

科学研究費助成事業 研究成果報告書

平成 29 年 6 月 16 日現在

機関番号：12608

研究種目：基盤研究(B) (一般)

研究期間：2014～2016

課題番号：26289026

研究課題名(和文) 電界共役流体マイクロポンプを内蔵したマイクロ液滴生成デバイスの開発と応用

研究課題名(英文) ECF micropump-integrated Micro droplet generating device and its applications

研究代表者

金 俊完 (KIM, Joon-wan)

東京工業大学・科学技術創成研究院・准教授

研究者番号：40401517

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 12,700,000円

研究成果の概要(和文)：安価で大量生産が可能であると同時に、マイクロポンプを内蔵したマイクロ液滴生成デバイスを実現するために、直流電圧の印加により電極間に活発な流れが発生する電界共役流体(ECF)の駆動原理とマイクロマシン(MEMS)の加工技術を融合した新たな手法を開発した。このマイクロ液滴生成デバイスは、(a) オイルを駆動するECFマイクロポンプ、(b) 水溶液を駆動するECFシリンジマイクロポンプ、(c) マイクロ分岐流路で構成され、すべてをバッチプロセスのMEMS技術によりワンチップで製作できる。このマイクロ液滴生成デバイスの構成デバイスを製作し、性能を明らかにし、その有効性を確認した。

研究成果の概要(英文)：An electro-conjugate fluid (ECF) is a kind of functional fluid. A strong and active jet flow of ECF can be generated between electrodes surrounded by ECF, when high DC voltage is applied to the electrodes. In order to realize a micro droplet generating device embedding a micro pump inside, we integrated the ECF jet effect as a driving mechanism and MEMS technology as its fabrication. This micro droplet generating device is composed of (a) an ECF micropump for driving oil, (b) an ECF syringe micropump for driving aqueous solution, and (c) micro fluidic channels, all of which are made by MEMS technology of batch process. It can be manufactured with one chip. All components of this micro droplet generating device were successfully fabricated. The performance of them was clarified, and its effectiveness was confirmed.

研究分野：マイクロメカトロニクス

キーワード：マイクロポンプ

1. 研究開始当初の背景

油と水のような非混合液体をT字のようなマイクロ分岐流路に導入することにより、片方の流体が他方の流体の中にマイクロ液滴を生成することができる。このマイクロ液滴は、サイズが均一であり(CV値:5%以下)、高速に生成できる(1000個/秒)ことから、(a)単分散ポリマー微粒子、(b)二色ポリマー微粒子、(c)多相エマルジョンの形成に応用されている。また、マイクロ流路よりさらに小さいマイクロ液滴を用いることから、システムの小型化、反応速度の向上、試薬やサンプル量の低減などの特長を有する、(d)micro-TAS、(e)Lab-on-a-chip (LOC)の究極の方法として研究されている。しかしながら、分析すべきサンプルは微量であり、マイクロ分析チップは手のひらに乗るようなサイズであるにも関わらず、外部ポンプと配管があるためにシステム全体の小型化は困難であった。コンパクトかつ高速処理が可能なマイクロ分析チップの本来の価値を引き出すためには、(1)マイクロ分岐流路とともに集積が可能で、(2)発生圧力と流量を容易に制御でき、(3)振動・脈動がないなどの厳しい条件を満たすマイクロポンプが必要である。Thorsenらが2001年に世界で初めてマイクロT字路を用いてマイクロ液滴を生成して以来、このようなマイクロ液滴について報告された数百件の論文の内、上記の条件をすべてクリアした研究は存在しない。

2. 研究の目的

世界で最もデッド・ボリウムが少ないマイクロ液滴生成システムの実現を目的とし、電界共役流体 (Electro-Conjugate Fluid: ECF) に着目している。ECFとは、その中に挿入された電極対に直流電圧を印加することで電極間に活発なジェット流を発生させる機能性流体である。この ECF ジェットを用いたポンプは、電気エネルギーを機械エネルギー(流体の流れ)に直接変換するダイナミックポンプ (ECF マイクロポンプ) であり、機械的な摺動部・可動部がなく、無音・無振動であるため、マイクロ液滴の生成におけるサイズの均一性の観点で有利である。また、微細な電極対と液体 (ECF) のみでジェットの発生が可能であり、今まで困難であったマイクロ流路とマイクロポンプの集積化が実現できる。多様なサイズのマイクロ液滴を実現する観点からも、ECF ジェットは電極対の直列配置により発生圧力を、並列配置により流量を向上させるため、マイクロ分岐流路においてマイクロ液滴のサイズの制御に適している。上記の特長を有するマイクロ液滴生成デバイスを開発し、その具体的な応用例に適用することによって、その有効性を示すことを目的とする。

3. 研究の方法

(1) ECF 電極形状、マイクロ流路形状の検討によるマイクロ液圧源の最適化

ECF は一種の絶縁オイルであり、ECF マイ

クロポンプにより ECF に直接流れを発生させる。MEMS 技術により製作した三角柱 - スリット形電極対 (TPSE) を用いて電極対形状の主要パラメータの最適化を実施する。この TPSE の製作は、申請者が所属する大学のクリーンルームの共同利用機器と申請者の研究室で保有している電解メッキ装置を使用するが、電極対形状の最適化には莫大な数のマイクロデバイスで短時間で製作する必要があり、追加で1台の電解メッキ装置を製作する。マイクロ構造体製作に必要な高アスペクト比を実現するために厚膜フォトレジストを用いる。また、新たな ECF 電極形状とマイクロ流路形状を考案、試作、実験を行うことによって、三角柱 - スリット電極よりも高出力パワー密度を実現できる新たな電極対を提案する。

(2) ECF シリンジマイクロポンプの提案と開発

マイクロ分岐流路を用いたマイクロ液滴生成デバイスでは、オイルの流れと水溶液の流れを制御する必要がある。ECF は絶縁油の一種であり、オイルの搬送には問題ないが、水溶液の直接搬送はできない。油と水が非混合流体であることを利用して、ECF 駆動のシリンジポンプを考案した。バルブレスのものとチェックバルブを有するものを開発する。摺動部がないことからバルブレス方式の方が簡易に制作できるため、まずバルブレスのデバイスを製作する。ECF シリンジポンプの有効性を確認した上で、チェックバルブを有する ECF シリンジポンプを MEMS 技術で製作する。ECF シリンジポンプは高アスペクト比フォトレジスト構造体と ECF 電極対から主に構成されるが、最終的に流路のシーリングを行う際に構造体と ECF 電極対の高さの不均一が問題となる。その問題を解決する具体的な方法として超精密研磨を実施しフォトレジスト構造体と電極の高さを平坦化させる。超精密研磨には申請者が所属する大学の精密工作センターの精密平面研削盤を使用する。

(3) マイクロ液滴生成デバイスの提案と開発

本研究で開発した ECF シリンジポンプを用いて、ECF 駆動マイクロ液滴生成デバイスを開発する。T字路を用いたマイクロ液滴生成デバイスと十字路を用いたマイクロ液滴生成デバイスを開発する。また、オイル、水溶液、オイルを交互に配置することでマルチエマルジョンを生成することもできる。

4. 研究成果

(1) 電極形状の工夫による ECF マイクロポンプの高性能化

電界共役流体 (ECF) とは直流電圧印加により活発な流動を生じる機能性流体であり、この ECF 効果を用いたポンプは電極対と流路のみで構成される点、電極寸法の微小化により出力が向上する点から微小かつ高出力な液圧源として期待されている。一方で強い流

動発生に必要となる数 kV の高電圧の低減が実用化課題である。本研究課題では ECF マイクロポンプのさらなる高パワー密度化と低駆動電圧化による ECF マイクロポンプの高性能化を目的とする。

まず、ECF マイクロポンプのさらなる高パワー密度化のために、ECF マイクロポンプ用電極である三角柱 - スリット形電極対 (TPSE) の高アスペクト比化を図る。従来の電鍍を主とした製作プロセスとは異なり、Deep reactive ion etching (DRIE) を用いた Si エッチングにより高アスペクト比 TPSE を製作するプロセスを提案し、従来の TPSE の電極高さ約 500 μm より高い約 700 μm の電極対の製作に成功した。この高アスペクト比 TPSE を用いた ECF マイクロポンプにより圧力・流量の特性実験を行った結果、発生流量は電極高さの比と同等である約 1.3 倍に増加し、TPSE のアスペクト比上昇がポンプの性能向上に効果的であることが示された。一方で従来の ECF マイクロポンプと比べ発生圧力はやや減少したが、その原因は DRIE プロセスで生じるサイドエッチングによる電極間隔の増加とみられ、製作プロセスの改善により設計値とのずれを最小限にすることで、今後 ECF マイクロポンプの高パワー密度化が可能であると考えられる。

次に、ECF マイクロポンプの低駆動電圧化のために、電極間の電界増強を目的として TPSE の三角柱電極上に微細突起を持つ ECF マイクロポンプに着目し、カーボンナノチューブ (CNT) 複合 Au めっきにより微細突起を形成する製作プロセスを提案し、デバイスの製作を行った。この CNT 微細突起を持つ ECF マイクロポンプを用いて圧力・流量特性実験を行った結果、三角柱電極を高電圧側、スリット電極対をグラウンド側とし、ECF ジェットを発生させた特性実験において、発生圧力・流量がそれぞれ従来の約 1.5 倍、3 倍に増加し、CNT 微細突起による電界増強が ECF ジェット発生に有効であることを明らかにした。また、低駆動電圧領域では従来の ECF マイクロポンプと特性の差は見られなかったが、電極上の CNT 量が少ないためポンプ全体の流れとして流動が得られなかった可能性があり、めっき条件の最適化により CNT 微細突起をより高密度に形成できれば ECF マイクロポンプの低駆動電圧化が可能になると考えられる。

(2) 電界共役流体 (ECF) を用いたシリンジポンプ

マイクロ流体デバイスおよび $\mu\text{l}/\text{min}$ オーダの液送をする外付けの送液装置を含むシステム全体の小形化のために、十分な性能を有するマイクロ送液ポンプの開発が求められており、本研究課題では、電界共役流体 (ECF) を用いた小形なシリンジポンプを開発することを目的とする。提案する送液ポンプには、(1) 直流高電圧の印加により電極間に発生する活発な ECF ジェット流を利用する ECF マイクロポンプ、(2) 油 (ECF) と水は混ざ

り合わない性質に利用する ECF 流体液中ピストンおよびマイクロ流路から構成されるマイクロシリンジ、(3) 流れ方向ごとの流動抵抗差により整流するディフューザ形状の非対称性流路の 3 つの要素を集積し、機械的な可動部のないシンプルな構造のバルブレスマイクロポンプをワンチップ (22.3 mm \times 25.2 mm \times 1.5mm) で実現した。MEMS プロセスと電鍍技術の組合せにより製作される本デバイスは、ECF マイクロポンプ部分の三角柱電極がスリット形電極に対向するように配置されているため、電圧を印加する電極を切替えることで ECF の流れ方向を切り替えられる。それにより水と ECF の界面が往復し、ディフューザノズルにより正味量として水の送液が行なわれる。ECF のみを満たしたデバイスでポンピング流量を測定したところ、20Hz 付近をピークとして最大で 90 $\mu\text{l}/\text{min}$ の流量が得られた。水と ECF を満たし同様の実験を行なった結果、流路の非対称性により界面が継時的に移動してしまう問題が生じたため、2 つのフォトセンサを用いて界面の位置を検出し、センサ間を界面が自動的に往復するように変更している。これにより 0.30kV 印加時に 0.6 $\mu\text{l}/\text{min}$ の流量を得られ、実験的に微小流量の送液ができる可能性が明らかになった。しかし、0.3kV 以上印加時 (界面移動速度 3-5mm/s) に水や ECF が流路壁面に残着してしまう様子が確認され、目標発生圧力を 10kPa とすると界面の移動速度は 29mm/s (0.8kV 印加時) となり、正常にセンシングされない可能性がある。そこで、ECF マイクロポンプの性能を十分に発揮するために、流路壁面を撥水化処理する方法を提案している。処理後の実験において、残留しはじめる界面移動速度を計測したところ、30% 向上し、十分とはいえないが一定の効果がみられた。また発生体積流量に対する流速小さくするためにシリンジ部の流路幅を大きくする手段を提案している。流路幅を 0.7mm から 4.5mm にしたところ、界面の形成は確認できたため、撥油処理等の表面処理と併せて実験することで、解決する可能性が示唆された。

(3) マイクロチェックバルブの製作とこれを集積した ECF マイクロ液圧源

ECF マイクロポンプの MEMS プロセスとの適合性を考慮するとカンチレバータイプのチェックバルブが適切であると考えられる。このチェックバルブを集積化した ECF マイクロ液圧源では、24 個の双方向 TPSE を直列に配置し高圧力の ECF ジェットが得られるようにする。また、流路壁の形成と同じプロセスでカンチレバーを製作し、注入口に CV1 を、吐出口に CV2 を設ける。提案したデバイスの製作は、TPSE の製作方法を変更した MEMS プロセスを用いる。(1) ガラスウエハ上に金とチタンの配線層を形成する。(2) 厚膜のネガティブレジストをパターンニングすることで鋳型を形成する。(3) ニッケルめっきで TPSE 形状を電鍍する。(4) 鋳型を剥離し、電極表面

を金めっきでコーティングする。(5)カンチレバーとなる部分の下に犠牲層を成膜する。(6)厚膜レジスト(SU-8)で流路とカンチレバーを形成し、犠牲層を溶かす。カンチレバーを形成し、動作可能にさせるためには、隙間が必要である。サイドギャップはフォトリソグラフィのマスクパターンで比較的簡単に調整できるが、ボトムギャップは選択的に除去できる犠牲層をフォトレジスト(AZ5214E)で形成することで可能になる。提案したMEMSプロセスで製作した双方向ECFジェット発生用の三角柱-スリット形電極対(TPSE)とそのマイクロ流路とカンチレバー形マイクロチェックバルブのMEMS製作に成功した。この製作結果から提案するMEMSプロセスは有効であることが明確になった。

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 6件)

Dong Han, Hongri Gu, Joon-wan Kim, Shinichi Yokota, A bio-inspired 3D-printed hybrid finger with integrated ECF (electro-conjugate fluid) micropumps, Sensors and Actuators A: Physical, Vol. 257, 2017, pp. 47-57 (査読有)

Joon-wan Kim, Thanh V.X.Nguyen, Kazuya Edamura, Shinichi Yokota, Triangular Prism and Slit Electrode Pair for ECF Jetting Fabricated by Thick Micromold and Electroforming as Micro Hydraulic Pressure Source for Soft Microrobots, International Journal of Automation Technology, Vol. 10, 2016, pp. 470-478 (査読有)

Tomoya Miyoshi, Kazuhiro Yoshida, Joon-wan Kim, Sang In Eom, Shinichi Yokota, An MEMS-based multiple electro-rheological bending actuator system with an alternating pressure source, Sensors and Actuators A: Physical, Vol. 245, 2016, pp. 68-75 (査読有)

Dong Han, Joon-wan Kim, Shinichi Yokota, Kazuya Edamura, ECF micropump fabricated by electroforming with novel self-aligned micro-molding technology, Journal of Physics: Conference Series, Vol. 660, 2015, pp. 012029 (査読有)

小林紀穂, 倉科佑太, 竹村研治郎, 横田眞一, 枝村一弥, 電界共役流体を用いた Droplet μ TAS のための液滴混合デバイスの開発, 日本機械学会論文集, 80巻, 2014, MN0332 (査読有)

Shinichi Yokota, A Review on micropumps from the viewpoint of

volumetric power density, Mechanical Engineering Reviews, Vol.1, 2014, pp.1-11 (査読無)

[学会発表](計 30件)

清水美咲, 西岡國生, 松谷晃宏, 吉田和弘, 金俊完, DRIEによる高アスペクト比三角柱-スリット形電極対(TPSE)の製作に関する研究, 日本機械学会山梨講演会 2016, 2016/10/22, 山梨大学(山梨県) Misaki Shimizu, Kunio Nishioka, A. Matsutani, Kazuhiro Yoshida, Joon-wan Kim, 20th International Conference on Mechatronics Technology (ICMT2016), 2016/10/28, Dalian, China

MAO ZEBING, 吉田和弘, 金俊完, マイクロチェックバルブを集積したECFマイクロ液圧源の提案, 平成28年秋季フルードパワーシステム講演会, 2016/10/20, 青森市文化観光交流会館ねぶたの家ワ・ラッセ(青森県)

松原竜也, 金俊完, 横田眞一, 枝村一弥, ECFジェット駆動水溶液ポンピングシステムにおける流路への水の残留に関する研究, 第16回日本機械学会機素潤滑設計部門講演会, 2016/04/17, グランディア芳泉(福井県)

韓冬, 金俊完, 横田眞一, 枝村一弥, 自己整合によるマイクロ鋳型を用いたECFマイクロポンプの提案, 平成27年秋季フルードパワーシステム講演会, 2015/11/26, ジェイドガーデンパレス(鹿児島県)

Joon-wan Kim, Seiya FURUKI, Shinichi YOKOTA, Kazuya EDAMURA, Study on increasing output power density in ECF micropumps, The KSFC 2015 Autumn Conference on Drive and Control International Session, 2015/10/23, Busan, Korea

松原竜也, 金俊完, 横田眞一, 枝村一弥, ディフューザ形状の非対称流路とECFマイクロポンプを統合した水溶液ポンピングシステムの開発, 日本機械学会山梨講演会 2015, 2015/10/14, 山梨大学(山梨県)

松原竜也, 金俊完, 横田眞一, 枝村一弥, ECFジェット駆動ディフューザ形バルブレスマイクロポンプの提案, 日本機械学会 2015年度年次大会, 2015/9/13, 北海道大学(北海道)

清水美咲, 金俊完, 横田眞一, 枝村一弥, DRIEを用いた三角柱-スリット型電極対の製作によるECF効果に関する研究, 日本設計工学会 2015年度春季大会研究発表講演会, 2015/05/30, 日本大学(千葉県)

Tatsuya Matsubara, Joon-wan Kim, Shinichi Yokota, Kazuya Edamura, Proposal of Pumping Aqueous Solution

Using ECF Micropump with Diffuser & Nozzle Mechanism, ICMDT2015, The 6th International Conference on Manufacturing, Machine Design and Tribology, 2015/4/22, Okinawa, Japan

(4)研究協力者 ()

その他 20 件の学会発表は省略する。

〔図書〕(計 件)

〔産業財産権〕

出願状況(計 件)

名称：
発明者：
権利者：
種類：
番号：
出願年月日：
国内外の別：

取得状況(計 件)

名称：
発明者：
権利者：
種類：
番号：
取得年月日：
国内外の別：

〔その他〕
ホームページ等

6. 研究組織

(1)研究代表者

金 俊完 (KIM Joon-wan)
東京工業大学・科学技術創成研究院・准教授
研究者番号：40401517

(2)研究分担者

吉田 和弘 (YOSHIDA Kazuhiro)
東京工業大学・科学技術創成研究院・准教授
研究者番号：00220632

巖 祥仁 (EOM Sang In)
東京工業大学・科学技術創成研究院・助教
研究者番号：20551576

横田 眞一 (YOKOTA Shinichi)
東京工業大学・精密工学研究所・教授
研究者番号：10092579

(3)連携研究者

()

研究者番号：