

令和 2 年 6 月 15 日現在

機関番号：11501

研究種目：挑戦的研究(萌芽)

研究期間：2017～2019

課題番号：17K18849

研究課題名(和文)光エネルギー超濃縮マイクロチップによる革新的アクチュエータ制御原理の創出

研究課題名(英文)Light-driven actuators based on energy confinement microchips

研究代表者

西山 宏昭(Nishiyama, Hiroaki)

山形大学・大学院理工学研究科・准教授

研究者番号：80403153

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 5,000,000円

研究成果の概要(和文)：生体内での複雑動作が可能なマイクロアクチュエータ実現のため、金属ナノ構造を用いたマイクロゲルの生体透過光駆動変形制御原理について研究した。従来の化学的アプローチではなく、金属微細構造の形状やサイズ、配列制御によって、特異的な光応答性を生み出し、この光応答性が周辺マイクロゲルの変形に及ぼす影響を定量的に評価した。本アプローチは効果的であり、金属ナノ構造を用いることで、光照射による変形効果は顕著に増大し、また偏光依存的な制御も可能であった。金属ナノ構造の配置方法によって、変形および回復における応答速度を高めることも可能であった。

研究成果の学術的意義や社会的意義

金属ナノ構造が特異的な光学応答性を持つことは学術的にはよく知られている。この研究はこの現象を材料変形に生かすことを狙ったものである。どのような光集束性を生み出せば、どのくらいの材料変形を生み出せるのか、制御性はどうかなどを定量的に明らかにした。

社会的意義としては、生体透過光で複雑変形が可能なマイクロアクチュエータは、応用上は新しい治療法の開発に貢献が出来る。生体内の微小部位に力学的作用を及ぼすことは現在なお容易ではなく、従来の生化学的な治療アプローチでは対応が困難な領域を補うことが期待できる。

研究成果の概要(英文)：Near-infrared light-stimulated actuations of microgels were investigated for highly functional microactuators in biological applications. Incident light of 830 nm wavelength was coupled to the plasmonic waves on metallic nanostructures buried inside microgels. The microgels exhibited marked deformation, depending on size, shape and layout of the metallic structures. Such plasmonic photothermal conversion was effective for soft microactuators with high controllability.

研究分野：光MEMS, レーザー工学

キーワード：表面プラズモン共鳴 MEMS マイクロアクチュエータ

様式 C - 19、F - 19 - 1、Z - 19 (共通)

1. 研究開始当初の背景

本研究では、厳密光学設計された金属ナノ構造を用いた、生体透過光駆動ソフトアクチュエータの制御原理の開発に取り組んだ。光刺激によって運動制御が可能なマイクロマシンはそのワイヤレス性から国内外で研究が活発に進められてきた。特に、生体内に導入したマイクロアクチュエータを外部からの光照射によって操作する描像は多くの研究者を惹きつけてきたが、この場合、生体透過性に優れた近赤外光を駆動源として用いることになる。近赤外光はその波長に由来して光子エネルギーが小さく、マイクロアクチュエータの動力源として使うには困難があるが、その解決のため様々なアプローチが報告されてきた。しかしながら、それらの多くは化学的手法による新規材料の合成が主体であり、機能設計自由度の低さや複合化のための微細加工プロセスとの親和性の低さなどが大きな制限となり、世界的な長年の研究にも関わらず、研究の進展は限定的である。実際、多くの光駆動マイクロマシン開発では、制御性が高いがミリメートルサイズ以上の大きなアクチュエータか、マイクロサイズではあるが制御性が非常に低いアクチュエータの報告が大半と言える。

2. 研究の目的

本研究では、厳密光学設計が可能なプラズモニック金属ナノ構造を、生体親和性材料である Poly(N-isopropylacrylamide)ゲルへと埋め込み、マイクロゲルの生体透過光駆動変形特性を評価した。具体的には以下の3項目について取り組んだ。

- (1) 近赤外応答性 Au ナノ周期構造の設計と作製
- (2) Au 周期構造が埋め込まれた PNIPAM マイクロゲルの近赤外駆動変形特性の評価
- (3) 3次元マイクロアクチュエータへの異種マイクロブロック導入プロセス開発

3. 研究の方法

近赤外応答性を備えた金属ナノ周期構造を厳密結合波解析および時間領域差分法によって光学設計した。この Au 周期構造をリソグラフィックプロセスで作製し、温度応答型体積相転移材料である PNIPAM ゲルに埋め込んだ。光刺激のための光源として波長 830 nm の近赤外光を用い、PNIPAM ゲルマイクロゲルへと照射した。照射時のマイクロゲルの様子は CCD カメラで詳細に観察した。素子作製プロセスを簡単に述べる。Cr 成膜された SiO₂ 基板の上にレジストをスピコートし、電子ビーム描画で所望のパターンを描画した後、プラズマエッチングによってレジストパターンを下地基板へと転写する。レジストや Cr 膜を除去後、スパッタ法で Au 薄膜を堆積した。また、光駆動変形特性を有するマイクロ構造体を、3次元アクチュエータ構造へと位置選択導入するためのプロセス開発を行った。既に確立された手法であるフェムト秒レーザ多光子造形法で作製した樹脂製3次元アクチュエータ構造の任意位置へのダミービーズの導入を行った。

4. 研究成果

(1) Au 周期構造によるマイクロゲル変形

周期 600 nm 前後の Au 周期構造は、波長 830 nm 光に対して強いプラズモニック吸収を示すことが解析によって示された。この吸収は、+1 次反射型光回折を用いたプラズモンモード励起由来であり高次モードを含まない。緩やかな集光照射では集光スポット内のプラズモン波が重なり合い一層の集束効果を示す。入射角 6 度付近でプラズモン励起効率はおよそ 85% と見積もられた。リソグラフィプロセスで作製した素子サイズは 4 μm 四方であり高い均一性を示した。この素子のゼロ次反射特性を測定したところ、設計に近い 6 度付近で 80% 以上のプラズモン励起効率を示した。このとき、入射偏光はプラズモン活性であるが、偏光方向を回転させると、プラズモン吸収は高角度側へとシフトし効率は大きく減少していった。これらの挙動は解析と整合し、作製した Au 構造が優れたプラズモニック特性を持つことを意味している。

PNIPAM マイクロゲルを、この Au 周期構造上に水中配置した。また、プラズモニック特性を有さない Au 平板上マイクロゲルを用いて特性比較を行った。Au 周期構造上マイクロゲルは、最もプラズモニック効果の高い条件下での照射によって急激に収縮し、照射を止めると緩やかに元の状態へと回復した。収縮率は体積に換算するとおよそ 89% と非常に大きかった。この収縮は、ゲルの体積相転移に由来しており、すなわち、プラズモン励起を介した光熱変換による局所加熱に起因していた。またマイクロゲル変形は強い偏光依存性を示し光学設計からの予測と整合していた。Au 周期構造上での近赤外駆動変形では、プラズモニック特性を有さない Au 平板上でのマイクロゲル変形に比べて、90 倍近い変形促進効果があった。この近赤外光駆動ゲル変形は可逆的であり、変形量、変形速度、偏光依存性のすべてで高い再現性を備えていた。

金属ナノ構造をアクチュエータ母材に埋め込む際には、そのナノ構造の配置領域サイズが重要となる。このため、入射ビーム径に対して異なる領域サイズを持つ三種類のナノ構造を作製し、同条件での近赤外光照射を行った。適切な領域サイズにおいては、顕著な近赤外光駆動変形が観察された一方で、領域サイズによってはほぼ光照射による変形が見られなかった。また、一定のナノ構造領域サイズにおいて高い光応答性を得るため、複周期化を検討した。プラズモン吸収効率の変化を解析で見積もり、実験における光駆動変形挙動との比較を熱損失の観点から行った。劇的な光熱変換が生じた一方で、場合により解析との大きな差異が見られた。これは解析における入射光強度分布に起因した差異と考えられ、この影響を定量的に評価した。この Au 周期構造の他に、光還元反応を用いて PNIPAM マイクロゲル内に、プラズモニック特性を有する Ag

ナノ構造を分散配置することにも成功した。直径 80 nm 以下の Ag ナノ構造がレーザ集光部で多数析出し、それら構造はプラズモニック吸収を示した。この吸収特性は理論解析とも整合した。ゲル内に形成した Ag ナノ構造の 3 次元幾何学的配置によって、光駆動変形における変形量、変形速度、変形位置を制御することが可能であった。特に、この変形のための入射光と Ag ナノ構造の析出層との大きな交差面積と各析出層間の距離を適切に選択することで、マイクロゲルは 86% もの収縮と、マイクロゲル全面に Ag ナノ構造を配置した場合に比べて 2 倍以上の変形速度を示した。以上のことから、提案した変形制御原理は、高い変形増強効果と優れた変形制御性を有することが解析と実験の両面から示された。

(2) 三次元マイクロアクチュエータ構造への機能性ブロック導入プロセス開発

上記の研究から、近赤外光照射によって、効果的かつ制御性良く可逆的な変形が可能なマイクロブロックが得られた。これら機能性マイクロブロックを 3 次元アクチュエータ構造に導入するためのプロセス開発を行い、3 次元構造体にダミーブロックを位置選択的に組み込むことに成功した。今後、上記の近赤外応答性ブロックを 3 次元構造体に導入プロセスに適用することで、入射波長および偏光/位置選択的な変形制御が可能となる。本研究で提案した制御原理は、従来困難であった複雑変形が可能な 3 次元マイクロ構造体の実現のための重要な基盤的原理/手法となり得る。

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計2件（うち査読付論文 2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 H. Nishiyama, K. Umetsu, K. Kimura	4. 巻 9
2. 論文標題 Versatile direct laser writing of non-photosensitive materials using multi-photon reduction-based assembly of nanoparticles	5. 発行年 2019年
3. 雑誌名 Scientific Reports	6. 最初と最後の頁 14310
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） https://doi.org/10.1038/s41598-019-50630-1	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 -

1. 著者名 西山 宏昭	4. 巻 137
2. 論文標題 アクティブプラズモニク素子	5. 発行年 2017年
3. 雑誌名 電気学会誌	6. 最初と最後の頁 361 ~ 364
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） https://doi.org/10.1541/ieejjournal.137.361	査読の有無 有
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 -

〔学会発表〕 計8件（うち招待講演 1件 / うち国際学会 1件）

1. 発表者名 阿部晃大, 田端航, 西山宏昭
2. 発表標題 近赤外応答プラズモニク構造を用いたマイクロゲルファイバーの変形
3. 学会等名 第79回応用物理学会 秋季学術講演会
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 池田一畝, 遅澤伸宏, 西山宏昭
2. 発表標題 ダイアフラム構造を用いた紫光励起プラズモン面内分布の動的制御
3. 学会等名 第79回応用物理学会 秋季学術講演会
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 木村開登, 梅津寛, 西山宏昭
2. 発表標題 液中フェムト秒レーザー照射によるSiO ₂ ナノ粒子の集積固化と曲面上パターン形成
3. 学会等名 第73回応用物理学会東北支部学術講演会
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 池田一畝, 遅澤伸宏, 西山宏昭
2. 発表標題 ダイアフラム構造を用いた紫光励起プラズモン場の動的制御
3. 学会等名 第73回応用物理学会東北支部学術講演会
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 H. Nishiyama
2. 発表標題 Femtosecond laser-reduction based assembly of functional nanomaterials
3. 学会等名 3S-LP (招待講演) (国際学会)
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 梅津寛, 西山宏昭
2. 発表標題 液中フェムト秒レーザー照射による機能性ナノ材料の集積とマイクロパターン形成
3. 学会等名 第72回応用物理学会東北支部学術講演会
4. 発表年 2017年

1. 発表者名 田端航, 西山宏昭
2. 発表標題 Auプラズモニック構造を用いた温度応答性ゲルファイバーの生体透過光駆動変形
3. 学会等名 第72回応用物理学会東北支部学術講演会
4. 発表年 2017年

1. 発表者名 鈴木勝大, 西山宏昭
2. 発表標題 3Dマイクロスプリングへの磁性微粒子の位置選択導入と磁気駆動変形
3. 学会等名 第72回応用物理学会東北支部学術講演会
4. 発表年 2017年

〔図書〕 計0件

〔出願〕 計2件

産業財産権の名称 固体微粒子で被覆された金属を含む複合体の製造方法	発明者 西山宏昭, 梅津寛	権利者 同左
産業財産権の種類、番号 特許、特願2017-200202	出願年 2018年	国内・外国の別 外国

産業財産権の名称 固体微粒子で被覆された金属を含む複合体の製造方法	発明者 西山宏昭, 梅津寛	権利者 同左
産業財産権の種類、番号 特許、特願2017-200202	出願年 2017年	国内・外国の別 国内

〔取得〕 計0件

〔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
---------	---------------------------	-----------------------	----