

平成 30 年 4 月 19 日現在

機関番号：17102

研究種目：基盤研究(B) (一般)

研究期間：2015～2017

課題番号：15H04161

研究課題名(和文) レーザ加工複合型インプリントプロセスの開発

研究課題名(英文) Development of imprinting process with laser-machining

研究代表者

津守 不二夫 (TSUMORI, Fujio)

九州大学・工学研究院・准教授

研究者番号：10343237

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 12,900,000円

研究成果の概要(和文)：本研究では、従来法において「樹脂材料に対し」「2次元パターンを転写」するだけであったインプリントプロセスの改良を目的としている。最終的には新たな燃料電池開発につなげる。具体的なプロセスは、セラミックコンパウンドシートへの成形加工、および、犠牲層となる樹脂へのレーザ加工プロセスを複合したものである。研究期間中に、流路の微細化、流路のリークテスト、流路の3次元的な変形制御を行うための多層成形材の変形特性評価、レーザ加工プロセスパラメータの最適化を行い、また、燃料電池の設計に関する指針を決定できた。

研究成果の概要(英文)：In this work, we improved nano-imprint lithography (NIL) process. The conventional NIL process uses only polymer material, and formed 2-dimensional pattern. We proposed and developed a new process to fabricate ceramic parts with wavy micro channels. The ceramic channels could be a candidate of the solid oxide fuel cells (SOFC), and our final goal is application of the proposed process to the improved SOFC. During this project, we achieved to fabricate finer channels, leak-testing, control of the process parameters to obtain designed channel structure, optimization of the laser processing. We also discussed to design a new type SOFC with micro channels.

研究分野：微細加工

キーワード：セラミックス 微細加工 微細流路 インプリントプロセス 燃料電池 SOFC

1. 研究開始当初の背景

インプリントプロセスは、樹脂に対する、いわゆるホットエンボス加工である。1990年代にプリンストン大学の S. Chou 教授がナノレベルの加工が可能であることを証明し、一躍話題となった。その後も世界中において活発な研究が続いている。現在では加工解像度はシングルナノレベルにまで達しており、高アスペクト比（高さ/幅）構造の作製も可能となっている。しかしながら、これらの構造は2次元パターンを押し出したのみの構造となっており、また、材質も一般には熱可塑性の樹脂に制限されていた。

申請者は、インプリントプロセスのバリエーションの増大を目的とし、科研費「マイクロナノインプリント粉体成形法の開発（若手 B：2006-2007）」、科研費「機能性表面創成のための多層・多段階インプリントプロセス（挑戦的萌芽：2013-2014）」をはじめとし、宇部興産学術振興財団（2010）、塑性加工技術振興事業基金（2011）等の助成を得て、インプリントプロセスを多角的に発展させる研究を続けてきた。その結果、セラミック等の無機材料を含めた多様な材料層へのインプリント加工により「多彩な界面構造」を有する構造が作製可能なことを示してきた。

さらに申請者は、インプリントプロセス開発と並行し、レーザによる微細加工およびレーザ積層造形といった、レーザを用いた材料加工に関する研究を遂行してきた（例えば F. Tsumori et al., *Jpn. J. Soc. Powder Powder Met.*, 61-5 (2014), p.255）。レーザ加工は典型的な除去加工であり、変形加工であるインプリントプロセスとの結合により内部3次元流路の構築等、加工バリエーションを大幅に増大することができると考えた。

2. 研究の目的

インプリントプロセスを用いた微細流路の開発はこれまでも行われてきた。例えば樹脂パターンを積層し内部流路を作製した開発例（Hu et al., *J. Vac. Sci. Technol. B*, 24-5 (2006) p.2225）では、樹脂のみの構造であり、また層間の結合にも不安が残っている。このようなプロセスでは、過酷な環境のための微細構造（Harsh environmental MEMS）や、高効率燃料電池のための微細流路構造は不可能である。

本研究では、粉末冶金法とレーザ微細加工を組み合わせることにより、上記のような問題を解決し、さらに、多方面で利用可能な自由な微細表面構造の構築と、その表面下への3次元流路構造の作製を行う。このプロセスにより、表面で熱の移動や化学反応を伴う高効率熱交換器や燃料電池へ直接利用できる。構造をさらに重ね合わせることで、生体内の毛細血管のように複雑に絡み合った内部流路ネットワークを構築することもで

き、このような自由度の高いプロセスにより、これまでの発想とは異なった設計での高効率の素子や電池の開発も可能となる。

独創性として最も強調すべき点はレーザ加工の利用である。従来の変形加工プロセスを適用するだけでは、多層構造の初期段階から最終段階にいたるまで、「トポロジーの変化が存在しない」。流路構造は「断面上の孤立部位」であり、トポロジーを変化させることなしに作製することはできない。ある層の一部を除去することにより初めてトポロジーを変化することが可能となる。構造の自由度を増大するためにはこのような除去加工が不可欠であり、レーザ加工を用いることによりインプリント成形加工に「次の違う形で」変化を与えることが可能となる。

この加工技術は固体酸化物型燃料電池（SOFC）へ応用可能である。SOFCは全セラミック構造の電池であるため、セラミック微細構造構築技術の高度化の恩恵を直接受けることができる。本研究では、燃料電池の研究と共に高性能 SOFC を実際に試作し、新加工プロセスの効果を実証する。SOFCには他にも平板型やチューブをスタックしたタイプといったさまざまなタイプが存在する。例えばハニカム型の燃料電池構造である。本研究では、同等の構造を、平板微細流路を活用した設計におきかえていく。

また、本プロセスは SOFC のみならず、微細加工が必要なさまざまな分野（MEMS, 熱交換器, μ TAS 等）において直接応用が可能であることを強調しておく。無機材料へ適用することにより、インプリント微細加工プロセスの利用をこれまでにない分野にまで広げていくことにつなげられる。

3. 研究の方法

紫外線レーザ光源を導入し、犠牲層を精緻に加工できるレーザ加工装置をくみ上げる。インプリント加工装置もサーボモータ駆動装置に移行し、成形条件を絞り込みながら流路形状パターン設計手法を確立する。まず、各種材料のレーザ加工特性を把握し、どの程度まで微細な加工が可能か、レーザ加工時および成形加工時の限界を探る。さらに多階層インプリント加工構造をレーザ加工と結合し、流路構造内に微細構造を組み込む。すなわち、流路の表面に微細な凹凸パターンを転写する。

本研究で提案・開発する内部流路作製法の加工概略のもっとも簡単な一例を図1に示す。まず、2層に積層した被加工材を用意する (a)。この表面にレーザ加工を施すことにより上層部の必要箇所を除去する (b)。その後、新たに上面に1層を配置し (c)、加熱・圧縮成形（インプリント）を施す。この際、モールドを用いると (d) のように表面に微細パターンを施すことができる。最初に積層した上層を樹脂犠牲層とし、下層を「無機粉

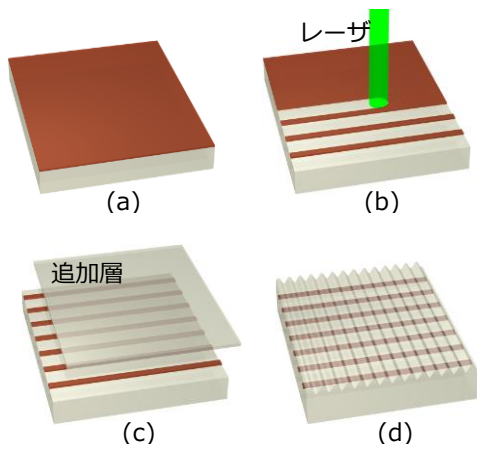


図1 本研究で提案する加工方法. 犠牲層とする樹脂は加熱により完全に分解され、流路を形成する.

末+樹脂材料」コンパウンドとすると、加熱・焼成後、(d)の成形体は微細流路を有するシート構造となる.

4. 研究成果

アルミナ粉末 (粒径 $0.1 \mu\text{m}$) とポリビニルアルコール水溶液を用い、コンパウンドシートを作製した. このシートを用い前節の手順を用いることにより図2のような凹凸表面を有し、かつ、内部に流路構造を有するセラミックス焼結体を得ることができた.

このような微細流路が非平面的に形成されたセラミックス例は過去になく、本プロセスの有効性が示されている.

シリカガラス粉末を利用した透明流路の開発や、内部にセラミックス電解質、電極を有する燃料電池 (SOFC) の開発も進めており、本技術は産業的にも広く適用できるものである.

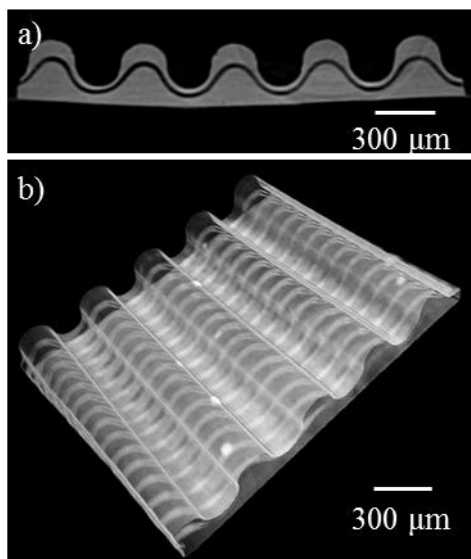


図2 得られた微細流路構造を含むセラミックス構造体の X-CT 透過像.

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 (計 5 件)

[1] Kazuki Tokumaru, Fujio Tsumori, Kentaro Kudo, Toshiko Osada, K. Shinagawa, “Development of multilayer imprint process for solid oxide fuel cells”, Japanese Journal of Applied Physics, 56, (2017) 06GL04.

[2] Fujio Tsumori, Kazuki Tokumaru, Kentaro Kudo, Toshiko Osada, Hideshi Miura, “Development of Corrugated Ceramic Sheet for SOFC Electrolyte by Micro Imprint Process”, Journal of the Japan Society of Powder and Powder Metallurgy, 63-7 (2016), 519-523.

[3] Fujio Tsumori, Simon Hunt, Kentaro Kudo, Toshiko Osada, Hideshi Miura, “Wavy Micro Channels in Micropatterned Ceramic Sheet Formed by Combined Process of Laser Beam Machining and Imprinting”, Journal of the Japan Society of Powder and Powder Metallurgy, 6-37 (2016), 511-518.

[4] Fujio Tsumori, Simon Hunt, Toshiko Osada, Hideshi Miura, “Formation of ceramic micro-channel by combination of laser beam machining and micro powder imprinting”, Japan Society of Applied Physics, 54 (2015), 06FM03.

[5] Fujio Tsumori, Lijan Shen, Toshiko Osada, Hideshi Miura, “Hierarchical patterning by multi-step micro-imprinting with layered materials”, Manufacturing Review, 2 (2015), 05.

〔学会発表〕 (計 14 件)

[1] 米倉和啓, 徳丸和樹, 工藤健太郎, 品川一成, 津守不二夫, “積層インプリントアルミナ成形体のスケールによる材料変形への影響”, 日本機械学会九州支部第71期総会講演会, 2018.

[2] 津守不二夫, “セラミックスナノ粒子分散樹脂を用いたインプリントプロセスの高度化”, 応用物理学会ナノインプリント技術研究会, 2018.

[3] 米倉和啓, 徳丸和樹, 津守不二夫, “積層インプリント成形体のスケールによる界面形状の変化”, ニューセラミックス懇話会第230回特別研究会, 2017.

[4] 徳丸和樹, 津守不二夫, “レーザー加工およびインプリントの複合加工による3次元

セラミック微小流路の開発”，ニューセラミック懇話会第230回特別研究会，2017.

[5] Kazuhiro Yonekura, Fujio Tsumori, Kazuki Tokumaru, Kentaro Kudo, Shinagawa Kazunari, “Study on control of interfacial pattern of imprinted multi-layered material”, The 30th International Microprocesses and Nanotechnology Conference, 2017.

[6] Kazuki Tokumaru, Simon Hunt, Fujio Tsumori, Kentaro Kudo, Shinagawa Kazunari, “Development of ceramic three-dimensional micro channel by combined process of laser processing and imprinting”, The 30th International Microprocesses and Nanotechnology Conference, 2017.

[7] 徳丸和樹, ハント戴紋, 津守 不二夫, 工藤健太郎, 品川 一成, “レーザ加工とインプリント加工の複合プロセスによるセラミック3次元マイクロ流路の開発”, 第34回「センサ・マイクロマシンと応用システム」シンポジウム, 2017.

[8] Kazuki Tokumaru, Fujio Tsumori, Shinagawa Kazunari, “Fabrication of Wavy-Electrolyte for SOFC by Micro Imprint Process”, 13th International Conference & Exhibition on Ceramic Interconnect & Ceramic Microsystems Technologies, 2017.

[9] Kazuki Tokumaru, Fujio Tsumori, Kentaro Kudo, Toshiko Osada, Shinagawa Kazunari, “Development of multi-layer imprint process for solid oxide fuel cell”, 29th International Microprocesses and Nanotechnology Conference, 2016.

[10] 津守 不二夫, “粉末プロセスを用いたセラミックス薄層への微細加工”, 日本塑性加工学会東海支部 第81回塑性加工懇談会, 2016.

[11] 津守 不二夫, 徳丸和樹, ハント戴紋, 工藤健太郎, 長田 稔子, “マイクロインプリントプロセスによるセラミックス微細表面パターンニング”, 日本機械学会年次大会, 2016.

[12] 津守 不二夫, “燃料電池高性能化に向けたインプリントプロセスによるセラミックス微細表面加工”, 天田財団産学交流会, 2016. (招待)

[13] Kazuki Tokumaru, Fujio Tsumori, Kentaro Kudo, Toshiko Osada, Hideshi Miura,

“Development of corrugated ceramic sheet for SOFC electrolyte by micro imprint process”, 3rd International Conference on Powder Metallurgy in Asia, 2015.

[14] Simon Hunt, Fujio Tsumori, Kentaro Kudo, Toshiko Osada, Hideshi Miura, “Wavy micro channels in micropatterned ceramic sheet formed by combined process of laser beam machining and imprinting”, 3rd International Conference on Powder Metallurgy in Asia, 2015.

[その他]

九州大学大学院工学研究院機械工学部門
材料加工学研究室 研究紹介ページ
<http://www.mech.kyushu-u.ac.jp/~zaika/research.html>

6. 研究組織

(1) 研究代表者

津守 不二夫 (TSUMORI Fujio)
九州大学・大学院工学研究院・准教授
研究者番号：10343237

(2) 研究分担者

河野 正道 (KOHNO Masamichi)
九州大学・大学院工学研究院・教授
研究者番号：50311634

(3) 連携分担者

中島 裕典 (NAKAJIMA Hironori)
九州大学・大学院工学研究院・助教
研究者番号：70432862