

平成 30 年 6 月 18 日現在

機関番号：12608

研究種目：挑戦的萌芽研究

研究期間：2016～2017

課題番号：16K14143

研究課題名(和文) 静電レンズアレイを用いたナノ・マイクロパターニングと神経細胞ネットワークへの応用

研究課題名(英文) Nano / micro patterning using an electrostatic lens array and its application to neural cell networks

研究代表者

金 俊完 (KIM, Joon-wan)

東京工業大学・科学技術創成研究院・准教授

研究者番号：40401517

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 2,800,000円

研究成果の概要(和文)：ステンシルマスクを用いたエレクトロスプレーデポジション(ESD)法は、生体/有機高分子材料を広範囲にマイクロパターニングできるため注目されている。しかし、ステンシルマスク穴のナノ加工は難しく、粒子が詰まる可能性も高いためパターンの微細化には限界がある。本論文では、ESD法と静電場の制御が可能なステンシルマスクを用いた新たなパターニング手法を提案し、ステンシルマスク穴より小さいパターニングやパターンサイズの制御を目的とする。磁性体と絶縁体からなるステンシルマスクと磁力によるギャップ変化を用いた制御法、および、静電レンズを有するステンシルマスクと印加電圧の変化を用いた制御法を明確にした。

研究成果の概要(英文)：Electrospray deposition (ESD) through a stencil mask has attracted attention, because it is a high-speed patterning of bio/organic polymer materials over large areas and with high resolution and based on completely-dried nanoparticles of them. However, it is difficult to generate nanopatterns due to the clogging of holes in the stencil mask. This paper proposes novel ESD methods to form patterns smaller than the stencil mask holes by utilizing a MEMS-fabricated microstencil mask to control the electrostatic field.

Two different approaches are proposed in this paper: (1) to control the gap between the stencil mask and the substrate by using magnetic force; and (2) to control the electric field line by changing applied voltages. We conceived novel MEMS fabrication processes and successfully fabricated both of microstencil masks. The patterning results with the proposed microstencil mask showed that the feasibility of two proposed methods to generate smaller patterns than the mask holes.

研究分野：マイクロメカトロニクス

キーワード：静電気力 ステンシルマスク MEMS

1. 研究開始当初の背景

脳は、構成する細胞が単独で働くのではなく、電気信号を発生して情報をやりとりする神経細胞ネットワーク(神経回路)として機能する。一つの神経細胞は、(a)細胞体(cell body)、(b)軸索(axon)、(c)樹状突起(dendrites)などで構成され、別の神経細胞とつながり合い、複雑なネットワークを形成している。そのため、相手と結合する機構(標的認識制御)、情報伝達を調整する機構(シナプス制御)、ネットワークを動作させる機構(ネットワーク制御)が脳機能に重要な役割を果たしている。神経細胞は生体内で感覚器や効果器など多様な細胞と結合し、シグナル解析が困難な複雑なネットワークを形成しているために、機能を理解するには細胞体と突起部を空間的に分離させ、多数の神経細胞をアレイ状に整列させることで単純化させる必要がある。今までに生体試料を基板表面の任意の位置に固定化させる方法は、Micro Spotting, Inkjet Printing, Screen Printing, Micro Contact Printing など数多く報告されているが、生物活性を維持し乾燥した状態で基板上に固定できるとともに、マイクロメートルからナノメートルのサイズまでの広範囲でパターンができる手法は未だに実現されていない。

2. 研究の目的

新しいナノ・マイクロパターンニング技術の要求条件は、ドライパターンニングプロセス(乾燥した微粒子による一様・均一なパターンが可能である。また、高速乾燥による生体高分子の活性にも有利である); 低温・低熱プロセス(熱で失活・分解するサンプルでもパターンニング可能である.); ダイレクト・パターンニングプロセス(エッチングなどのプロセスがなくバイオ材料との適合性がある。) 高分解能プロセス(集積度を高められるようにナノ・マイクロメートルの分解能が得られるパターンニング技術が必要である。)であり、これらを満たすナノ・マイクロパターンニングシステムを実現するを研究目的とし、(1)微小な液滴が噴霧される静電霧化装置によるドライプロセスと(2)電場を変えるマイクロ静電レンズアレイによる微細パターンニングを融合することを提案する。静電霧化によるパーティクル固定化は、溶液に高電圧をかけてノズル先端から微小液滴を生成し、乾燥したパーティクルを基板上に静電気で誘導して、ステンシルマスクの穴を通してパターンニングする方法である。(A)ノズルからの微小液滴の直径は数マイクロメートル以下であり 1ms 以下で完全乾燥すると考えられるので基板でのパターンニングはドライになる。(B)熱源がないプロセスであり、(C)静電気で誘導されるダイレクトパターンニングである。また、(D)電圧印加により電場が変更できる静電レンズを新たに考案することで、ステンシルマスクの穴より小さいパターンニングが可能である。

3. 研究の方法

マイクロステンシルマスクの穴よりも小さいパターンニング、および、パターンニングのサイズ制御が可能で、静電場の制御を用いた本研究課題で提案する新たなパターンニング方法は大きく二種類に分けることができる。(1)磁性体絶縁マスクとギャップの変化による制御法: 磁性材料であるニッケル構造体を有する絶縁マスク(以下、磁性体絶縁マスクと呼ぶ。)を製作し、基板上に設置した磁性体絶縁マスクを、磁石を用いて基板裏側から固定する方法を提案する。磁石の表面磁束密度を変化させることで、磁性体絶縁マスクの基板への吸着力を変化させ、基板マスク間ギャップを制御することができる。MEMS技術を用いて磁性体シャドウマスクと絶縁体マスクを組み合わせた磁性体絶縁マスクを製作する。磁性体としてのニッケルは厚さがおよそ 10 マイクロメートル、絶縁体としてのSU-8は厚さがおよそ 50 マイクロメートルにする。磁性体絶縁マスクの外形は 10mm 角であり、中心部には幅がおよそ 0.5mm のライン&スペースのパターン穴を設ける。(2)静電レンズマスクと印加電圧の変化による制御法: 静電レンズ機構を有するステンシルマスク(以下、静電レンズマスクと呼ぶ。)を製作し、パターンサイズを制御する。この静電レンズマスクを基板上に設置し、各電極層にそれぞれ異なる電圧(V1, V2, V3)を印加することで、電気力線が形成され、ESD法によりスプレーされた帯電粒子は電気力線に沿って落下し堆積する。この時、印加電圧の組み合わせを変える(V1, V2, V3)ことで、静電場は変化し、堆積する領域を制御することができると考えられる。静電レンズマスクの各電極は絶縁体で覆い、電極間の放電を起こさずに高電圧を印加できるようにしている。また、この絶縁体がチャージアップしてしまうことを防ぐために、ESD法によるスプレー開始以前に静電レンズマスクに電圧を印加し静電場を形成しておくことで、絶縁体に粒子を堆積させず、チャージアップによる電場の変化が起こらない。

4. 研究成果

(1)磁性体絶縁マスクとギャップの変化による制御法: ESD法と絶縁体シャドウマスクを用いたパターンニングにおいて、ギャップが変化するとパターンサイズが変わる現象を用いて、磁石により ESD パターンのサイズを制御することを試みた。下記の MEMS 技術を用いて磁性体シャドウマスクと絶縁体マスクを組み合わせた磁性体絶縁マスクを製作した。シリコン基板上にチタンを蒸着し、シードレイヤを成膜する。ニッケルめっき用 KMPP 鋳型を製作する(磁性体部)。ニッケルめっきを行う(磁性体部)。ニッケルめっき用 KMPP 鋳型を全て除去する。シリコンエッチングによりシャドウマスクをは

く離させる。カバーガラスの上で SU-8 をスピコートする(絶縁体部)。SU-8 をパターンニングする(絶縁体部)。磁性体絶縁マスクを基板からはく離する。このプロセスで製作した磁性体絶縁マスクを ESD 法によるパターンニングに応用した。基板とキャピラリの距離はおよそ 15mm, スプレー時間は 10 分で一定とした。ギャップの大きさは、実験中に測定することが困難であるため事前に測定した値である。実験中に測定することが理想である理由としては、スプレーにより絶縁層が帯電し、絶縁層とアース接続した基板とが静電気力により引き付けあいギャップが変化してしまうことが考えられたためである。この対策として、絶縁層の帯電を抑えるためにスプレー時間を 10 分と短く設定した。また、実験直後にギャップを測定した結果、事前に測った値とほとんど変わらなかったため、測定誤差も考慮し、スプレー時間が 10 分の場合、帯電の効果は無視できると結論付けた。次に、ステンシルマスクの固定方法について述べる。ステンシルマスクが平らな場合には、使用できるもっとも表面磁束密度が小さい 0.05T の磁石でも著しいギャップの低減が見られ、使用できるもっとも表面磁束密度が大きい 0.145T の磁石とのギャップの変化がごくわずかであった。これは今回使用したステンシルマスクのように下に凸の形状をしたものに対して同様であった。ギャップの測定結果、中心部では測定誤差もあるが、ほとんどギャップ変化がないことがわかる。これは凸である中央部が真っ先に基板に触れてしまうためであると考えられる。したがって、意図的にギャップができるよう、ステンシルマスクの一端を予めカプトンテープで基板に固定しておくこととした。

まず初めに、磁性体絶縁マスクを 0.145T の磁石で固定したものにスプレーを行った。形成されたパターン蛍光観察結果から、パターンの幅を画像処理ソフト diagram J で測定したところ、およそ 0.436mm であった。マスクの開口幅がおよそ 0.5mm であることから絶縁体による反発力を粒子が受けていることがわかる。次に、磁性体絶縁マスクを 0.05T の磁石で固定したものにスプレーを行った。ギャップがおよそ 0.088mm であるパターン中心部を測定したところ、パターンの幅はおよそ 0.393mm であった。ギャップの大きさが場所によって違うところでは、パターンの幅が左右で大きく異なっている。パターンの幅は右側ではおよそ 0.350mm, 左側では 0.410mm であった。続いて、0.05T の磁石で固定した際に、ギャップの大きさが異なる別の開口部により形成されたパターンを観察した結果、このパターンの幅はおよそ 0.474mm であった。

これらの結果では、ギャップが大きくなるとパターンが小さくなり、さらに大きくなるとパターンが再び大きくなる傾向にあることが示された。磁石を用いたギャップの変化によりパターン幅を変化させることができ

ることが明らかとなった。ステンシルマスクの構造をわざとギャップができるような構造に最適化し、磁石についても電磁石を用いることで、より広範囲でより精密にギャップ、さらにはパターンの大きさを制御することができるようになると考えられる。また、パターンサイズの制御と共に目標としていたマイクロ・ナノパターンニングについては、0.05mm の開口幅をもつ磁性体絶縁マスクを 0.145T で固定してパターンニングした結果、およそ 0.02mm のパターンとなった。この結果から、絶縁マスクと基板 マスク間ギャップの変化による制御法では、ステンシルマスクの開口幅よりも著しく小さいパターンニング(ナノメートルサイズ)は困難であるが明確になった。

(2) 静電レンズマスクと印加電圧の変化による制御法: 静電レンズマスクは 10mm 角である。絶縁層(SU-8)の厚さは 0.07mm であり、電極(Ti / Cu)の厚さは 0.001mm である。絶縁層の開口部の幅は 0.05, 0.10, 0.15, 0.20mm であり、電極はそれぞれ下の絶縁層の開口穴から 0.065mm のオフセットを有し、電極の開口部の幅は 0.18, 0.23, 0.28mm である。電極層の製作に関してシャドウマスクを用いてスパッタリングを行うことで製作する。スプレーされた微小液滴は、電場中で電気力線に沿って落下すると仮定し、その液滴の軌道を検討するため、COMSOL を使用して、静電場のシミュレーションを行った。シミュレーションは二次元モデルで行い、条件は基板を 0V, ESD ノズルを 4.0kV とし、基板と静電レンズマスクとの間のギャップは 0.05mm, 基板から距離 3mm の高さにキャピラリー電圧として 4.0kV を印加した。一層目の電極への印加電圧 V1 を 2.5kV, 二層目の電極への印加電圧 V2 を 3.0kV とした場合、電気力線は幅がおよそ 0.006mm の領域内に集束される。したがって、パターンニングされる粒子もこの範囲に堆積することが予想される。また、印加電圧の組み合わせを変化させ、V1 を 1.8kV, V2 を 2.5kV とした場合、形成されるパターンは幅がおよそ 0.012mm になると考えられる。このように、印加電圧の変化により、電気力線の集束効果、すなわち、パターンサイズを制御することが可能であると考えられる。ここで、静電レンズマスクの設計および印加電圧の組み合わせを最適化することによりさらなるパターンサイズの微細化は可能である。

MEMS 技術を用いた静電レンズマスクの製作プロセスは、カバーガラス上に犠牲層となるポリビニルアルコール(PVA)を成膜する。一層目の絶縁層となる SU-8 をパターンニングする。一層目の絶縁層上にシャドウマスクを設置する。一層目の電極層となる金属をチタン、銅の順にスパッタリングする。スパッタリング後の電極層、絶縁層のパターンニング、電極層のスパッタリングを繰り返す。脱イオン水に浸して PVA を溶解し静電レンズマスクを基板からはく離させる。

初めに、印加電圧を $V_1=1.0$, $V_2=2.0$ としてスプレーを行ったパターンは、 0.0166mm であった。シミュレーション結果のおよそ 0.020mm とは多少異なっている。これは、静電レンズマスクと基板との間のギャップが関係していると思われる。幅を示した範囲よりも外側に粒子が堆積しているが、これらの粒子は速度が大きかったために電気力線に従わなかった粒子だと考えられ、その堆積範囲は一層目の絶縁層の開口幅である 0.045mm とほぼ一致していた。これと同様に、ステンシルマスク上面にも電気力線に従わなかったと思われる粒子が数多く堆積していた。このように、想定よりも粒子速度が大きくなってしまった原因としては、基板とキャピラリとの距離が近いためであると考えられる。続いて、 $V_1=1.5$, $V_2=2.0$ としてスプレーを行ったパターンでは、 $V_1=1.0$, $V_2=2.0$ の結果と比較して、より小さいパターンが形成されるはずであったが、実際のパターン幅はおよそ 0.021mm であった。この要因の一点目は、使用した静電レンズマスクの違いである。二点目は、ギャップの大きさである。最後に、 $V_1=1.8$, $V_2=2.2$ としてスプレーを行った。キャピラリと基板との距離を 30mm に変更し、粒子の拡散を防ぐためにジグのコーンを使用した。距離を 30mm に変更したことによるパターンへの影響は、堆積する粒子量、および、粒子速度の低下による電気力線から逸れる粒子量であり、これは中心のパターンサイズには大きな影響を与えないと考えられる。したがって、 $V_1=1.0$, $V_2=2.0$ の結果と比較すると、平均すると 0.004mm であるが、個々に比較すると 0.010mm ほどの違いがあるため、印加電圧によるパターンの変化が起きていると推定される。これらの結果から、印加電圧を変化させることによりパターンサイズを制御することができる傾向にあることがわかった。

5. 主な発表論文等

(研究代表者、研究分担者及び連携研究者には下線)

[雑誌論文](計 6件)

Zebing Mao, Kazuhiro Yoshida, Joon-wan Kim, A micro vertically-allocated SU-8 check valve and its characteristics, *Microsystem Technology*, (2018) accpeted(査読有).
Dong Han, Yong Xia, Shinichi Yokota, Joon-wan Kim, UV-LIGA technique by back UV exposure with self-alignment for ECF (electro-conjugate fluid) micropumps, *Journal of Micromechanics and Microengineering*, Vol.27 (2017), pp.125008 (20 pages) (査読有).
Zebing Mao, Kazuhiro Yoshida, Joon-wan Kim, Study on the Fabrication of a SU-8 Cantilever

Vertically-allocated in a Closed Fluidic Microchannel, *Microsystem Technology*, 24(5), (2017) pp.2473-2483 (査読有).
Seongsu Eom, Sang Min Park, Seon Jin Han, Joon Wan Kim, Dong Sung Kim, One-step fabrication of a tunable nanofibrous well insert via electrolyte-assisted electrospinning, *RSC Advances*, Vol.7 (2017), pp.38300-38306 (査読有).
Dong Han, Hongri Gu, Joon-wan Kim, Shinichi Yokota, A bio-inspired 3D-printed hybrid finger with integrated ECF (electro-conjugate fluid) micropumps, *Sensors and Actuators A: Physical*, Vol.257 (2017) pp.47-57 (査読有).
Joon-Wan Kim, Thanh VX Nguyen, Kazuya Edamura, Shinichi Yokota, Triangular Prism and Slit Electrode Pair for ECF Jetting Fabricated by Thick Micromold and Electroforming as Micro Hydraulic Pressure Source for Soft Microrobots, *International Journal of Automation Technology*, Vol.10, No.4 (2016) pp.470-478 (査読有).

[学会発表](計 3件)

松原竜也, 金俊完, 横田眞一, 枝村一弥, 静電レンズを用いたエレクトロスプレーデポジション(ESD)法によるマイクロパターンニング, 日本機械学会 2018年度年次大会, 2018/9/12, 関西大学(大阪府).
佐藤慧一, 金俊完, 吉田和弘, 磁性体ステンシルマスクの開発, 日本機械学会山梨講演会 2017, 2017/10/21, 山梨大学(山梨県).
佐藤慧一, 金俊完, 吉田和弘, 山形豊, 静電レンズ機構を有するステンシルマスクの提案, 2017年度精密工学会春季大会(2017) 2017/3/13, 慶應義塾大学(神奈川県).

[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:
出願年月日:
国内外の別:

取得状況(計 件)

名称：
発明者：
権利者：
種類：
番号：
取得年月日：
国内外の別：

〔その他〕
ホームページ等

6. 研究組織

(1) 研究代表者

金 俊完 (KIM Joon-wan)
東京工業大学・科学技術創成研究院・准教授
研究者番号：40401517

(2) 研究分担者

吉田 和弘 (YOSHIDA Kazuhiro)
東京工業大学・科学技術創成研究院・教授
研究者番号：00220632

巖 祥仁 (EOM Sang In)
東京工業大学・科学技術創成研究院・助教
研究者番号：20551576

(3) 連携研究者

()

研究者番号：

(4) 研究協力者

()