

機関番号：34310
 研究種目：基盤研究（B）
 研究期間：2008～2010
 課題番号：20360057
 研究課題名（和文） 生体内埋め込み圧電アクチュエータ・酵素燃料電池ハイブリッド薄膜の創製
 研究課題名（英文） Generation of Implantable Piezoelectric Thin Film for Hybrid Actuator and Enzyme Fuel Cell Battery
 研究代表者
 仲町 英治（NAKAMACHI EIJI）
 同志社大学・生命医科学部・教授
 研究者番号：60099893

研究成果の概要（和文）：本研究により、新規生体適合圧電材料 $MgSiO_3$ を採用した生体内埋め込み圧電アクチュエータ・酵素燃料電池ハイブリッド薄膜の創製を行い以下の成果を得た。(1) RF マグネトロンスパッタリング装置により生体適合圧電材料 $MgSiO_3$ (MSO) の高配向多層薄膜創製に成功した。(2) Bio-MEMS に組み込むモノモルフ型アクチュエータの創製を行い、水および血清の搬送が可能であることを確認した。(3) グルコース捕捉による酵素燃料電池は電荷を得るものの発電には至らなかった。MSO 薄膜を用いた片持ち梁構造発電システムの試作に成功した。

研究成果の概要（英文）：In this study, an implantable piezoelectric thin film by using a newly developed biocompatible material $MgSiO_3$ (MSO) for hybrid actuator and enzyme fuel cell battery was generated. We obtained below described results. (1) A multi layered MSO film was generated by RF magnetron sputtering apparatus. It has highly oriented crystal structure. (2) A monomorph type actuator for Bio-MEMS devices, which will be implanted in the human body, was fabricated. It was confirmed that this actuator could transport water and blood serum. (3) An enzyme cell battery by trapping the glucose was generated. But the power was not enough for operate the Bio-MEMS device. MSO cantilever type electric power generation system was successfully generated.

交付決定額

(金額単位：円)

	直接経費	間接経費	合計
2008年度	12,000,000	3,600,000	15,600,000
2009年度	1,700,000	510,000	2,210,000
2010年度	1,800,000	540,000	2,340,000
年度			
年度			
総計	15,500,000	4,650,000	20,150,000

研究分野：工学

科研費の分科・細目：機械工学・機械材料・材料力学（5001）

キーワード：材料設計・プロセス・物性・評価

1. 研究開始当初の背景

| 近年の高齢化社会においては、患者への負担

が少なく在宅医療など QOL の向上に貢献可能な医用デバイス・Bio-MEMS の開発は重要な課題と考えた。本デバイスは健康診断システム(HMS)および薬送達システム(DDS)によって構成され、生体内埋め込みが可能である条件が課される。本研究は、これらのデバイスの構成要素であるマイクロポンプに利用可能な生体適合圧電材料利用によるモノモルフ型多層膜アクチュエータの創製、および本デバイスを駆動するための酵素燃料電池の開発を目指した。極微小電力消費のアクチュエータと酵素燃料電池のハイブリッド薄膜の開発は社会の要請であった。

2. 研究の目的

本研究は、極微量のナノメディシンの送達を目的とした生体内埋め込み型 DDS(薬送達システム) および HMS(健康診断システム)の主要構成要素であるマイクロポンプに利用可能な生体適合圧電材料モノモルフ薄膜の創製を目指す。さらに、マイクロポンプの駆動用電源として電極薄膜表面への酵素固定により酵素燃料電池を形成し、極微小電力消費のアクチュエータ用圧電材料と酵素燃料電池のハイブリッド薄膜の開発を目指す。

研究目的は以下に示す 4 課題の検討となる。(1) トリプルスケール解析手法による生体適合圧電材料 $MgSiO_3$ および $BaTiO_3$ の分子構造解析および成膜プロセスシミュレーション、(2) RF マグネトロンスパッタリング装置による 100nm 以上膜厚の高配向薄膜創製技術の開発、(3) MEMS 技術によるモノモルフ型アクチュエータの作製、(4) プラチナ電極薄膜上へのグルコースオキシダーゼ固定による酵素燃料電池の開発、および MSO 多層膜を用いたモノモルフ型片持ち梁構造を持つ発電システムの開発である。

3. 研究の方法

本研究は、第一原理計算と有限要素解析に基づく新規生体適合圧電材料の解析・設計、RF マグネトロンスパッタによる多層膜構造の薄膜創製、マイクロ流路を持つ Bio-MEMS デバイスの設計と半導体製造プロセスによる加工、発電システムの設計と試作により達成されると考えた。つまり、シミュレーションによる材料とシステムの構造設計・機能予測、および実際の構造・システムの創製・加工と性能試験によって研究遂行が行われた。

4. 研究成果

生体内埋め込み用 Bio-MEMS デバイスの開発においては、新規生体適合圧電材料 $MgSiO_3$ の多層薄膜モノモルフ型アクチュエータによるマイクロポンプの創製に成功し、7nl/sec の送液能力があることを確認した。これより、新規生体適合圧電材料の設計と

MEMS デバイスの作製という主要課題のひとつは 100% の達成度と言える。しかし、送液機能の要求に対しての達成度はなお低く 50% 程度であった。発電・蓄電システムについては、グルコース捕捉による発電用酵素燃料電池の製作を行ったが、十分な電力を得ることができなかった。達成度は 20% 程度であった。また、片持ち梁構造を持つ $MgSiO_3$ の多層薄膜モノモルフ型発電システムの試作を行い、数 mV の発電が可能であることを確認した。本研究全般の達成度は 80% と考える。

単層の膜厚 700nm を多層成膜する試みに挑戦したが、5 層以上の多層化において良好な結晶成長ができなかった。スパッタ創製とポストアニールにおける最適温度の探索等、薄膜結晶成長不良および層界面の不整の発生原因の解明等の課題を残した。

マイクロポンプの設計では $0.2 \mu l/sec$ の搬送能力が要求されたが、実際のポンプシステムでは $7nl/sec$ の送液を達成した。目標に対しては、なお 30 倍以上の搬送能力を得る必要があり、弁無し流路の改良、高出力 MSO 多層薄膜圧電ポンプの創製が必要であり、課題を残した。

外部振動負荷による発電に成功した。しかし、出力電圧が数 mV であり、リチウムによる蓄電には昇圧が必要であり、現在昇圧システムの開発を継続中である。課題は出力電圧の向上である。

以下に主要研究課題の研究成果を示す。(1) 生体適合圧電材料 $MgSiO_3$ (MSO) のトリプルスケール解析および新たに開発した基板との整合性評価手法により、基板材料として Cu および $SrTiO_3$ を採用し、高配向の多層薄膜の結晶成長が可能であることを見出した。(2) RF マグネトロンスパッタリング装置により (101) 方位 MSO 薄膜の多層化を行った。試行錯誤により 4 層 MSO で膜厚約 $3 \mu m$ の薄膜創製に成功した。多層薄膜の細胞毒性評価実験を行い、毒性がないことを確認した。図 1 に示すように結晶方位(101)の成長が確認された。

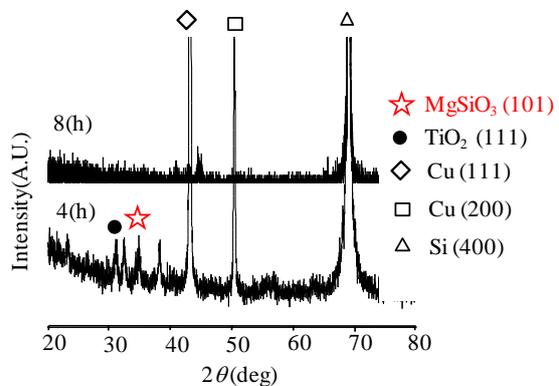
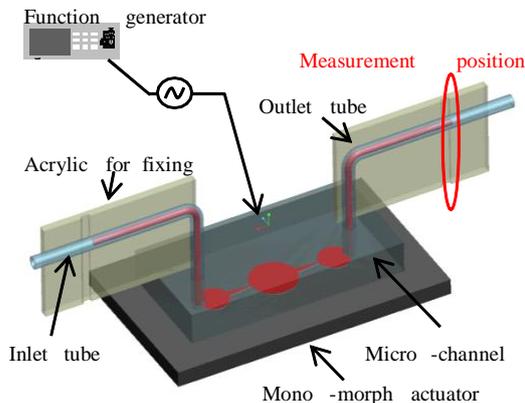
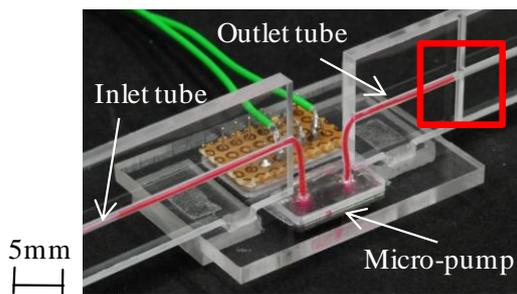


図 1 XRD による $MgSiO_3$ (MSO) の結晶方位分布解析結果

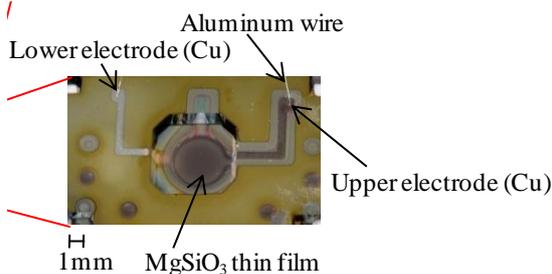
(3)Bio-MEMSに組み込む Si/Pt/Cu/MSO/Cuモノモルフ型アクチュエータの創製を行った。血液・血清の搬送およびナノメディシンの排出を目的とした Bio-MEMS デバイスの ANSYS による構造設計・加工プロセス設計を行い、実際に MEMS プロセスによりマイクロポンプ送液システムを作製し、水および血清の搬送が可能であることを確認した。新規材料である MgSiO₃ による送液成功は世界初といえる。



(a) DDS 用マイクロポンプ概略図



(b) DDS 用マイクロポンプ試作機



(c) MgSiO₃ 多層膜マイクロポンプ

図2 DDS 用 MgSiO₃ 多層膜マイクロポンプの設計、試作およびマイクロポンプ部詳細

(4) 酵素燃料電池の製作では、グルコース捕捉による発電システムの試作を継続して行った。また、片持ち梁構造を持つモノモルフ型多層 MSO 薄膜を作製し、外部振動負荷による発電に成功した。しかし、出力電圧が数 mV と小さく、リチウムによる蓄電には昇圧が必要であり、現在昇圧システムの開発を

継続中である。課題は出力電圧の向上である。

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 13 件)

1. Hwang, H., Uetsuji, Y., Katayama, T. and Nakamachi, E. “Three-Scale Analysis of BaTiO₃ Piezoelectric Thin Films Fabrication Process and its Experimental Validations,” Journal of Materials Science Vol. 46 No. 5(2011-3), pp. 1380-1387. 査読有

2. Tsuchiya, K., Jinnin, S., Yamamoto, H., Uetsuji, Y. and Nakamachi, E., “Design and development of a biocompatible painless microneedle by the ion sputtering deposition method,” Precision Engineering, 34, (2010), pp. 461-466. 査読有

3. Hwang, H., Uetsuji, Y., Tanaka, K., Katayama, T. and Nakamachi, E. “Development of A New Biocompatible MgSiO₃ Piezoelectric Thin Film,” Journal of Solid Mechanics and Materials Engineering Vol.4 No.11, (2010-11), pp. 1636-1642. 査読有

4. 仲町英治, 川中嘉一郎, 上辻靖智, 槌谷和義, 森田有亮, マイクロ針を用いた血糖値計測用シリンジ復動型自動採血デバイスの開発, 日本機械学会論文集(C編), 76, 762, (2010-2), pp. 290-296. 査読有

5. Nakamachi, E., Kuramae, H., Sakamoto, H. Morimoto, H., Process Metallurgy Design of Aluminum Alloy Sheet Rolling by Using Two-Scale Finite Element Analysis and Optimization Algorithm, Int. J. Mech. Sci., 52-2, (2010-2), pp. 146-157. 査読有

6. Kuramae, H., Ikeya, Y., Sakamoto, H., Morimoto, H., Nakamachi, E., Multi-scale Parallel Finite Element Analyses of LDH Sheet Formability Tests Based on Crystallographic Homogenization Method, Int. J. Mech. Sci., 52-2, (2010-2), pp. 183-197. 査読有

7. Hwang, H., Uetsuji, Y., Sakata, S., Tsuchiya, K. and Nakamachi, E., “Proposition of a First-Principles Aided Triple-Scale Analysis for Biocompatible Piezoelectric Thin Films”, Journal of Computational Science and Technology, Vol.3, No. 2, pp. 499-508, 2009. 査読有

8. Hwang, H., Uetsuji, Y., Sakata, S., Tsuchiya, K. and Nakamachi, E., “Crystal Growth Prediction by First-Principles

Calculations for Epitaxial Piezoelectric Thin Films”, Journal of Computational Science and Technology, Vol.3, No.1, pp.264-274, 2009. 査読有

9. 上辻靖智、黄輝心、榎谷和義、仲町英治, 第一原理計算に基づく生体適合無鉛圧電結晶構造解析と機能評価, 日本機械学会論文集 A 編 75 巻-749 号, (2009-1), pp.7-12 査読有

10. Uetsuji, Y., Hwang, H., Tsuchiya, K. and Nakamachi, E., “First-Principles Study on Crystal Structure and Piezoelectricity of Perovskite-Type Silicon Oxides,” Journal of Solid Mechanics and Materials Engineering Vol. 2 No.11 (2008-11), pp.1427-1435. 査読有

11. 上辻靖智、黄輝心、坂田誠一郎、榎谷和義、仲町英治, 生体適合圧電薄膜に対する第一原理トリプルスケール解析の提案, 日本機械学会論文集 A 編, 74 巻 747 号, 2008-11, pp. 1405-1410 査読有

12. 上辻靖智、上田剛大、黄輝心、平野義明、榎谷和義、仲町英治, 細胞毒性実験による圧電材料の生体適合評価, 材料, 57 巻 9 号, 2008-9, pp.899-904 査読有

13. 上辻靖智、黄輝心、坂田誠一郎、榎谷和義、仲町英治, 第一原理計算によるエピタキシャル圧電薄膜の結晶成長予測, 日本機械学会論文集 A 編 74 巻 741 号, 2008-5, pp. 763-769 査読有

[学会発表] (計 21 件)

1. 栗林秀幸, 黄輝心, 森田有亮, 仲町英治, 新規生体適合圧電材料 MgSiO₃ を用いたマイクロ発電システムの開発, 日本機械学会関西支部題 86 期定時総会講演会講演論文集, No.114-1, (京都) (2011-3-20), p. 5-20

2. Okamoto, N., Hwang, H., Morita, Y. and Nakamachi, E., “Development of micro-pump for bio-MEMS by using new bio-compatible piezoelectric material MgSiO₃,” Proc. of SPIE Smart Structures and Material + Nondestructive Evaluation and Health Monitoring, (San Diego, California, USA), (2011-3-8), 7981-182.

3. Nakamachi, E., Hwang, H. and Uetsuji, Y., “Three-Scale Process - Crystallographic Analysis of A New Biocompatible Piezoelectric Material MgSiO₃ Generation,” Proc. of 2nd International Conference on Computer Technology and Development, (Cairo, Egypt) No. N1 (2010-11-4) pp. 206-210.

4. 黄輝心、森田有亮、仲町英治, 新規 MgSiO₃ 圧電薄膜の創製および生体適合評価, 日本機械学会 2010 年度年次大会 (名古屋), (2010-9-6)

5. Hwang, H., Morita, Y. and Nakamachi, E., “Generation of Biocompatible Piezoelectric MgSiO₃ Material”, Proc. of ISAF-ECAPD 2010 (Edinburgh, Scotland), (2010-8-10)

6. (招待講演) 仲町英治, 関西工学教育協会機械分科会, 平成 21 年度第 3 回研究会, 「医工連携教育」, 生命医科学と新産業創生への貢献 (医工学科での医療福祉産業技術者の育成), メルパルク大阪, 2010.3.26

7. 岡本憲明, 黄輝心, 森田有亮, 仲町英治, RF マグネトロンスパッタによる BaTiO₃ 薄膜創製条件探索, 日本機械学会関西支部第 85 期定時総会講演会講演論文集, No.104-1, (神戸) (2010-3-16), p. 820

8. Hwang, H., Uetsuji, Y., Tsuchiya, K., Tanaka, K., Katayama, T. and Nakamachi, E., “Development of New Biocompatible MgSiO₃ Piezoelectric Thin Films,” Proc. of 2010 M&M International Symposium for Young Researchers, No.10-204, (2010-3-16), pp.1-7

9. Hwang, H., Uetsuji, Y., Tsuchiya, Katayama, T. and Nakamachi, E. “Triple-Scale Analysis and Fabrication of New Biocompatible MgSiO₃ Piezoelectric Thin Films,” Proc. of SPIE Smart Structures and Materials + Nondestructive Evaluation and Health Monitoring, (California, USA), Vol.7644, (2010-3-8), pp. 76440D.1-76440D.9

10. (招待講演) 仲町英治, 日本鉄鋼協会創形創質工学部会 数理モデリングフォーラム, 「EBSD を用いた材料の計測とモデリング」, EBSD 結晶均質化有限要素解析, 日本大学理工学部, 2010.2.23

11. Kim, H., Nakamachi, E., Morita, Y. and Mizuno, Y., Development of portable health monitoring system device for automatic self-blood sugar level measurement, SPIE Photonics West Conf., No.7556-34, 2010 年 1 月 25 日, San Francisco, California, USA

12. Mizuno, Y., Katayama, T., Nakamachi, E., Development of an accurate 3D blood vessel searching system using NIR light, SPIE Photonics West Conf., No.7556-34, 2010 年 1 月 24 日, San Francisco, California, USA

13. 金稀俊, 水野賀文, 仲町英治, 森田有亮, 全自動血糖値計測用携帯型 HMS 機器の開発, 日本機械学会講演論文集, No.09-55, 第 22 回バイオエンジニアリング講演会, p. 802., 2010 年 1 月 8 日, 岡山理科大学, 岡山市

14. (招待講演) 仲町英治, 生体適合圧電材料開発と医用デバイス, 工学院大学総合研究所 BERG 「スマート機械システム創成技術に基づいた生体医工学研究拠点の形成」, 2009

年 12 月 24 日, 工学院大学

15. 片山傳生, 田中和人, 仲町英治, 水野賀文, 近赤外光を用いた高精度三次元血管位置探索装置の開発, 日本機械学会講演論文集, No. 09-10, 第 20 回バイオフィロンティア講演会, pp. 41-42., 2009 年 11 月 8 日, 和歌山市

16. (招待講演) Nakamachi, E., Plenary Lecture, “Multi-Scale Analyses of Head Crash Injury by Employing Micro Blood Vessel and Nerve Cell Models,” Conf. of COMPLAS2009, Barcelona, Spain, 2009-9-4.

17. 岡本憲明, 黄輝心, 森田有亮, 仲町英治, RF マグネトロンスパッタによる BaTiO₃ 薄膜創製条件探索, 日本機械学会 M&M2008 材料力学カンファレンス講演論文集, No. 09-3, (北海道) (2009-7-25), pp. 368-370.

18. Hwang, H., Uetsuji, Y., Tsuchiya, K. and Nakamachi, E., “Triple-Scale Analysis for Biocompatible Piezoelectric Thin Film Generation based on Process Crystallographic Theory,” (2009-7-17), USNCCM X (Ohio, USA)

19. 黄輝心, 上辻靖智, 上田剛大, 平野義明, 槌谷和義, 仲町英治, 細胞毒性実験に基づく圧電材料の生体適合性評価, 日本機械学会 M&M2008 材料力学カンファレンス (滋賀) (2008-9-17)

20. 黄輝心, 上辻靖智, 槌谷和義, 仲町英治, 新規生体適合圧電薄膜創製のための第一原理トリプルスケール解析手法の開発, 日本機械学会 2008 年度年次大会 (横浜) (2008-8-5)

21. 黄輝心, 上辻靖智, 槌谷和義, 仲町英治, 新規生体適合 MgSiO₃ 圧電薄膜の第一原理トリプルスケール解析, 日本材料学会第 57 期学術講演会 (鹿児島) (2008-5-25)

[その他]

ホームページ等

<http://biomate.doshisha.ac.jp>

6. 研究組織

(1) 研究代表者

仲町 英治 (NAKAMACHI EIJI)
同志社大学・生命医科学部・教授
研究者番号: 60099893

(2) 研究分担者

田中 和人 (TANAKA KAZUTO)
同志社大学・生命医科学部・准教授
研究者番号: 50303855

(3) 連携研究者 なし