状やソフトマテリアルに対して 10nm スケールの微小加工分解能での除去修正加工が実現できれば、マイクロマシニング分野に大きな波及効果が期待できる。本研究では、光エネルギーが本質的に有している、優れた空間エネルギー分布のリモート制御性、並列制御性、高速制御性に、光触媒ナノ粒子を先端チップとする新しい概念のフォトン励起型マイクロ加工工具を融合させ、「究極の微小加工エネルギー媒体」といえる電子を、三次元空間内の所望位置に、直接作用させることが可能な空間光場制御・フォトン励起型マイクロ加工法の実現を目指している。特に本申請研究では、空間光場制御・フォトン励起型マイクロ加工を実現する上で最も重要な位置付けを有する空間光場制御マイクロ加工ツール母体の作成に着目して、新しいマイクロ粒子複合体の適用を提案するとともに、その有効性の実証を進めた。

## 2. 研究の目的

図 1 に上述の背景で記載した空間光場制御マイクロ加工ツールの模式図を示す。液相中において、複数の 10 $\mu\text{m}$  程度の誘電体微粒子を組み合わせることで構成されている母体に対して、光放射圧レーザトラップの並列制御を施すことで、ツールの三次元位置、姿勢をコントロールすることが可能となる。これにより、10nm 先端径を有する酸化チタンナノ粒子群（工具チップ）を、被加工物の任意箇所に適用し、工具チップ先端の光触媒部励起反応を用いて対象への微細加工を行う。本申請研究においては、提案加工ツールを実現する上で、最も重要な誘電体微粒子の複合体作成について、マイクロレジンを用いる新手法を提案し、その有効性を確認する。

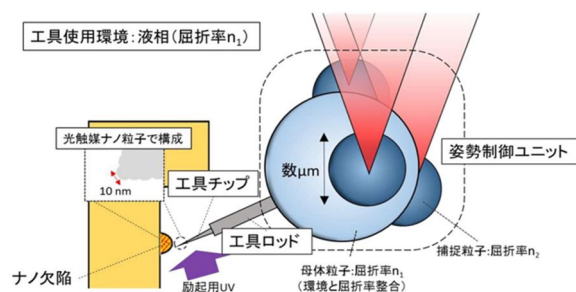


図 1 空間光場制御・フォトン励起型マイクロ加工ツール<sup>1)</sup>

## 3. 研究の方法

本申請研究では、提案加工ツールの複合誘電体マイクロ粒子として、新たに、マイクロレジンの適用を提案する。すなわち、液状の硬化前のレジンを微細化し、マイクロレジンを生じ、これを材料として、光放射圧制御および UV 硬化制御を施すことで、マイクロ誘電体粒子群としてマイクロ加工ツール複合体の創成を行うものである。特に本研究では、マイクロレジンの作成ならびに、それらに対して光放射圧を用いて、並列制御、トラップ中固化、粒子複合組み立てが、実現できるのかを実験的に実証する。

## 4. 研究成果<sup>1), 2)</sup>

マイクロレジンの生成手法にはマイクロ流路を用いる方法やインクジェット法などがあるが、本研究では簡便性の観点で攪拌による生成を行った。光硬化性樹脂 (IB-XA) に重合開始剤 (Irgacure TP0) の粉末を加え、攪拌機で攪拌して開始剤を溶解させ、次にその液塊をマイクロピペットで水中に注入し、そこに水溶させた界面活性剤 (0.3  $\mu\text{M}$  Sodium Laurate) を添加して再び攪拌機で攪拌させた。攪拌後の液体を少量とり、顕微鏡で観察した。マイクロレジン水中で様々な径をもって安定的に存在していた。なかでも小さいものの直径は 10  $\mu\text{m}$  以下で、本研究で活用可能なサイズ帯も多様に生成できることがわかった (図 2: 光学顕微鏡観察画像)。

マイクロレジン光放射圧で駆動した様子を図 3 に示す。マイクロレジン A を光放射圧により、マイクロレジン B まで移動させた (図 3(a))。すると、マイクロレジン B が反発をする (図 3(b)) 様子が観察された。これより、硬化用レーザを照射しない状態では、マイクロレジン同士が接触しても接着や合は起こらないことが確認された。次にマイクロレジン一つをトラップした状態で、硬化用レーザを照射した (図 4)。照射から約 2 分間で図 4(a) から図 4(b) のように、マイクロレジン内部で不均一化する様子が観察された。また、図 4(b) では、偶然、実験中に別

のマイクロレジンがトラップされている様子が確認される．照射実験終了後に顕微観察を行うと，硬化プロセス中にトラップされたマイクロレジンも一体となった形で硬化されていることが確認された（図 4(c)）．

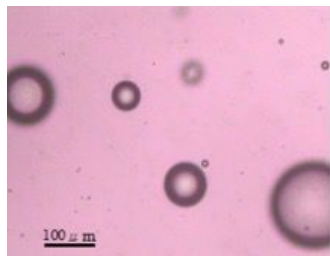


図 2 分散に成功したマイクロレジン群<sup>1)</sup>

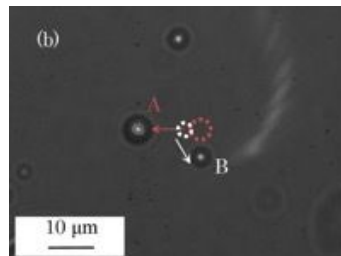
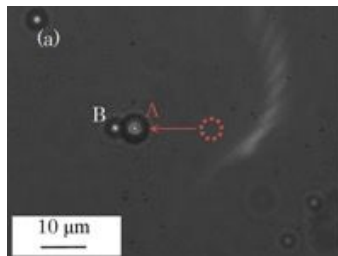


図 3 硬化用レーザー未照射時にはマイクロレジン反発する<sup>1)</sup>

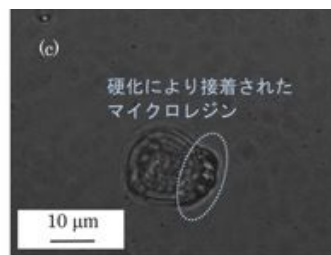
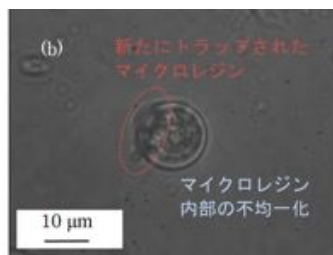
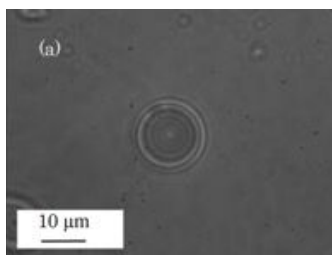


図 4 硬化用レーザー照射時の様子<sup>1)</sup> (a) 照射開始1.5分後，(b)照射開始2分後，(c)16分間照射終了後

以上の基礎実験知見に基づき，ガルバノミラー制御システムとリレーレンズ光学系による空間複合光圧場生成制御ユニット，作業空間を拡大観察可能な無限遠補正型顕微ユニット，および顕微拡大観察像内のマイクロ部品把持・搬送をその場で指示可能な空間複合光圧場制御インターフェース等を統合した，光ピンセット・レジン把持制御接着実験システムを構築した（図 5）．トラップ用の光源としては，近赤外レーザー（波長 976 nm，強度 280 mW）を採用し，水浸対物レンズ（NA 1.25， $f = 3$  mm）を用いてサンプルセル内に集光スポットを生成する．この集光スポットは，ガルバノミラーPC 制御により，セル内を任意に走査可能であり，液相中の粘性を活用することで，タイムシェアリング方式のマルチトラップを実現した．また，セル内空間における，選択的な光重合反応を実現するために，サンプル上面から対物レンズ（NA 0.25， $f = 20$  mm）を用いて，波長 405 nm の樹脂硬化用 UV レーザーを照射可能な設計となっている（本実験においては，硬化用レーザーは， $74 \mu\text{m} \times 58 \mu\text{m}$  の観察視野のうち， $50 \mu\text{m}$  エリアを UV 硬化領域とした．具体的には，ビーム径約  $50 \mu\text{m}$  になるようにデフォーカスし， $\sim 40\text{-}80 \text{ W/cm}^2$  で照射する）．実験では，Labview プログラムによって，ガルバノミラーによるタイムシェアリング方式のマルチトラップ，UV レーザーの露光時間を制御するシャッター等を統合管理し，リアルタイム顕微観察を行った．

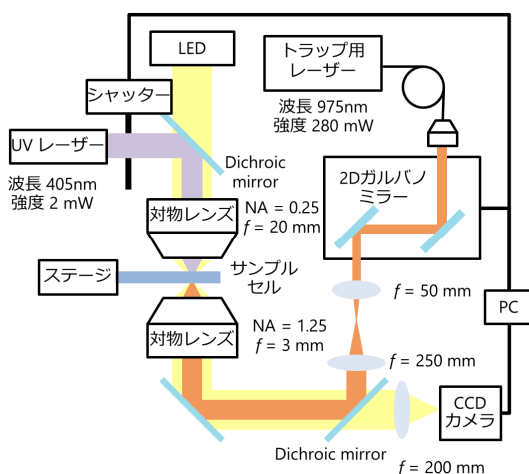


図 5 レジン液滴接着実験に用いた光ピンセット実験装置<sup>2)</sup>

マイクロレジン液滴の接着実験の観察結果を図 6 に示す．まず，2 つの  $8 \mu\text{m}$  液滴で， $3.5 \mu\text{m}$  の液滴を挟むように，光ピンセットで配列した．そして，接着・硬化のために UV レーザーを 8 s 露光した結果 ( $t = 13\text{s}$ ) 液滴は硬化収縮に伴って，真円からの歪んだため重合反応が開始したことが確認できる．つぎに，3 つのうちの右の粒子のトラップ位置を固定し，中央の粒子を光ピンセットでドラッグすることで接着ができているかどうかを確認した．その結果， $t = 15 \text{ s}$  では，3 つの液滴の位置関係を維持したまま回転の様子が確認されたため，接着している様子が確認

できた。しかし、その後 50 秒間露光したレジン液滴を静置すると、液滴の形状が歪んだ円から真円に近づいてく様子が確認できた。この変形のメカニズムを明らかにするために、実験時の観察視野内右上の単一液滴を対象として、画像処理による解析を行った。図 6 で示した液滴に対して、伸長指数  $Q$  を  $Q = 1 - w/h$  と設定して液滴の硬化や静置に伴う歪み変化量を評価した。ここで、 $w$ ,  $h$  はそれぞれ液滴の高さ、幅として、 $Q = 0$  に近づくほど真円形状となり、歪みによって真円からずれると  $Q = 0$  から離れる。図 7 に示した解析結果から、露光前のレジン液滴は  $Q = 0.015$  程度でありほぼ真円状である。しかし、 $t = 5$  s で露光が開始されると 2 s 以内に  $Q = 0.06$  に増加している。これは、高強度の UV レーザーの照射によって、瞬間的に重合反応が進んだ事によって、硬化収縮に伴う内部応力で形状が歪んだと考えられる。UV 露光後、 $Q$  は低下し続けて露光終了から 35 s 後の  $t = 50$  s では、露光前と同程度まで円形に近づいている。この解析結果から、この時点ではモノマーの硬化反応は完了しておらず、ゲル状になっていたため、時間経過に伴って内部応力の緩和が生じたため変形したと考えられる。また、光ピンセットによって接着されたビーズの駆動結果から、露光直後は一時的に 3 つの液滴が硬化・接着されて一体化した剛体のように振る舞うが、ゲルの応力緩和に伴って液滴同士が自由に回転した。この結果から、瞬間的な硬化によってレジン液滴間で重合反応が進んだと考えられるが、ゲルの粘弾性によって応力緩和とともに、ゲル同士の回転が可能になったと考えられる。また、その後硬化レーザーを 30 s 露光した結果、液滴はそれ以上変形が見られず、液滴間の接着状態が維持された。このことから、ゲル状態の液滴に十分な光量で露光することで、完全に重合反応が進み、固体状になることが確認できた。

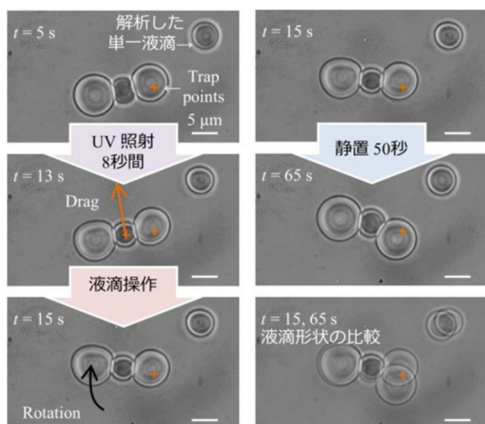


図 6 レジン液滴接着実験<sup>2)</sup>

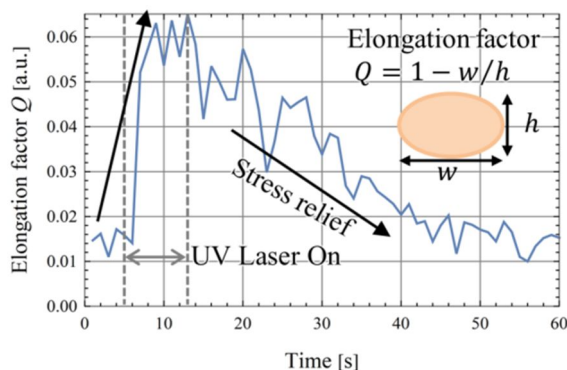


図 7 レジン液滴の伸長指数  $Q$  の変化<sup>2)</sup>

以上より、マイクロレジンの作成ならびに、それらに対して光放射圧を用いて、並列制御、トラップ中固化、粒子複合組み立てが可能であることを実験的に実証した。本研究で開発した技術により、アプリケーションに応じて変更することが期待される様々な把持特性を有した空間光場制御マイクロ加工ツールの実現が期待される。

参考文献：

- 1) 福井，増井ほか：2020 年度精密工学会春季大会学術講演会講演論文集，802-803,2020
- 2) 増井ほか：2021 年度精密工学会秋季大会学術講演会講演論文集，389-390, 2021

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計0件

〔学会発表〕 計6件（うち招待講演 1件 / うち国際学会 2件）

1. 発表者名 圓道和奏, 増井周造, 門屋祥太郎, 道畑正岐, 高橋哲
2. 発表標題 局在光制御によるセルインマイクロファクトリに関する基礎的研究(第6報) - 光放射圧遠隔操作による一体化連結構造の創成 -
3. 学会等名 2021年度春期精密工学会学術講演会
4. 発表年 2020年 ~ 2021年

1. 発表者名 福井 健太, 増井 周造, 道畑 正岐, 高増 潔, 高橋 哲
2. 発表標題 局在光制御によるセルインマイクロファクトリに関する基礎的研究(第5報) - マイクロレジンの空間位置制御によるマイクロ粒子アセンブリ -
3. 学会等名 2020年度春期精密工学会学術講演会
4. 発表年 2019年 ~ 2020年

1. 発表者名 Shuzo Masui, Wakana Endo, Shotaro Kadoya, Masaki Michihata, Satoru Takahashi
2. 発表標題 Optical adhesion of photocurable emulsion droplets using laser trapping
3. 学会等名 SPIE Optics + Photonics 2021 ( (国際学会) )
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 増井 周造, 門屋 祥太郎, 道畑 正岐, 高橋 哲
2. 発表標題 局在光制御によるセルインマイクロファクトリに関する基礎的研究 (第7報) - マイクロレジジン液滴の硬化モニタリング -
3. 学会等名 2021年度精密工学会秋季大会学術講演会
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 S. Takahashi
2. 発表標題 Challenge of nano optical technology beyond the diffraction limit for nano/micro manufacturing
3. 学会等名 The 7th International Conference on Nanomanufacturing ( (招待講演) (国際学会) )
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 増井 周造, 門屋 祥太郎, 道畑 正岐, 小阪 高広, 山口 哲志, 岡本 晃充, 高橋 哲
2. 発表標題 局在光制御によるセルインマイクロファクトリに関する基礎的研究 (第8報) - ストレプトアビジン, ピオチン相互作用を用いたマイクロ粒子接着 -
3. 学会等名 2022年度精密工学会春季大会学術講演会
4. 発表年 2022年

〔図書〕 計0件

〔産業財産権〕

〔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
研究 分担者	道畑 正岐  (Michihata Masaki)  (70588855)	東京大学・大学院工学系研究科(工学部)・准教授   (12601)	
研究 分担者	西川 正俊  (Nisikawa Masatoshi)  (30444516)	法政大学・生命科学部・准教授   (32675)	

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
---------	---------