

平成 30 年 5 月 22 日現在

機関番号：11301

研究種目：挑戦的萌芽研究

研究期間：2015～2017

課題番号：15K13316

研究課題名(和文) 超臨界流体を利用したナノマイクロシステムの開発

研究課題名(英文) Development of nano/micro system using supercritical fluid

研究代表者

戸田 雅也 (Toda, Masaya)

東北大学・工学研究科・准教授

研究者番号：40509890

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 2,400,000円

研究成果の概要(和文)：流体は微小空間へ閉じ込められることにより通常と異なる物性を示すことが知られている。このような流体の「微小空間効果」を利用したマイクロチャンパデバイスを高圧に加圧できるマイクロチャンパを作製し、CO₂を微小空間に閉じ込め、超臨界流体の特異な物性を明らかにした。圧力を変えたときの熱抵抗変化からあきらかに臨界点と考えられる圧力近傍で熱抵抗の低下が観測された。また、微小空間に閉じ込めることで0.2 [MPa]の臨界圧力のシフトが観測できた。微小空間に閉じ込めた効果によって現れる物性変化が実証できたため、臨界点付近で状態が温度変化に敏感であることに基づいたデバイスへの応用の可能性を示すことができた。

研究成果の概要(英文)：The micro fluidic chamber with narrow gap for high pressurized fluid has been designed and fabricated. The carbon dioxide (CO₂) is injected into the narrow gap spaces of 0.5 μm and 1.6 μm. Their thermal resistance changes have been measured by changing the pressure and temperature. Hence, related to the effect of narrow space the critical pressure of supercritical CO₂ is shifted to lower values. When the gap distance is shorter, the pressure of the minimum total-thermal-resistance becomes lower. This "narrow space effect" is enhanced by the shorter gap distance. Additionally, the change of thermal resistance related to pressure change is more responsive for narrower spacing. The smaller spacing seems to make more sensitive responsibility of the inserted fluid property. These results indicate that the filled fluid in a micro-chamber can be applied for the applications of sensing and switching devices using variable physical properties of the packaged fluid in narrow spaces.

研究分野：マイクロシステム

キーワード：超臨界二酸化炭素 熱計測

1. 研究開始当初の背景

二酸化炭素(CO₂)は、身近なガスであり、液体や固体中に大量に保存されている。CO₂を有効に利用することは、大気中のCO₂を削減するという社会的問題を解決する対策として緊急の検討事項である。CO₂は、臨界温度が31.1度、臨界圧力が7.4MPaと扱い易いガス種であり、加圧されたCO₂は超臨界状態となって、液体や気体の特性を同時に有している。マイクロマシニングの分野では、超臨界CO₂(SC-CO₂)は加圧→昇温→減圧行程により、状態が液体→超臨界流体→気体と変化することで乾燥時に表面張力を受けないため、ウェットエッチングプロセス後の乾燥によく利用されている。SC-CO₂は、他にも熱伝導や密度、光学定数の変化に特徴があり、特に熱伝導率は臨界点付近では5倍以上変化することが知られている。一方で、物質がナノ構造体に閉じ込められた際にも物理的特性が変化することが知られていて、例えば、ナノスケールの流路に閉じ込められた水の粘性は通常よりも高くなり、かつ誘電率は低くなるということがわかっている。これは、微小な空間に分子が閉じ込められることで壁や分子間の相互作用が高められることに起因すると考えられる。

2. 研究の目的

流体は微小空間へ閉じ込められることにより通常と異なる物性をしめすことが知られている。このような流体の「微小空間効果」を利用したマイクロチャンバデバイスは、実現できるものであろうか？本研究では、高圧に加圧できるようなマイクロチャンバを使って、CO₂を微小空間に閉じ込め、超臨界流体の特異な物性を利用したマイクロチャンバデバイスの可能性を検証した。具体的には、2枚のガラス基板の間の薄い空間に、超臨界二酸化炭素を閉じ込めたマイクロデバイスを作製して、CO₂のSC-CO₂での特異な熱物性を測定し、微小空間への閉じ込めによって現れる特性がデバイスとして応用できるかどうかを検討することを目的とした。

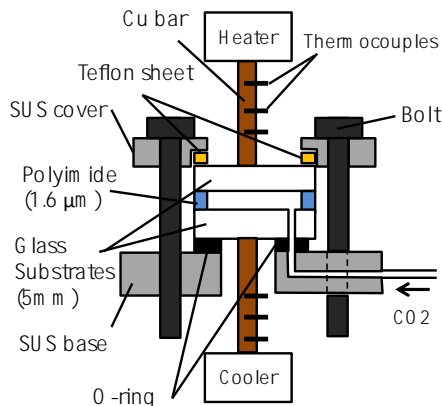


図1: Schematic image of the experimental set-up to measure the thermal resistance change of CO₂ at different pressures and temperatures.

3. 研究の方法

臨界点付近での熱的性質を計測するために、自作の熱抵抗変化計測装置を用い、2本の銅棒に熱電対を等間隔に設置し、それらの間にSC-CO₂を閉じ込めるマイクロデバイスを挟み、上部と下部をそれぞれ加熱・冷却して銅棒の温度変化からマイクロデバイスに依存する熱抵抗変化を計測した。作製するマイクロチャンバの構造は図1に示す。狭いギャップ構造は、図2に示すようなパターンニングした高分子層をガラスで挟む事により形成し、高分子層の厚さは、1.6μmと0.5μmとした。面積は5mm×5mmとした。高圧に耐えるよう、2枚のガラスは上下金属のプレートで押さえ込み(図3)組み立てたチャンバは図4のような自作の熱伝導計測システムに組み込んだ。

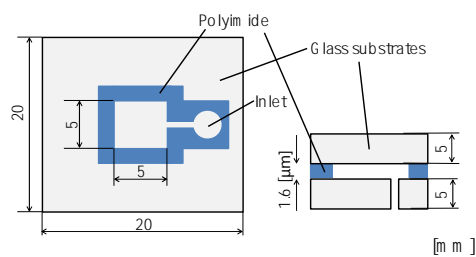


図2: Schematic image of the micro-chamber part with a narrow gap for filling a high pressured CO₂. Top view (left) and its cross section (right).

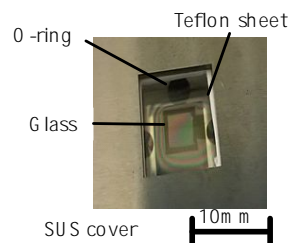


図3: Top view of the clamped device by SUS plates.

マイクロチャンバの上下には、銅製の棒で支持され、それらの銅棒には10mm感覚と熱電対が埋め込まれており、温度分布を正確に計測できるようにしてある。下部は室温で一定に保ち、上部はマイクロヒータによって加熱し、温度を一定に保つようにした。図5に示すように、銅棒内の温度T₁~T₆ [°C]から、デバイス上下T_{up}、T_{down}と、温度熱の流れQ [W]を求め、それらからデバイスの熱抵抗R=(T_{up}-T_{down})/Qを算出した。実際の熱計測システムの横からの写真を図6に示す。本システム計測される熱抵抗には、界面の抵抗であったり、ガラス基板そのものの熱抵抗、外部への熱の逃げ等がある。本実験では、すべてを含む熱抵抗の変化を計測しているが、その変化はデバイス中の流体の変化にのみ起因していると考えている。まず、液体のCO₂をチャンバ内に導入し、シ

リング圧力の 5.5 MPa にし、そこから加圧ポンプを用いて、6.0~8.0 MPa の間で圧力を変化させた。流体の温度は、 T_3 、 T_4 の間にあるが、正確に示すことができないので、本報告では、上部ヒータの温度を指標に実験を行った。

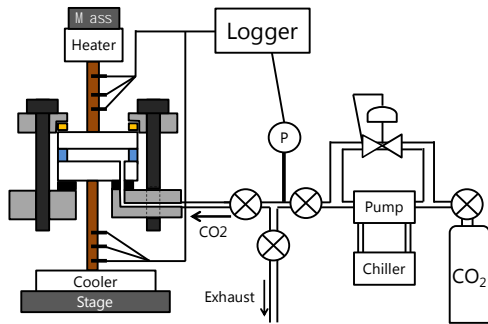


図 4: Schematic image of the experimental set-up to measure the thermal resistance changes of CO₂ at different pressures and temperatures.

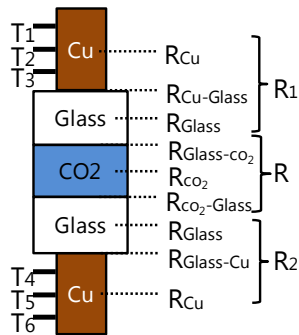


図 5: Containing of thermal resistances about the measurement system.

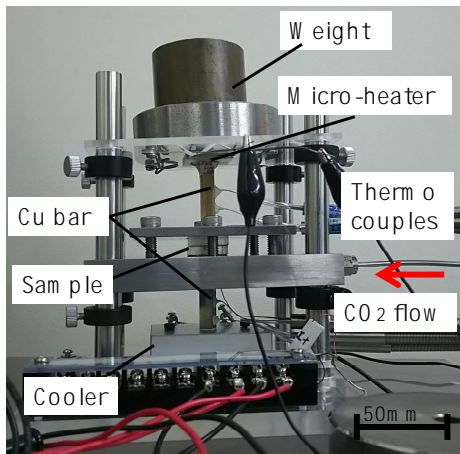


図 6: Side view of the thermal measurement system cramping the micro-chamber device in the middle for the thermal resistance measurement.

4. 研究成果

上部ヒータの温度を 135 度で、流体の圧力を 6.6 MPa から 7.6 MPa に変化させたときの

熱抵抗の変化を図 7 に示す。臨界点拭きに近くすることで熱抵抗が 40.4K/W から 39.1K/W と明らかに下がっていることが確認された。

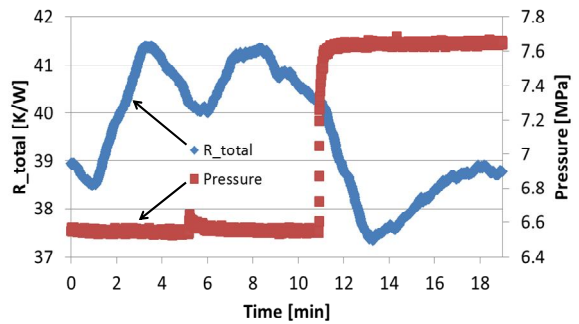


図 7: Changes of total thermal resistance (R_{total}) and pressure.

また、5.8 MPa から 8.2 MPa に少しずつ変化させたときの各圧力ごとの熱抵抗の変化量を平均化してプロットしたものを図 8 に示す。熱抵抗の変化が下に極地を持つことが確認され、それが臨界圧力を意味していると考えられる。チャンバの厚さが 0.5 μ m のとき、この臨界圧力は 7.1 MPa であり、通常の 7.4MPa よりも約 0.3MPa 低いことが確認された。

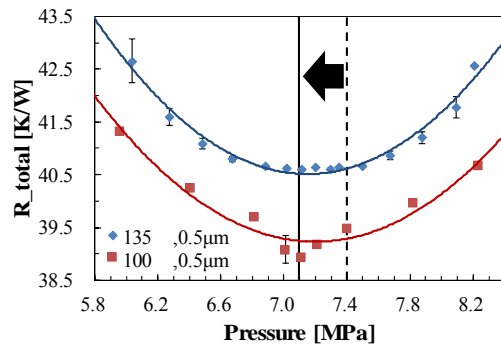


図 8: Pressure dependence of total thermal resistance (R_{total}) with 0.5 μ m gap chamber for the different temperatures at 100 °C and 135 °C.

また、上部ヒータの温度を 100 度にして同様に熱抵抗計測を行ったところ、臨界圧力は 7.1 MPa で同じであったのに対し、全体としての熱抵抗値が下がったことが確認された。これは、上部ヒータが 135 度するときより 100 度するときの方が、封止される CO₂ の温度が臨界温度である温度 31 度により近くなっているため熱抵抗変化がより大きくなっているということが示唆される。

さらに、チャンバの厚さを 0.5 μ m にしたときの熱抵抗変化を図 9 に示す。これは上部ヒータが 135 度ときの実験結果であるが、熱抵抗の最低値は 0.5 μ m のときと違いはないが、臨界とみられる圧力が 7.1MPa から 7.2MPa と変化したことが確認された。これは、より狭い空間に閉じ込められたことによって、「微小空間効果」が現れ、臨界圧力が下がったことを示していると考えられる。

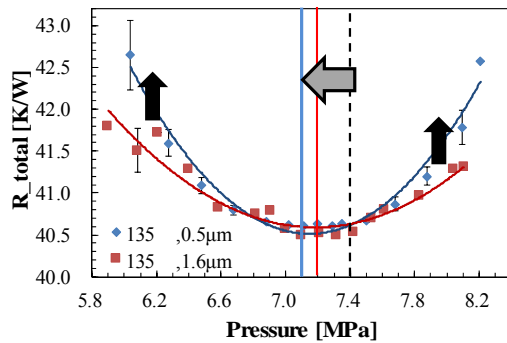


図 9: Pressure dependence of total thermal resistance (R_{total}) at 135 °C with the different gap chambers of 0.5 μm and 1.6 μm .

以上、今回、2枚のガラス基板間の厚さを、異なる厚さの高分子膜の厚さで決定し、パターンニングし塗布したパイレックスガラスと、CO₂が流れる穴を開けたもう1枚のパイレックスガラスをSUS製の土台と蓋で押さえ込むことで、2枚のガラスの間にSC-CO₂が封じ込められるようなマイクロデバイスを作製し、SC-CO₂を閉じ込める実証実験を行い、圧力を変えたときの熱抵抗変化から超臨界状態の観測を行い、SC-CO₂層の厚さを変えたときの熱抵抗変化の違いを評価した。その結果、圧力を大気圧から9 MPaの圧力まで上昇させたとき、あきらかに臨界点と考えられる圧力近傍で熱抵抗の低下が観測された。さらに、マイクロ空間に閉じ込めることで0.2 [MPa]の臨界圧力のシフトが観測できた。微小空間に閉じ込めた効果によって現れる物性変化が実証できたため、臨界点付近で状態が温度変化に敏感であることに基づいた機能性デバイス、センシングデバイスへの応用の可能性を示すことができた。

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 1件)

Masaya Toda, Tomoyuki Yamagami, Naoki Inomata, Takashi Fujii and Takahito Ono, Thermal resistance change of liquid carbon dioxide based on narrow space effect in micro chamber, Proceedings of the IEEE International Conference on Micro Electro Mechanical Systems 31、査読有、2018、pp.1296-1299
DOI:10.1109/memsys.2018.8346803

〔学会発表〕(計 2件)

Masaya Toda, Tomoyuki Yamagami, Naoki Inomata, Takashi Fujii and Takahito Ono, Thermal resistance change of liquid carbon dioxide based on narrow space effect in micro chamber, The 31st IEEE International Conference

on Micro Electro Mechanical Systems (MEMS 2018)、2018年、Ireland、Belfast

外間 匠、菊池 亜紀応、Nguyen Van Toan、戸田 雅也、小野 崇人、ナノ表面構造を持つカンチレバーの力学応答を利用した湿度センサ、日本機械学会東北支部 第52期講演会、2017年、仙台、東北大学

〔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〕

ホームページ等

<http://www.nme.mech.tohoku.ac.jp/>

6. 研究組織

(1) 研究代表者

戸田 雅也 (TODA, Masaya)
東北大学・大学院工学研究科・准教授
研究者番号: 40509890

(2) 研究分担者

藤井孝志 (FUJII, Takashi)
国立研究開発法人産業技術総合研究所・地質調査総合センター・主任研究員
研究者番号: 80520874

(3) 連携研究者

なし

(4) 研究協力者

なし