

平成 22 年 5 月 24 日現在

研究種目：基盤研究（B）

研究期間：2007～2009

課題番号：19310088

研究課題名（和文） MEMS 用シーケンシャル・セルフアセンブリ技術の構築

研究課題名（英文） Development of Sequential Self-Assembly Technique for MEMS

研究代表者

田畑 修 (OSAMU TABATA)

京都大学・工学研究科・教授

研究者番号：20288624

研究成果の概要（和文）：微小電気機械システム（Micro Electro Mechanical Systems: MEMS）にマイクロからナノスケールの機能部品を、組付け順序を制御してセルフ・アセンブルするシーケンシャル・セルフ・アセンブル（SSA: Sequential Self Assembly）の基礎技術構築を行った。接触帯電，光誘起誘電泳導，テンプレート，DNAを用いる各アセンブル方法について，基礎的な原理確認実験を行って有効性を確認した。さらにミリメートルからマイクロメートルスケールにおけるセルフ・アセンブル・プロセス・モデリング手法を提案し，その有用性を実験的に検証した。その結果，DNAと環境温度制御を用いたマイクロコンポーネントのシリコン基板へのSSAの新規なSSAとしての有用性を確認した。

研究成果の概要（英文）：A development of a sequential self-assembly (SSA) technique to assemble functional components on a micro electro mechanical systems (MEMS) by self-assembly with controlling the assembly order was carried out. Feasibility study of several different approaches such as a contact potential difference, optically induced dielectrophoresis, template assisted self-assembly, and DNA mediated self-assembly were performed. Furthermore, a new modeling method of self-assembly for the component size from millimeter to micrometer scale was proposed and its validity was confirmed experimentally. Consequently, DNA mediated SSA technique under controlled ambient temperature was proved to be the most promising approach.

交付決定額

(金額単位：円)

	直接経費	間接経費	合計
2007年度	10,000,000	3,000,000	13,000,000
2008年度	2,600,000	780,000	3,380,000
2009年度	2,700,000	810,000	3,510,000
年度			
年度			
総計	15,300,000	4,590,000	19,890,000

研究分野：複合新領域

科研費の分科・細目：ナノ・マイクロ科学，マイクロ・ナノデバイス

キーワード：マイクロファブ리케이션，セルフ・アセンブル，マイクロシステム，MEMS，機能コンポーネント，DNA，

1. 研究開始当初の背景

数 mm 角の微小領域で機械・電気・電子・化学などの様々な領域のエネルギー・現象を相互作用させて新しい機能を創造する微小電気機械システム (MEMS)・マイクロシステム (MS) は 21 世紀の社会基盤を構築するキーデバイスとして活発な研究開発が進められている。MEMS/MS の研究開発動向は、(1) 機能要素・構造要素のナノスケール化、(2) 多様な材料 (有機・無機・化合物・バイオ) との融合によるマルチマテリアル化、(3) 量子効果の利用やバイオ分野との融合などによるシステムの複雑化、の方向で進んでいる。

ナノテクノロジーへの集中的な研究開発はますます活発化しており、例えば金属、半導体、有機、無機などさまざまな材料のナノ構造が創生され、微細加工、医療、薬品、化学、バイオなどの分野に応用展開されつつある。これらのナノ構造は多くの場合、従来の精密加工技術や微細加工技術によるトップダウンアプローチではなく、分子・原子のセルフアセンブリを用いるボトムアップアプローチを駆使して創製される。これは、ナノスケールの機能部品に用いられる材料は多様でかつ分子、原子オーダーのナノ構造を有するために、従来の精密加工技術や微細加工技術などのトップダウンアプローチでは実現が困難であるためである。

一方、シリコン半導体プロセスは使用できる材料に大きな制約があるためシリコン微細加工技術とナノ構造創製のためのナノテクノロジーにはプロセスコンパティビリティが少なく、分子・原子のセルフアセンブリを用いるボトムアップアプローチを用いて複雑な立体構造を有する MEMS・MS にナノ構造を集積化する見通しは立っていない。

2. 研究の目的

活発なナノテクノロジーの研究成果により実現される、量子効果を駆使して多様な機能を発現するナノ構造を MEMS/MS の機能部品として活用し、MEMS/MS の更なる高機能化を達成するために、多様な材料を利用するナノ構造を MEMS/MS に組み込むナノアセンブル技術体系をナノシステム構築のための統合工学 (SENS: Synthetic Engineering for Nano System) と名付け、その実現に取り組む。

従来から微粒子や微小チップなどのナノ部品を用いたセルフ・アセンブルに関する研究は数多く成されている。しかしいずれの研究も、種類の異なる部品を順序立てて組立てる時系列的な組立て (シーケンシャル・アセ

ンブリ) という従来型の機械や電子機器におけるアセンブリ工程では必要不可欠なタスクを実現できていない。そこで、本研究では、ナノ部品を MEMS/MS チップ上にセルフ・アセンブル技術を用いてシーケンシャルにアセンブル (SSA: Sequential Self Assembly) する次世代 MEMS/MS 構築のためのブレークスルー技術実現のための方法論の基礎検討を行った。

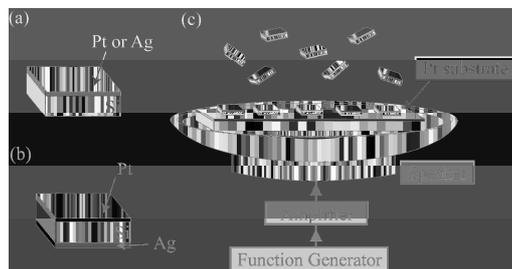
3. 研究の方法

前述の SENS は MEMS/MS チップへのナノ部品のアセンブル工程をナノ部品のトランスファー、ソーティング、ポジショニング、アライメント、プレースメント、ボンディング、インターコネクションの各基本オペレーションの組合せにより実現できる。本研究では、基本オペレーションの例として、(1)接触帯電を用いたシーケンシャル・セルフ・フェース・アライメント、(2)光誘起誘電導を用いたトランスファー、(3)テンプレート・アシスト・セルフ・アセンブルを用いたポジショニング、アライメント、プレースメント、(4)DNA を用いたシーケンシャル・ボンディングの 4 つの手法に着目した基礎的な原理確認実験を行った。

さらに、(5)化学反応速度論の考え方を応用したセルフ・アセンブルプロセス・モデリングとして、ミリメートルからマイクロメートルスケールのコンポーネントを基板にセルフ・アセンブルする際の反応速度と収率を予測するために、化学反応速度論の考え方を応用したモデリング手法を提案し、数値シミュレーションと実験により、その有用性を確認した。

4. 研究成果

(4-1) 接触帯電を用いたシーケンシャル・セ



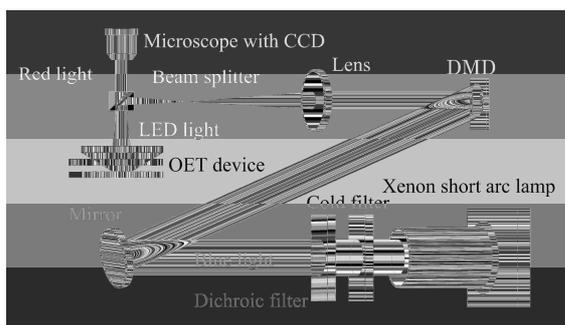
セルフ・フェース・アライメント

図 1 シーケンシャル・セルフ・フェース・アライメントの実験系

シーケンシャルなセルフ・アセンブル実現のキーは、コンポーネントと基板間、あるいは異種コンポーネント間のボンディング力のシーケンシャルな制御である。新規なシー

ケンシヤル・セルフ・アセンブル手法として、接触電位を用いた手法を考案し、コンポーネントの表裏を揃えるフェース・アライメント実験系（図 1）を構築し、振動振幅、振動周波数、コンポーネント表面の金属種などのプロセスパラメータとアセンブル時間およびアセンブル収率との関係を実験的に検討した。その結果、アセンブル収率が最大となる振動振幅、振動周波数が存在することが実験的に確認され、これらは、系に外乱を与える振動エネルギーと、コンポーネント-基板間の静電接触エネルギーから定量的に説明できることを明らかにした。

(4-2) 光誘起誘電泳導を用いたトランスフ



アー

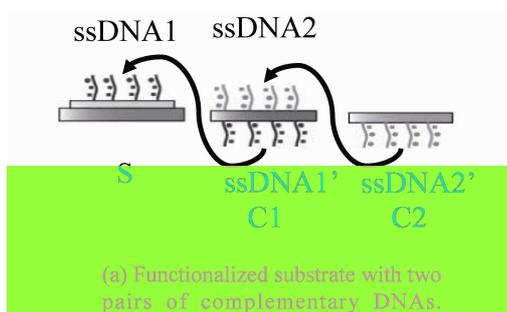
図 2 光誘起誘電泳導実験システム

微細加工を施したシリコン基板上（ターゲット基板）にナノスケール機能部品（シリコンチップ、微粒子、CNT）をセルフ・アセンブルする際に、共通基盤技術となるナノ構造部品アセンブル用マニピュレーションシステム（図 2）を構築し、その基本特性を評価した。このシステムは、光誘起誘電泳導の原理を利用して、ターゲット基板に滴下した液体中に分散したナノスケール機能部品を、局所的な光照射による電場制御でマニピュレーションできる。先行研究が、光導電材料として a-Si を用いているのに対し、本システムは CdS の利用している点に特徴がある。これにより、CdS が吸収する赤色光によりマニピュレーションを行い、CdS が吸収しない青色光を観察光に用いるシステム構成が可能となる（特許出願）。マイクロスケールのコンポーネントを、セルフ・アセンブルするべきサイト周辺に移動させ、セルフ・アセンブル収率の向上とセルフ・アセンブル時間の短縮に寄与すると期待される本提案の有用性を実験によって確認した。

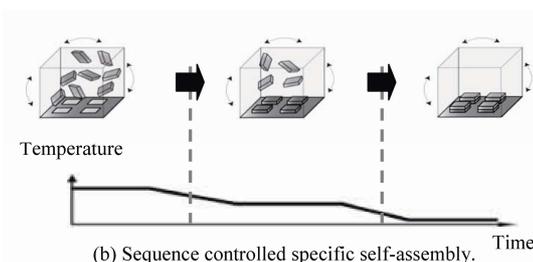
(4-3) テンプレート・アシスト・セルフ・アセンブルを用いたポジショニング、アライメント、プレースメント

テンプレート・セルフ・アセンブリと 2 段階転写法（図 3）を用いて、直径 60nm の金

ナノ粒子を任意基板上にパターンニングする手法を提案し、収率とアセンブルパラメータの関係を明らかにした。さらに一列に配列させた場合、金ナノ粒子間の間隔は金ナノ粒子の電荷によって決まり、添加剤によって金ナノ粒子の表面電荷を制御することによって、ギャップを数ナノオーダーで制御できることを明らかにした。さらに、金ナノ粒子を PDMS 上に配列させ、局在表面プラズモン共鳴（LSPR）を応用した化学センシングへの応用可能性を実験・およびシミュレーションにより検証した。本手法の手順を繰り返すことによって、異なるサイズや材質のナノ粒子をシーケンシャル・セルフ・アセンブルすることが可能であると期待される。



(a) Functionalized substrates with two pairs of complementary DNAs.



(b) Sequence controlled specific self-assembly.

図 3 テンプレート・セルフ・アセンブリと 2 段階転写法

(4-4) DNA を用いたシーケンシャル・ボンディング

前述したボンディング力のシーケンシャル制御手法として、互いに相補的な一本鎖 DNA がハイブリダイゼーションによって二本鎖 DNA に結合する反応が、温度によって可逆的に生ずる現象に注目した。塩基対間の結合尾力に応じて、ハイブリダイズする温度（溶解温度 T_m ）は増加する。塩基対数が 9 と 21 の互いに相補的な一本鎖 DNA のペア、D9-D9' ($T_m=21^\circ\text{C}$) および D12-D12' ($T_m=54^\circ\text{C}$) を用意し、コンポーネントとして用いた直径数十～数百 nm の金ナノ粒子表面あるいは基板上的金薄膜表面を、それぞれ D9 と D9' および D12 と D12' で修飾したサンプルを用意し、これらを溶液中で 60°C から徐冷する実験を行った。この結果より、金ナノ粒子-金ナノ粒子間の結合、金ナノ粒子-シリコン

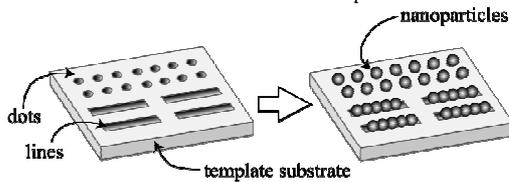
基板間の結合を外部温度場によってシーケンス制御可能であることを実験的に確認した。

さらに、相補的一本鎖 DNA を表面に固定化した $3\mu\text{m} \times 3\mu\text{m} \times 2\mu\text{m}$ のマイクロコンポーネントと基板のアセンブル、および側鎖に DNA を有する DNA グラフトポリマーをスペーサーとして利用したシーケンシャル・セルフ・アセンブルを試み、いずれの場合においても、溶液温度によって接着力の発現が制御可能で有り、かつ特定の相手へのみ結合する特異性を示すことを確認した。また DNA グラフトポリマーをスペーサーに用いることにより、アセンブル収率とアセンブル時間が大幅に改善できることを示した。

$5\mu\text{m} \times 5\mu\text{m} \times 2\mu\text{m}$ のシリコン製マイクロコンポーネントと、 $6\mu\text{m} \times 6\mu\text{m}$ 、深さ $1\mu\text{m}$ の凹部サイトがアレイ状に配列されたシリコン基板上を作製し、コンポーネントとサイトの表面を相補的な一本鎖 DNA で修飾し、コンポーネント密度、アセンブル時の摂動エネルギー（コンポーネント分散溶液の攪拌条件）、アセンブル時間、一本鎖 DNA の塩基長（9 塩基と 21 塩基）をアセンブル・プロセス・パラメータとする実験系を構築し、アセンブル収率とアセンブル時間との関係を明らか

1. Self-Assembly of Nanoparticles

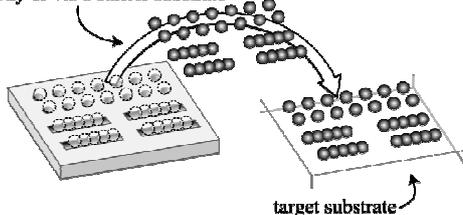
Particles are self-assembled onto template substrate



2. Transfer of Particle Patterns

Patterns of particles are transferred to another target substrate

The assembled particles are transferred to another target substrate directly or via a carrier substrate



にした。

図4 塩基長の異なる2種類の二本鎖DNAペアを用いたシーケンシャルアセンブルの概念

(4-5) 化学反応速度論に基づくマイクロ/ナノスケールにおけるセルフ・アセンブル・プロセス・モデリング

化学反応速度式を基に「幾何学的要素」, 「衝突頻度」, 「熱的要素」を考慮したミリメートルからマイクロメートルのスケールに

おけるセルフ・アセンブル・プロセスを統一的にモデリングする手法を提案し、(4-1)で述べた仕事関数の異なる金属接触による接触電位差を利用したミリスケールコンポーネントの空気中での面制御アライメント実験と(4-4)で述べたDNAを用いたマイクロコンポーネントの溶液中でのセルフ・アライメント実験に応用し、アセンブル・プロセス・パラメータがアセンブル収率とアセンブル時間に与える影響をシミュレートし、実験結果と比較検討することで、本アプローチの妥当性を確認した。

$5\mu\text{m} \times 5\mu\text{m} \times 2\mu\text{m}$ のシリコン製マイクロコンポーネントと、 $6\mu\text{m} \times 6\mu\text{m}$ 、深さ $1\mu\text{m}$ の凹部サイトがアレイ状に配列されたシリコン基板との実験系におけるアセンブル・プロセス・パラメータとアセンブル時間およびアセンブル収率との関係を、構築したモデルに基づいて数値解析した結果、数値解析結果と実験結果は、定量的・定性的に良い一致を示し、提案したモデリング手法の有用性が確認された。

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4件)

- ① Osamu Tabata, Micro/Nano Assembly as a Key to SENS (Synthetic Engineering for Nano Systems), ECS Transactions, 査読有, Vol. 16, Issue 15, 2008, pp. 49-64.
- ② 日下部 達哉, 種村 友貴, 樋口 雄一, 菅野 公二, 土屋 智由, 田畑修, DNA を利用した Au ナノ微粒子のシーケンシャルセルフアセンブル, 粉体工学会, 査読有, Vol. 45, NO. 3, 2008, pp. 156-161.
- ③ Takashi Ozaki, Koji Sugano, Member, Toshiyuki Tsuchiya and Osamu Tabata, Versatile Method of Sub-Micro Particle Pattern Formation Using Self-Assembly and Two-Step Transfer, Journal of Microelectromechanical Systems, 査読有, Vol.16, No.3, 2007, pp746-752.
- ④ 樋口 雄一, 菅野 公二, 土屋 智由, 田畑修, 2種類の液滴の界面張力を用いた逐次積層セルフアセンブル, 電気学会センサ・マイクロマシン部門誌, 査読有, Vol. 127-E, No. 4, 2007, pp. 214-220.

[学会発表] (計31件)

- ① G. Lopez, T. Tanemura, R. Sato, T. Saeki, Y. Hirai, K. Sugano, T. Tsuchiya, O. Tabata, M.

Fujita, and M. Maeda, The 5th IEEE International Conference on Nano/Micro Engineered and Molecular Systems, Jan. 22, Xiamen, China.

- ② O. Tabata, Fabrication Platform for Configurable Nanosystem, The 3rd IEEE International Conference on Nano/Molecular Medicine and Engineering, Oct. 19, 2009, Tainan, Taiwan.
- ③ R. Sato, T. Tanemura, G.Lopez, M.Serry, K. Sugano, T. Tsuchiya, O. Tabata, Modeling of Self-face-alignment Process Using Contact Potential Difference, International Conference on Electronics Packaging, Apr. 15, 2009, Kyoto, Japan.

〔図書〕（計 1 件）

- ① 田畑 修, システム制御情報学会論文誌, システム／制御／情報, 2009, 5

〔産業財産権〕

○出願状況（計 2 件）

①名称：塩基配列を用いた部品の組み立て装置及び組み立て方法

発明者：田畑 修

権利者：国立大学法人京都大学

種類：特許

番号：P2008-253183

出願年月日：平成 20 年 9 月 30 日

国内外の別：国内

②名称：光誘起誘電泳動装置

発明者：田畑 修

権利者：国立大学法人京都大学

種類：特許

番号：P2007-162824

出願年月日：平成 19 年 6 月 7 日

国内外の別：国内

〔その他〕

<http://www.nms.me.kyoto-u.ac.jp/>

6. 研究組織

(1) 研究代表者

田畑 修 (TABATA OSAMU)

京都大学・工学研究科・教授

研究者番号：20288624

(2) 研究分担者

無し

(3) 連携研究者

無し