

科学研究費助成事業（科学研究費補助金）研究成果報告書

平成24年6月1日現在

機関番号：32619

研究種目：基盤研究(B)

研究期間：2009～2011

課題番号：21360154

研究課題名（和文）集束陽子線描画による高アスペクト比構造を活かした三次元誘電泳動デバイスの創成

研究課題名（英文）Three dimensional dielectrophoretic devices using high-aspect-ratio structures fabricated by proton beam writing

研究代表者

西川 宏之 (NISHIKAWA HIROYUKI)

芝浦工業大学・工学部・教授

研究者番号：40247226

研究成果の概要（和文）：集束陽子線描画(PBW)による高アスペクト比構造を活かした三次元誘電泳動デバイスの創成を目的として、ビーム発生・制御、材料・プロセス、DEP デバイス応用という3つの課題に取り組んだ。微細加工技術として高い柔軟性を有するPBWを用い、材料・プロセスの面から取り組むことで、高アスペクト比ピラー構造部材の作製とそのデバイスへの組み込みに至るまでの技術を開発した。これにより、三次元誘電デバイスを作製し、その優れた微生物捕集特性を示すことができた。

研究成果の概要（英文）：Aiming at the development of dielectrophoretic (DEP) devices working for three-dimensional trapping of micro particles, we introduced high-aspect-ratio microstructures fabricated by proton beam writing (PBW). Three issues including beam engineering, materials and processing, and device applications have been studied. Using the PBW technique with flexible micromachining capability, superior characteristics of the three-dimensional DEP devices for electric-micro filters have been successfully demonstrated.

交付決定額

(金額単位：円)

	直接経費	間接経費	合計
2009年度	6,200,000	1,860,000	8,060,000
2010年度	3,900,000	1,170,000	5,070,000
2011年度	3,500,000	1,050,000	4,550,000
総計	13,600,000	4,080,000	17,680,000

研究分野：工学

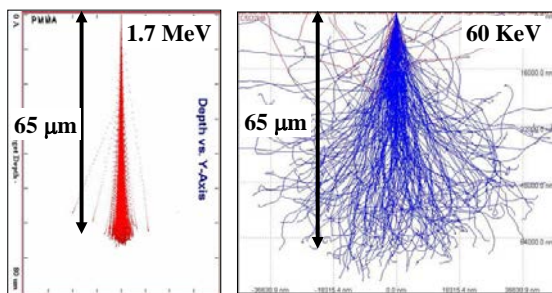
科研費の分科・細目：電気電子工学、電子・電気材料工学

キーワード：電気・電子材料

1. 研究開始当初の背景

PBW技術は1997年頃より国立シンガポール大学 Watt 教授らにより提案・開発されてきた[1]。図1にPMMAに1.7MeVのプロトンビームを照射した際の陽子の飛跡、および比較のために60keVの電子の軌跡をシミュレーションした結果を示す。MeV級エネルギーの陽子線の高い直進性を活かした高アスペクト比加工とエネルギーによる加工深さ制御がPBWの強みである。PBW技術は、直接描画で

あり、三次元誘電泳動(3D-DEP)効果検証のためのデバイス試作に適する。研究代表者の西川は、2005年度より文科省科研費(H17～19年度)を受け、PBW技術を基盤とする微細加工に関する研究を行い、最大3MeVでのPBW技術を日本原子力研究開発機構と共に開発し、サブミクロン微細度と50 μ m以上の厚膜レジスト加工等に成功し、三次元微細構造形成の実証に取り組んだ。H18年度より芝浦工大にてフレキシブル微細加工研究センタ



(a) 1.7 MeV 陽子 (b) 60 keV 電子

図1. 侵入深さが同程度の陽子（ビームエネルギー：1.7 MeV）および電子（60keV）のレジスト膜中（PMMA）での振る舞いの比較

一[2]を設置し、H20年度4月小型PBW装置の開発に成功した。また、2008年秋季応用物理学会にて当該研究領域に関するシンポジウムにて世話人、講演者を務め、本研究分野を推進する立場にある。

2. 研究の目的

今日の微細加工におけるニーズは、さらなる微細化の追求（“More Moore”）から、“More than Moore”という言葉で示されるMEMS（微小電子機械システム）や微小流体流路など、多様・多機能デバイスの創成へとシフトしつつある。本研究計画の中核にある“Proton Beam Writing”（陽子線描画）はPBWと略される[1]。電子ビーム（EB）描画や光リソグラフィ技術では実現不可能な3次元構造の実現と新たな価値の創出のため、本研究課題の目標達成によりデバイス機能の多様化の視点から3次元の微細なものづくりの新領域に貢献出来ると考えている。

本研究の目的は、PBWを基軸とする精密ビーム加工により高アスペクト比を有するサブミクロン3次元微細構造を形成し、これにより微生物の捕集・計測・無害化機能を有する新規な高機能、高効率な3次元誘電泳動（dielectrophoresis: DEP）デバイスを創成することである。

DEP（誘電泳動）デバイスとは、不平等電界下で、分極した誘電体に働く誘電泳動力を利用した流体デバイスである。近年、病原菌による集団食中毒などが社会問題となる中、食の安全・安心を守るための食品の安全衛生管理に関わる有力なデバイスである。電氣的に誘電体とみなせる微生物の選択的濃縮・検出機能により培養プロセスを介さず高速検出が可能で、高電圧パルスの印加により無害化も可能である。

研究分担者の内田（首都大東京）はDEPによる泳動濃縮型マイクロリアクタの開発実績を有する。申請者らは、PBWによる微細加工技術が適用可能な無電極型DEPデバイスに

着目した。誘電泳動力が電界の2乗の勾配に比例することから、三次元微細構造による電界勾配の増強とその空間的変調効果を狙い、三次元ピラー構造をDEP場に適用し、その高い効果を認め本研究課題の提案に至った。研究分担者の長谷川（芝浦工大）はマイクロ化学システムを専門として、 μ -TASの開発に多くの実績を有する。3D-DEPデバイスの設計・試作に取り組む。

以下の3課題につき、それぞれ研究を3ヶ年にわたり実施し、目標を達成する。

【課題1. ビーム発生・制御】サブミクロン陽子線を得るための精密ビーム計測法（ビーム径<1ミクロン、電流<1pA）を確立し、加工精度に影響を与える要因を明らかにする。

【課題2. 材料・プロセス】PBWにおけるレジストの感度、分解能、平滑度を定める要因を明らかにする（ポジ、ネガタイプ、有機・無機レジスト。現行PMMA, SU-8含む新規レジスト）。デバイス応用に必要なプロセスを確立すること。

【課題3. DEPデバイス応用】

- ・3D-DEP場を設計し、その実現に必要な三次元微細構造を明らかにすること。

- ・注液、輸送、反応、分析機能を有する3D-DEPデバイスを設計し、材料・プロセスを明確化する。

<参考文献>

[1] F. Watt et al., Proton Beam Writing, Materials Today 30, pp.20-29 (2007)

[2]フレキシブル微細加工研究センターウェブサイト。

http://www.shibaura-it.ac.jp/society/flexible_micromachining_center.html

[3]C-F. Chou et al. Electrodeless Dielectrophoresis for Micro Total Analysis Systems, IEEE Engineering in Medicine and Biology Magazine, pp.62-67, (Nov./Dec.2003)

3. 研究の方法

本研究課題は川上から川下まで、【ビーム発生・制御】【材料・プロセス】、【DEPデバイス応用】について連携を推進することで、各課題間の相乗効果をねらう。具体的には自ら開発した小型PBW装置を基盤とする微細加工研究の開発を行い、ものづくりへの応用へと展開する。以上を3ヶ年計画で推進する。この3課題に対し以下の具体的目標を設定し、3ヶ年計画にて達成する。

3. 1 【課題1. ビーム発生・制御】

（目標）微細度：0.5 μ m以下、深さ：最大25 μ m、描画域：50mm角の精密ビーム加工技術の実現

自ら開発した小型PBW装置の利用技術開発

に焦点をあて、高アスペクト比ピラー構造、多層中空構造を実現する精密ビーム加工技術の研究に取り組む。なお、本装置は微細加工装置としてのエネルギー安定化のため、加速器において 10^{-5} レベルのリプル低減を図っており、加工機としての十分な基本性能を有する。

3. 2 【課題 2. 材料・プロセス技術】

(目標) 高アスペクト比 (>50) 三次元微細構造の露光・現像、電鋳による二次加工プロセスの構築を行う。

① 材料探索: アプリケーションに適した材料の選択のため、【課題 3】と連携して、適宜、市販の EB や光リソグラフィ用のレジスト群からの新規探索を行う。

② プロセス開発: 信頼性の高いプロセスの実現のため、主として市販の無機・有機レジスト材料群から選択し、そのレジスト材に適した露光・現像プロセスの確立を実施する。

③ 二次加工技術の検討: PBW による母型への電鋳技術により金型を作製する。【課題 1】のためビーム標準用 Ni メッシュの作製に利用する。

3. 3 【課題 3. DEP デバイス応用】

(目標) PBW による高アスペクト比三次元構造を利用した 3D-DEP 場の検証と設計、およびウイルス等のサブミクロンの微生物を捕集、計測、無害化可能なデバイスを作製する。

① 三次元誘電泳動場の設計: PBW で作製可能な 3 次元構造に対して、電界計算等による 3 次元誘電泳動場 (3D-DEP 場) を設計する。3D-DEP 場でのサイズの異なるイースト菌、大腸菌やウイルス等の微生物の挙動を粒子追跡法 (Particle Tracking Velocimetry, PTV) による三次元リアルタイム計測により評価する。

② 3D-DEP デバイスの設計・作製: 注液、輸送、反応、分析機能を有する 3D-DEP デバイスを形成するためのデバイス形成技術を確立する。これにより、高アスペクト比の三次元微細構造における DEP 効果の機能検証のためのプロトタイプング、デバイスの設計と試作を遂行する。

4. 研究成果

4. 1 【課題 1. ビーム発生・制御】

目標として、微細度: $0.5 \mu\text{m}$ 以下、深さ: 最大 $25 \mu\text{m}$ 、描画域: 50mm 角の精密ビーム加工技術の実現を目指した。本研究課題の取り組みにより、目標とするアスペクト比は最大で 30 程度にとどまった点を除けば、概ね目標を達成することができた。その概略を以下に記す。

まずアスペクト比に関する制約は、PBW 装

置上の制約ではなく、材料プロセスにより制限されることが明らかとなった。これは、高アスペクト比の微細構造を作製するための PBW による露光後、現像・リンス時の乾燥過程に起因する。高アスペクト比ピラー構造を高密度に配置した際にピラー間に毛細管力が働くためである。

例えば、三次元誘電泳動デバイスに利用するエポキシ系樹脂 (SU-8) 製の高アスペクト比ピラー構造が高密度にパターンニングされた場合、ピラー構造の基板との密着性の不足や強度不足によりパターンの倒壊が生じる。これはプロトンビームの照射量の増加、露光後の熱処理による架橋構造の強化等により、アスペクト比 30 程度まで実現した。今後は、超臨界乾燥プロセスを導入した、毛細管力の回避による倒壊防止も含めた策を検討する。

ただし、露光後の熱処理は、酸発生剤の過剰な反応による解像度の劣化を伴う。そこで、現在利用している SU-8 以外のエポキシ樹脂の開発を材料メーカーと行い、一定の成果を得ている。

一方、 cm スケールのデバイスの実現のため、ビーム走査ではなく、ステージ走査による、 50mm 角レベルのパターンニング機能を小型 PBW 装置に実装した。図 2 にその流れを示す。その動作と描画によるパターン形成を確認した。さらに CAD による設計データの読み込みを実現し、より汎用性の高いものとなった。

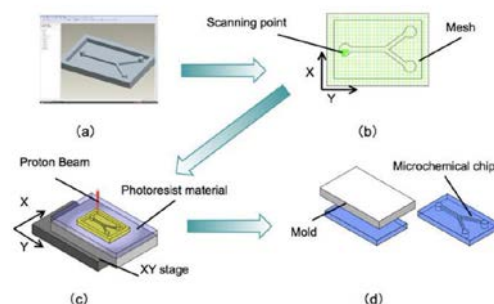


図 2 PBW におけるデザインと型形成のフロー: (a)3D-CAD によるデザイン、(b) 3D-CAD データの描画パターンへの変換、(c)PBW による露光、(d)型の形成と転写

以上により、小型プロトンビーム描画装置の高いポテンシャルを引き出すことが可能となった。なお、今後の課題として、現有ステージ (超音波モータ駆動) のハードウェア及びコントローラの仕様から、ソフトウェアによるステージ走査上の種々の制限はあるため、新規にステージ (ステッピングモータ駆動) を導入し、新たなソフトウェア開発を行っている。今後は、パターンの微細化、平滑化のため、最大 $200 \mu\text{m}$ 角のビームスキャンを併用した微細構造の形成を行い、マクロとミクロ領域の描画を効率よく行うシ

システムの構築を行う。

また、精密ビーム加工のためのビームサイズ計測に用いる、二次電子標準用グリッドおよび二次検出器の性能向上を図った。二次電子検出器用グリッドとしては、より高いコントラストを得られる高アスペクト比 Ni 構造としてアスペクト比 30 近いものを作製する目途がついた。また、二次電子検出器としては現在利用しているチャンネルトロンからメンテナンスの容易なシンチレータと光電子増倍管を組み合わせた検出器への移行を検討している。

4. 2 【課題 2. 材料・プロセス】

目標として高アスペクト比 (>50) 三次元微細構造の露光・現像、電鋳による二次加工プロセスの確立を目指した。

【課題 1】で得られた高アスペクト比構造 (最大 30 程度) を利用して電鋳を行い、高アスペクト比の Ni 構造を形成できた。これにより、目標を概ね達成することができた。これにより Ni 電鋳によるパターン形成とインプリントプロセスへの適用につながる要素技術を確立した。この際のポイントとして、Ni 電鋳プロセスの母型となる、ポジ型の樹脂 (PMMA) レジストの反応性の制御が重要である。具体的にはレジストの膨潤と溶解過程を制御するために、これらに及ぼす照射量およびレジスト材料の分子量の影響を調べた。



Fig.1 Schematic illustration of the a three-dimensional dielectrophoresis device equipped with a micro-fluidic channel with built-in pillar arrays.

図 3. PDMS 構造部材と電極を組み合わせた DEP デバイス作製

さらに電鋳によらない、図 3 にその流れを示す。より簡便なプロセスとして PMMA 樹脂型を用いたシリコンゴムへの転写技術として、ソフトリソグラフィの手法を実現した。これにより、簡便かつ安価な手法として、これまで PBW により実現可能な高アスペクト比構造部材をひとたび樹脂型に形成すれば、転写により複製可能な状況を実現できる。PDMS ピラー構造部材を実際に誘電泳動デバイスに、流体の漏えいなく封止し組み込むプロセスを開発し、その微生物捕集効果を確認した。

4. 3 【課題 3. DEP デバイス応用】

目標として PBW による高アスペクト比三次元構造を利用した 3D-DEP 場の検証と設計、およびウイルス等のサブミクロンの微生物を捕集、計測、無害化可能なデバイスを作製することを目指した。

【課題 1, 2】により得た PBW によるモノづくり基盤として、①三次元誘電泳動場の設計と②3D-DEP デバイスの設計およびプロト

タイプの作製を進めた。

まず、①三次元誘電泳動場の設計においては、電界解析を併用した誘電泳動力の解析を行った。これにより、ピラー近傍での電界の集中と誘電泳動力の分布を可視化することができた。この結果を大腸菌からの蛍光画像から得られる、二次元的な大腸菌の捕集パターンと対応付けることで、三次元ピラー構造における役割を明らかにすることができた。

また電界計算にあたっては、三次元ピラー構造の配置およびサイズに関する検討も行った。さらに単純な円柱構造ではなく、側面に突起パターンを形成した際の電界分布および誘電泳動力についても調査し、捕集効果の増大傾向が認められた。

なお三次元的な捕集効果の観測については、レーザ顕微鏡等を利用して、三次元ピラー構造に対して大腸菌が捕集される様子を垂直向に可視化する方法を検討している。また三次元ピラー構造による流体への影響を考慮した検討を行ったところ、ピラー周囲で

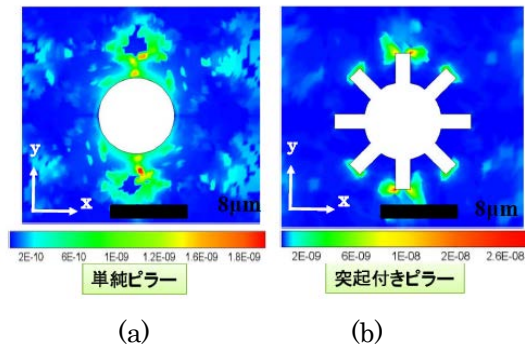


図 4. 電界計算より得られた(a)単純ピラー構造と(b)突起部付きピラー構造周囲に働く誘電泳動力の分布

の流速の減少が大きく、捕集効果に影響を及ぼしていることが明らかとなった。PTV を併用したシミュレーション結果の検証も含め、その適用が今後の課題である。

②3D-DEP デバイスの設計・作製:

前項①で明らかになった知見をもとにパターン設計と部材の試作を行った。具体的には単純な円柱構造に対し複数の突起 (フィン) を形成し、電界集中による微生物捕集場を作製した。PBW のマスクレス描画機能を活かし、種々のパターンの形成を行った。図 5 に作製したピラー構造の例を示す。実際にその効果を誘電泳動デバイスに組み込んで検証した結果を図 6 に示す。突起ピラーにおいて約 20%程度の大腸菌の捕集率の向上が認められた。

サブミクロン微粒子の捕集を目指した、数ミクロンピッチのパターン形成には、いくつか課題があることが明らかとなった。すでに

【課題1】でも述べたようにピラーの近接化にともなうパターンの倒壊の問題である。本課題の解決により、今後、サブミクロンサイズのウイルスの捕集を目的とした誘電泳動に取り組む。

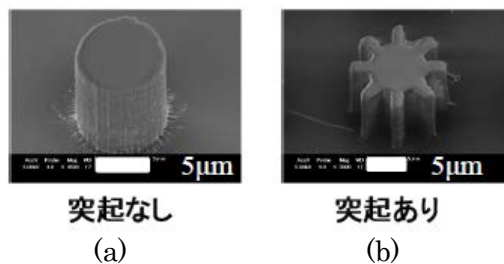
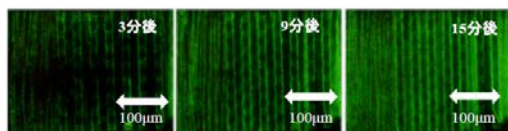
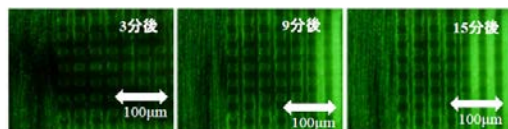


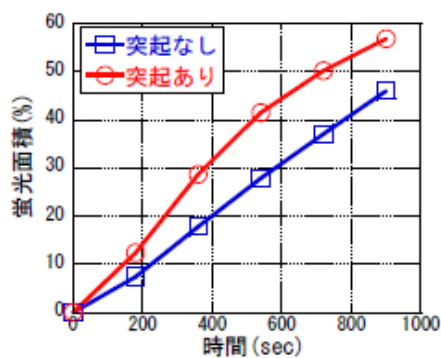
図5. PBWにより作製した(a)単純ピラー構造体および(b)突起ありのピラー構造



(a)単純ピラー構造



(b)突起ありのピラー構造



(c)ピラー構造の違いによる大腸菌の捕集効果の時間依存性

図6. 異なるピラー形状を組み込んだ誘電泳動デバイスによる大腸菌捕集時の蛍光画像(a),(b)および時間依存性(c)。

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)

(1) Optical counting of trapped bacteria

in dielectrophoretic microdevice with pillar array, S. Uchida, R. Nakao, C. Asai, T. Jin, Y. Shiine, H. Nishikawa, Intelligent Automation and Soft Computing, 査読あり, Vol. 18, No. 2, pp. 165-176 (2012)

(2) Electroforming of Ni mold for imprint lithography using high-aspect-ratio PMMA microstructures fabricated by proton beam writing, Y. Tanabe, H. Nishikawa (8名中2番目), Microelectron. Eng., 査読あり, Vol. 88, pp. 2145-2148 (2011)

DOI:10.1016/j.mee.2011.01.019

(3) Microbeam complex at TIARA: Technologies to meet a wide range of applications, T. Kamiya, K. Takano, T. Satoh, Y. Ishii, H. Nishikawa, (9名中5番目) Nucl. Instr. Meth. Phys. Res. B 269 pp. 2184-2188 (2011)

DOI: 10.1016/j.nimb.2011.02.043

(4) Fabrication of silica-based three-dimensional structures by changing fluence using proton beam writing, R. Tsuchiya and H. Nishikawa, Trans. Mat. Res. Soc. Japan, 査読あり, Vol. 36, No. 3, pp. 325-328 (2011)

(5) Soft-lithographic methods for the fabrication of dielectrophoretic devices using molds by proton beam writing, Y. Shiine, H. Nishikawa (9名中2番目) S. Uchida(9番目), Microelectron. Eng., 査読あり, Vol. 87, pp. 835-838 (2010)

DOI: 10.1016/j.mee.2009.12.071

(6) 集束プロトンビーム描画による高アスペクト比構造の加工とその応用(特集記事)、西川宏之、放射線Vol. 35, pp. 77-86 (2009)

〔学会発表〕(計13件)

(1) 誘電泳動デバイスにおける微小立体構造の捕集効果、神孝之、浅井千尋、内田諭、椎根康晴、西川宏之、第59回応用物理学関係連合講演会、17p-F8-2 (2012/3/17)

(2) ピラー構造誘電泳動デバイスを用いた菌捕集量のピラー高さ依存性の検証、浅井千尋、神孝之、内田諭、西川宏之、第59回応用物理学関係連合講演会、17p-F8-3 (2012/3/17)

(3) ソフトリソグラフィによる3次元構造のPDMSピラーを用いた誘電泳動デバイスの作製、渡部涼、坂下裕介、神孝之、浅井千尋、内田諭、西川宏之、2011年放電学会年次大会講演予稿集D-3-6(2011/11/26)

(4) プロトンビーム描画による高アスペクト比ピラー配列の試作と誘電泳動特性、西川宏之、(10名中3番目)、第72回応用物理学学会1a-ZG-3 (2011/9/11)

(5) Negative Epoxy Resist for Permanent Use Optimized for Proton Beam Writing, H.

Nishikawa, T. Nishiura, T. Mita, T. Takemori, International Conference on Materials for Advanced Technologies (ICMAT2011), 査読あり, Symposium BB, No. BB1-4 (2011/6/27)

(6) Enhancing Proton Beam Writing System with Auto Scanning Software and Stage Movement, T. P. Nguyen, R. Teshima, T. Hasegawa, H. Nishikawa, ICMAT2011, 査読あり, Symposium BB, No. BB4-3 (2011/6/27)

(7) Proton Beam Writing micro fabrication system for micro chemical devices, P. N. Truong, R. Teshima, T. Hasegawa, H. Nishikawa, International Symposium on Micro-Nano Mechatronics and Human Science, 査読あり, pp.435- 440 (2010/11/10)

(8) Optical counting of trapped bacteria in dielectrophoretic device with pillar array, S. Uchida, R. Nakao, Y. Shiine, H. Nishikawa, World Automation Congress 2010, 査読あり, Paper No. ISIAC # 483, pp.1 - 6 (2010/9/20)

(9)集束プロトンビーム照射によるポリ乳酸の微細加工、西川宏之(7名中5名)第71回応用物理学会、14a-ZA-1 (2010/9/14)

(10) Fabrication of Three-Dimensional Pillar Arrays by PBW for Improved Trapping Performance of Dielectrophoretic Devices, Y. Shiine, Y. Sakashita, H. Nishikawa (8名中3番目), S. Uchida(8番目), 12th International Conference on Nuclear Microprobe Technology and Applications, 査読あり, No. P2-50, p.150 (2010/7/29)

(11) Proton Beam Writing and Its Applications, Hiroyuki Nishikawa, (Invited Talk), Paper No.R-02-I, Innovative Materials Technologies Utilizing Ion Beam, 19th Academic Symposium of MRS-Japan (2009/12/8)

(12) Fabrication of Dielectrophoretic Devices Using Poly-dimethylsiloxane Microstructures by Proton Beam Writing, Y. Shiine, H. Nishikawa (9名中2番目), S. Uchida(9番目), 35th International Conference on Micro & Nano Engineering (MNE), 査読あり, P-LIFE-23 (2009/9/28-2009/10/28).

(13) 集束プロトンビーム描画によるPDMSマイクロ流路を有する誘電泳動デバイスの作製、西川宏之(8名中2番目), 内田 諭(8番目), 第70回応用物理学会, p.632, 11a-ZF-5 (2009/9/11)

〔産業財産権〕

○出願状況(計3件)

名称:イオンビーム描画用ネガ型レジスト組成物及びパターン形成方法

発明者:西川宏之、金子智紀、飯塚徹也、三田孝仁、竹森利郁

権利者:(学)芝浦工業大学、丸善石油化学(株)

種類:特許

番号:2010-016632

出願年月日:2010年1月28日

国内外の別:国内

名称:感放射線性レジスト組成物及びパターン形成方法

発明者:西川宏之、関佳裕、飯塚徹也、三田孝仁、竹森利郁

権利者:(学)芝浦工業大学、丸善石油化学(株)

種類:特許

番号:2010-016633

出願年月日:2010年1月28日

国内外の別:国内

名称:三次元誘電泳動デバイス

発明者:西川宏之、古田祐介、椎根康晴、内田諭、神谷富裕、石井保行、佐藤隆博

権利者:学校法人芝浦工業大学、公立大学法人首都大学東京、独立行政法人日本原子力研究開発機構

種類:特許

番号:2010-010945

出願年月日:2010年1月21日

国内外の別:国内

〔その他〕

ホームページ

フレキシブル実装工学研究センター
<http://www.flex.ae.shibaura-it.ac.jp>

公開シンポジウムの開催

芝浦工業大学 先端工学研究機構 フレキシブル微細加工研究センターシンポジウム
2011年3月3日(芝浦工業大学 芝浦キャンパス)

6. 研究組織

(1)研究代表者

西川 宏之 (NISHIKAWA HIROYUKI)

芝浦工業大学・工学部・教授

研究者番号:40247226

(2)研究分担者

内田 諭 (UCHIDA SATOSHI)

首都大学東京・理工学研究科・准教授

研究者番号:90305417

長谷川 忠大 (HASEGAWA TADAIRO)

芝浦工業大学・工学部・准教授

研究者番号:10340605