

機関番号：12601
 研究種目：基盤研究（B）
 研究期間：2008～2010
 課題番号：20360061
 研究課題名（和文） 3次元温度場を創成するための積層立体チャネルチップの製作・制御技術の構築
 研究課題名（英文） production and control of a multilayered channel chip for 3-Dimensional thermal field
 研究代表者
 土屋 健介（TSUCHIYA KENSUKE）
 東京大学・生産技術研究所・准教授
 研究者番号：80345173

研究成果の概要（和文）：

本研究を通して、以下に示す成果を得た。

- ・ 拡散接合によって 3 次元のマイクロリアクタを製作する技術を確立した。そのために、SUS316 での最適接合条件を導いた。
- ・ 樹脂と金属のそれぞれのマイクロリアクタの熱的性能を比較し、材質の熱伝導率が熱交換効率に影響を与えることを示した。また、接合方法の異なるマイクロリアクタと比較して、拡散接合によるマイクロリアクタの優位性を示した。
- ・ 上記の条件で、冷却層の施された 100 層マイクロリアクタを製作した。また、マイクロリアクタを多層化して、冷却流路を配置することで、熱交換効率を向上できることを示した。

研究成果の概要（英文）：

This research led to the following conclusions:

- ・ We found the optimum bonding conditions for SUS316 in building 3-dimensional micro-reactors with diffusion bonding.
- ・ We compared the thermal performance of micro-reactors made of plastic and metal and showed that the thermal conductivity of the material affects the heat exchange efficiency. We also demonstrated better performance of a diffusion bonded micro-reactor compared to one with a different bonding method.
- ・ We produced a 100 layer micro-reactor with cooling layers. Arranging cooling flow channels in multi-layered micro-reactors can improve heat exchange efficiency.

交付決定額

（金額単位：円）

	直接経費	間接経費	合計
2008 年度	6,900,000	2,070,000	8,970,000
2009 年度	4,800,000	1,440,000	6,240,000
2010 年度	3,500,000	1,050,000	4,550,000
年度			
年度			
総計	15,200,000	4,560,000	19,760,000

研究分野：工学

科研費の分科・細目：機械工学・生産工学・加工学

キーワード：ナノ・マイクロ加工

1. 研究開始当初の背景

近年、微細なチャネルの中で物質を化学反応させるデバイス（化学チップと呼ぶ）が注目されている。微細なチャネル内では、拡散

分子輸送時間が短く反応が早く進行する、比表面積が大きくなり高速かつ正確な温度制御が可能になる、試薬や廃液の量が少なくなる、というメリットがある。これらの化学チ

ップは、現在は主に分析化学に利用され、微量の検体を分析したり、免疫分析の時間を大幅に短縮したりされている。

しかし、合成化学目的では、純度の高い合成や効率の良い合成が期待できる反面、その収量の少なさが問題になっている。そのため、積層によってチャンネルを並列化、集積化させる必要があるが、今度は内部に熱がこもって（あるいは冷え過ぎて）反応が制御できなくなるのが問題になる。たとえば、ベンゼンのニトロ化反応は発熱反応であるが、熱がこもってある一定温度以上に高くなると副生成物が生じる。また、原料が多種になり反応が複雑になればなるほど、各プロセスの温度を細かく制御しなければならなくなるし、「始めチョロチョロ、中パッパ」というように時間的に加熱・冷却を制御する必要も生じる。つまり化学チップの最大の問題は、温度制御なのである。

これらの要求を満たすために、積層した化学チップの中に3次元の温度場を設計通りに創成したいのだが、これまでの研究を見ると実現していない。その原因として、熱伝導の悪いシリコン・樹脂・ガラスなどの材質が使われていること、冷却・加熱のためのチャンネルを3次元の形状で作れないこと、そのチャンネルの表面で、流体と構造物との間の熱伝達がコントロールできないこと、などがあげられる。たとえば、従来の化学チップは加工技術の制約から主にシリコンや樹脂が材料として用いられてきた。また、申請者らの予備実験でも、積層チップの冷却チャンネルは平面形状に留まっているし、チャンネルに熱媒・冷媒を流して積極的に加熱冷却を繰り返す射出金型の開発を行ったが、表面の熱伝達率が安定せず制御ができていない。

また、現在の化学分野の研究では、反応時の温度は mK オーダで議論されている。微細な空間、すなわち化学チップ上ならそのレベルで制御することが可能なはずだが、チップ内の温度を mK で測るセンサもないし、加熱・冷却を精密に制御するアクチュエータも小さくならない、現状では全く注目されていない。

これに対し、冷却・加熱媒体の流路を立体化するのは溝を有する板を積層すれば実現できる。このとき、層間に隙間ができて熱抵抗が大きくなる。たとえば申請者らがこれまでにレーザ溶接によって層間接続を試みてきたが、接合部以外の面には空隙が残る。また層自体がガラスなどでは熱抵抗がそもそも大きいので、金属を使えばよい。したがって、金属で面全体を接合するような加工法が求められる。

2. 研究の目的

- 本研究で行うことは、以下の4点である。
- (1) 拡散接合による金属層間の接合技術の確立
 - (2) 精密温度センサの開発
 - (3) 熱伝達率の安定化のためのチャンネル表面状態の制御
 - (4) 上記技術を用いた金属製の積層立体チャンネルチップの試作・評価

具体的には、まずは積層チップ製造の基本技術となる拡散接合技術を確認する。これまでにレーザ溶接技術にマイクロリアクタのプロトタイプを製作してきたが、レーザ溶接のような局所的な接合では真実接触面積（伝熱面積）が小さくなり、内部に熱がこもりやすい。しかし、拡散接合のように層の全面を接合すると、伝熱面積が大きくなり、上記の問題は解決可能と考えられる。各層に加工された流路形状を崩さずに、層間の接合強度と真実接触面積が最大になるように接合面の面粗さ・接合温度・圧力の各パラメータを最適化する。

次に、内部の温度を測定できる精密温度センサの開発を行う。周囲に影響を与えることなく速やかに周囲の温度に追従するには、温度センサの熱容量が微小であることが求められる。ヒータやペルチェ素子などの熱制御アクチュエータを小型化し、チャンネルチップへの統合を試みる。

また、熱媒・冷媒をチャンネルに流しても、チャンネル表面での固液接触状態が安定しないため熱伝達を制御できない。したがって、熱媒・冷媒を安定接触させるためにチャンネル表面状態を制御する。具体的には表面を電界研磨あるいは局所メッキなどで平坦化させる技術や、そこに微細形状を加工して表面積を大きくする技術、さらに親水処理（あるいは親油処理）などを施して接触状態を改善する。

これらの技術を統合して、化学合成のための積層チップを試作する。ターゲットとする化学反応を選定し、それに最適になるように内部チャンネルや温度センサ等の機能要素のレイアウトを設計する。試作したデバイスを、実際の化学反応実験を通して評価する。

3. 研究の方法

まず、(1) 拡散接合による金属層間の接合技術の確立と、(2) 精密温度センサの開発、および(3) 熱伝達率の安定化のためのチャンネル表面状態の制御を、並行して行い、その後(4) 金属製の積層立体チャンネルチップの試作・評価を行う。

- (1) 拡散接合による金属層間の接合技術の確立

積層構造チップを作るうえで重要な技術は、チャンネル加工と層間の接合技術である。冷却・加熱チャンネルを積層して温度制御を行うため、チャンネルをより高密度で多層に積層し、層間の熱伝導を高く保ちながら接合する技術が必要になる。

本研究では、まず、材質を選定し、当該材質に対する加工・接合の条件検討を行う。

材質選定の際には、耐熱性、耐腐食性という使う側の評価基準と、加工性、接合性という作る側の基準との両面を考慮する。本研究では、耐腐食性用途で汎用的に用いられるオーステナイト系ステンレス SUS316L の他、ハステロイ、インコネル等のニッケル系合金について検討する。

チャンネル加工は、2 次元の形状は現有の加工機でほぼ実現できる。本研究では 3 次元のチャンネルを作るために、立体形状を多数の断面にスライスしてそれぞれを加工したものを積層する。各層を効率良く加工するために、現有加工機の他に新たに多機能デスクトップ型加工機（高島産業社製、MultiProIII）を購入して用いる。

また、拡散接合のために、現有の真空加熱炉を用いる。拡散接合の制御パラメータとして、接合面の面粗さ、接合温度、加圧力に注目し、チャンネル形状が維持されながら、接合面の熱伝導率および接合強度がバルクのそれに近付くように、種々の材質について最適な条件を検討する。接合面は現有の研磨機・粗さ計で加工・評価する。接合強度はシャルピー衝撃試験によって評価する。

(2) 精密温度センサの開発

チャンネル内部の各位置の温度を精密に測定するために、熱電対を微細化して超精密温度センサを開発する。これまでに微細な熱電対をアレイ状に配置することで、液体内部やチップ内部との間の熱流束測定を実現してきた。そのために、前述の集束イオンビームや現有のフェムト秒レーザー装置などを用いて熱電対先端に微細加工を行う。

(3) 熱伝達率の安定化のためのチャンネル表面状態（形状・物性）の制御

チャンネル表面の熱伝達率の向上・安定化のために、電界研磨あるいは局所メッキなどで平坦化させる技術、そこに微細形状を加工して表面積を大きくする技術、さらに親水処理（あるいは親油処理）を施す技術の 3 つの方針を試みる。局所的な電界研磨・メッキのためには微細な電極を作る。これをチャンネル形状に沿ってスキャンさせることでチャンネル表面だけを研磨あるいはメッキすることができる。微細形状には、高速原子線装置、イオンビーム装置、フェムト秒レーザー装置等から最適なものを選んで用いる。また、金属板表面に疎水処理を施す処理を微細チャンネル

にも適用する。

(4) 上記技術を用いた金属製の積層立体チャンネルチップの試作・評価と

個々に開発した技術要素を統合して、金属製の積層立体チャンネルチップを試作する。

これを用いて実際に反応実験を行い、温度制御性の他、設計や加工技術の評価を行う。ターゲットとする化学合成反応として、これまでにベンゼンのニトロ化反応のような有機化合物の合成を行って、レーザ溶接で層間を接合した単層構造あるいは 3 層構造の金属チップの評価を行ってきたが、本研究でもそれに近い発熱反応を選定してチャンネルチップの性能を評価する。

合成反応の生成物は、ガスクロマトグラフィ、液体クロマトグラフィ、核磁気共鳴装置（NMR）を用いて成分を分析する。さらに、実験の結果から得られた知見を設計段階にフィードバックして、温度制御性の最適化を図る。

4. 研究成果

(1) 拡散接合による金属層間の接合技術の確立

耐熱性、耐腐食性のほか、加工性、接合性を考慮して、オーステナイト系ステンレス SUS316 を選定し、詳しく接合条件の検討を行った。チャンネル加工は、2 次元の形状は現有の加工機でほぼ実現できるが、各層を効率良く加工するために、現有加工機の他に新たに多機能デスクトップ型加工機（高島産業社製、MultiProIII）を購入して用いた。また、拡散接合の制御パラメータとして、接合面の面粗さ、接合温度、加圧力に注目し、最適な条件を検討した。その結果、接合面表面粗さ $Ra \approx 0.20 \mu m$ 、接合雰囲気 $5 \times 10^{-3} Pa$ 、接合圧力 10MPa、接合時間 4 時間の下で、1100°C の接合温度が最適であり、それより高い温度ではチャンネル形状が維持されず、それより低い温度では接合強度が十分に確保できないことが分かった。接合強度の評価には、引っ張り試験とシャルピー衝撃試験との両方を行った。上記の最適条件下での接合強度は、バルクの材料と比較して引っ張り強度でほぼ 100%、シャルピー衝撃試験で約半分の強度が得られることを確かめた。

また、引っ張り試験、シャルピー衝撃試験などを行わずに、接合面の接合強度を評価するために、接合面積率を新たにパラメータとして導入し、接合面積率が引っ張り強度およびシャルピー衝撃値と相関があることを示した。また、断面の観察像から接合面積率を見積もる方法を開発した。

さらに、接合面積率と接合面における熱伝達率との相関を調べた結果、本研究で実現し

ているレベルの接合面積率ではバルク材料との違いが見られないことが分かった。

(2) 精密温度センサの開発

チャンネル内部の各位置の温度を精密に測定するために、熱電対を微細化して超精密温度センサを開発した。これを流路内部へアクセスする方法として、接合界面への配線は絶縁膜の信頼性を確保するのが難しいことが問題であることが明らかになったため、本研究ではセンサ・熱デバイス専用の配線路を加工して積層する方法を提案し、着脱可能な微細温度センサを用いて反応流路内の任意の位置における温度測定が可能であることを示した。

(3) 熱伝達率の安定化のためのチャンネル表面状態の制御

ステンレス基板にニッケルメッキを施す際の最適な電流密度やメッキ液の攪拌条件を検討し、表面性状に優れる条件を見出すとともに、そのときの残留応力を評価した。

(4) 積層立体チャンネルチップの試作

チップの設計は、流路が表面から裏面まで貫通する流路層と、流路を加工せずスルーホールのみを加工した隔壁層とを交互に積層することを提案した。この方法によれば、チャンネル加工は、流路層、隔壁層に分けて加工すれば、それぞれ多層を一括で加工できるため、加工時間を大幅に短縮できる。本研究では、溶液反応の流路層と、冷却流路層を交互に100層配置したチップを試作した。さらに、(3)で提案したセンサ専用の配線路も作りこんで、流路内部の温度分布を計測し、内部に熱がたまりやすいという積層流路一般の問題点を明らかにし、それを冷却流路の導入によって解決できることを示した。試作品の評価実験として、ベンゼンのニトロ化反応を実際に行い、従来より高い選択率で目的反応物を生成できる、すなわち冷却効率が優れていることを確認した。

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3件)

- [1] Tsuchiya, K.; Nunokawa, T.; Kikuchi, A.; Nakao, M., Study on Multi-layering of Metal Micro-reactor Using Diffusion Bonding, Proc. ASPE Annual meeting 2010, Vol. 49, pp. 381-384, 2010, 査読無
- [2] 秋葉晃介, 土屋健介, 中尾政之, 微細形状を有する射出成形金型壁面における

伝熱現象の解明, 成形加工'09, 341-342, 2009, 査読無

- [3] Kentaro Miyazaki, Yasuhiro Tani, Kensuke Tsuchiya, Yasuyuki Kamimura, Development of an electroplated polishing tape applying electrodeposited nickel foil method, Manufacturing systems and technologies for the new frontier, pp. 459-462, 2008, 査読無.

[学会発表] (計3件)

- [1] 小竹良弘, 布川 亨, 土屋健介, 拡散接合による金属製多層マイクロリアクタにおける反応物の大収量, 2010年度精密工学会秋季大会, 2010/9/27, 名古屋大学.
- [2] 布川亨, 菊池篤徳, 土屋健介, 中尾政之, 拡散接合による多層化金属マイクロリアクタの熱交換効率の向上, 2010年度精密工学会春季大会学術講演会, 2010/3/16, 埼玉大学.
- [3] 布川亨, 菊池篤徳, 土屋健介, 中尾政之, 拡散接合を用いた積層形マイクロリアクタの高強度化, 2009年度精密工学会春季大会, 2009/3/13, 中央大学.

[図書] (計0件)

[産業財産権]

○出願状況 (計0件)

○取得状況 (計0件)

[その他]

6. 研究組織

(1) 研究代表者

土屋 健介 (TSUCHIYA KENSUKE)
東京大学・生産技術研究所・准教授
研究者番号: 80345173

(2) 研究分担者

中尾 政之 (NAKAO MASAYUKI)
東京大学・大学院工学系研究科・教授
研究者番号: 90242007

濱口 哲也 (HAMAGUCHI TETSUYA)
東京大学・大学院工学系研究科・特任教授
研究者番号: 90345083

(3) 連携研究者