

研究種目：基盤研究（S）

研究期間：2007～2011

課題番号：19106004

研究課題名（和文） ナノ・マイクロレベルの革新的熱物性センシングとその応用

研究課題名（英文） Development of Innovative Nano-Micro Level

Thermophysical Properties Sensing Techniques and Their Applications

研究代表者

長坂 雄次（NAGASAKA YUJI）

慶應義塾大学・理工学部・教授

研究者番号：40129573

研究代表者の専門分野：熱物性工学

科研費の分科・細目：機械工学・熱工学

キーワード：熱物性センシング、レーザー計測技術、マイクロ・ナノスケール熱工学

### 1. 研究計画の概要

ナノ・マイクロレベルの熱物性値（特に熱・物質輸送性質）の計測技術は、次世代熱工学の基盤としてのみならず、あらゆる分野を横断する最先端研究開発の基盤技術として極めて重要である。例えば情報通信分野では、半導体デバイス内部の微細領域での放熱問題や HD-DVD のような高密度記録メディア内部の多層薄膜のナノ秒オーダーの熱伝導や相変化問題、ライフサイエンス分野では DNA 等の拡散や分離問題、またエネルギー・環境分野では、燃料電池用ポリマー薄膜内部の物質拡散問題等、枚挙にいとまがない。また学術的には、これら最先端の技術的課題を包括的に取り扱うためのナノ・マイクロレベル輸送現象に関する横断的な学問体系を構築する必要があり、熱物性センシング技術はその未知基本現象を定量的に解明する重要なツールとして不可欠である。しかしながら、従来の古典的な熱物性計測技術では、定常的な温度勾配や濃度勾配を mm～cm オーダーで生成する必要があり、測定対象がナノ・マイクロレベルで極短時間に変動し、さらに空間分布しているような場合には原理的に適用が不可能であった。本研究の目的は、ナノ・マイクロレベルの熱・物質・運動量輸送性質（熱伝導率、温度伝導率、相互拡散係数、ソーレー係数、粘性係数、表面張力、表面粘弾性質）を（1）非侵襲かつ in situ、（2）高空間分解能、（3）高時間分解能、（4）極微量サンプル、（5）異方性・2次元分布、がセンシング可能な全く新しい計測手法体系を基本原理から独自に開発し、熱物性センシングの新たな応用を世界に先駆けて提案することである。

### 2. 研究の進捗状況

従来の熱物性計測技術では測定が原理的に不可能であった系に適用するために、（1）近接場光、（2）温度波の干渉、（3）ソーレー効果、（4）レーザー誘起表面波、（5）熱的ゆらぎによる表面波（リップロン）の5つの新奇な物理現象を用いて熱物性センシング技術を開発し、様々な応用実証を行った。特に、3つのセンシング手法について以下に具体的に示す。

#### （1）近接場光学熱物性顕微鏡の開発

固体表面あるいは液中の近接場光学応答を非常に高感度かつ高い空間分解能で検出し、試料の熱物性情報を抽出可能なナノレベルのセンシング技術を構築し、量子ドットの蛍光寿命-温度依存性をナノレベルで測定し、革新的デバイスデザインに資する知見を得た。更に、近接場光学顕微鏡 (NSOM) プローブを用いた蛍光相関分光法 (FCS) を開発し、界面からナノスケール領域における拡散運動を観測する手段を確立した。本測定手法は、ナノ粒子に対し、真にナノスケールの界面領域の拡散現象を解明する方法として唯一の測定法であり、学術的なインパクトが大きい。

#### （2）フォトサーマル赤外検知法の開発

試料表面を高速に周期加熱することによって、固-固界面における温度波干渉を直接観察し、ナノ・マイクロレベルでナノ機能材料の熱伝導率、温度伝導率、接触熱抵抗をセンシングする技術を開発した。本センシング手法を熱電薄膜、ナノコンポジットや超伝導薄膜線材に適用し、ナノ機能材料の熱物性値がバルク材料と大きく異なることを明らかにした。また、SiP (System in Package) 実装半導体デバイス内部におけるマイクロスケール

ル熱抵抗評価手法を新たに開発し、Au-Si 界面における接触熱抵抗を精緻にモニタリング可能なセンシング技術を確立した。

### (3) ソーレー強制レイリー散乱法の開発

直接メタノール型燃料電池に用いられる電解質膜内メタノール水溶液の相互拡散係数を高速非接触で光学的に測定する手法を新たに開発した。非常に高感度な検出手法を提案し、微弱なメタノール水溶液の拡散情報を抽出することに成功した。開発したソーレー強制レイリー散乱法において、3成分溶液の交差拡散を考慮した理論を新たに導出し、3成分ポリマー溶液の交差拡散係数の濃度依存性を明らかにした。また、負の交差拡散係数の存在を初めて明らかにした。更に、光MEMS (MicroElectroMechanical Systems:微小電気機械システム) 技術を用いたマイクロ拡散センサーの開発に成功した。数 mm 角のチップ内に、数 $\mu\text{m}$  程度の干渉縞間隔で濃度分布を励起するシステムを集積化し、高速な拡散係数モニタリング技術を開発した。

### 3. 現在までの達成度

当初の計画以上に進展している。

(理由) 本研究課題の目的は、ナノ・マイクロレベルの熱・物質・運動量輸送物性 (熱伝導率, 温度伝導率, 相互拡散係数, ソーレー係数, 粘性係数, 表面張力, 表面粘弾性質) を超高時空間分解かつ非侵襲・in situ でセンシング可能な計測技術の確立と新たな応用を世界に先駆けて提案することであり、センシング技術の要素技術は当初の計画を大幅に前倒して達成されている。更に、『2. 研究の進捗状況』で示したように、当初予定していた平成 22 年度以降の研究計画である「熱物性センシングの応用」に関する新しい知見の一部を既に得ており、平成 22 年度以降の目標を超える研究成果が得られることは確実である。

### 4. 今後の研究の推進方策

近接場ファイバプローブ先端における過度な吸収が問題であることが明らかとなった。シミュレーションの結果、Agを遮蔽膜として用いることで、励起光吸収を大幅に低減させることが明らかとなり、高効率近接場ファイバプローブ開発が解決に繋がると予想される。高効率近接場ファイバプローブの開発は、自己組織化単分子膜の光学的構造制御への応用が可能であり、ナノ・マイクロレベル熱物性センシングによるボトムアップとトップダウンの技術融合を促進し、新しいナノ材料デザイン技術開発が加速すると考えられる。

今後、開発した5つの熱物性センシング要

素技術の統合と高効率化および高安定化による更なるセンシング技術の高度化を行うことで、ナノデバイスの包括的なナノレベル熱・物質・運動輸送性質に関する基盤体系の構築を実現することができると考える。

### 5. 代表的な研究成果

(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 25 件)

(1)Kasahara, K. and Saiki, T., "Numerical simulation of near-field fluorescence correlation spectroscopy using a fiber probe", *J. Nanophotonics*, 4, pp.043502/1-6 (2010).

(2)Niwa, M., Ohta, Y., and Nagasaka, Y., "Mass Diffusion Coefficients of Cellulose Acetate Butyrate in Methyl Ethyl Ketone Solutions at Temperatures between (293 and 323) K and Mass Fractions from 0.05 to 0.60 Using the Soret Forced Rayleigh Scattering Method", *J. Chem. Eng. Data*, 54, pp.2708-2714 (2009).

(3)Taguchi, Y., Oka, T., Saiki, T., and Nagasaka, Y., "Development of Near-field Fluorescence Life-time Thermometry", *Nanosc. Microsc. Therm.*, 13, pp.77-87 (2009).

(4)Suzuki, M., and Saiki, T., "Near Field Fluorescence Correlation Spectroscopy Using a Fiber Probe", *Jpn. J. Appl. Phys.*, 48, pp.070209/1-3 (2009).

(5)Taguchi, Y., Ebisui, A., and Nagasaka, Y., "Miniaturized optical viscosity sensor based on a laser-induced capillary wave", *J. Opt. A: Pure Appl. Opt.*, 10, pp.044008-044013 (2008).

ほか

[学会発表] (計 91 件うち招待講演 14 件)

(1)Nagasaka, Y., "From measurement to sensing: New frontiers of micro and nano-scale transport properties research", *Symposium on Thermophysical Properties of Fluids: In Honour of Professor Sir William Wakeham*, Turcifal, Portugal, 10/3/2009

ほか

[図書] (計 0 件)

[産業財産権]

○出願状況 (計 0 件)

○取得状況 (計 2 件)

名称: 液体表面粘弾性質測定ヘッド及びそれを用いた液体表面粘弾性質測定装置

発明者: 長坂雄次、田口良広、蛭子井明

権利者: 長坂雄次、田口良広、蛭子井明、慶應義塾大学

種類: 特許

番号: 特許公開 2008-24132

取得年月日: 2008 年 10 月 9 日

国内外の別: 国内

ほか

ホームページ等

<http://www.naga.sd.keio.ac.jp/kiban-s.html>