

## 科学研究費助成事業（科学研究費補助金）研究成果報告書

平成25年 5月24日現在

機関番号：17102

研究種目：基盤研究（A）

研究期間：2010～2012

課題番号：22246026

研究課題名（和文）マイクロビームセンサの学理とバイオ・ケミカルセンシングへの展開

研究課題名（英文）Principle of Micro-Beam Sensor and Its application to Bio/Chemical Sensing

研究代表者

高松 洋（TAKAMATSU HIROSHI）

九州大学・大学院工学研究院・教授

研究者番号：20179550

研究成果の概要（和文）：本研究は、シリコン基板表面に設けた溝に懸架した構造の梁型金属薄膜 MEMS センサ（マイクロビームセンサ）を流体中で加熱し、その温度上昇から気体や液体の熱伝導率を測定する新しい方法の開発を目的としたものである。そのため、長さ 10 $\mu$ m 程度の白金または金センサの作製法を確立した上で、空気と FC-72 を試料とした実験を行い、熱伝導率の違いが検知できることを実証した。また、これをガスセンサ等に応用することを想定して、流れがセンサ温度に影響を及ぼさないことも実験的に確認した。

研究成果の概要（英文）：This study aimed to develop a new method for measuring thermal conductivity of gases and liquids using a micro-beam MEMS sensor that is suspended across a trench on a silicon substrate. In this method, the thermal conductivity of a sample is determined by measuring the temperature of the sensor at a steady-state after heating it in a sample fluid. After developing the fabrication process, feasibility of the method was demonstrated by comparing the results between the air and FC-72 as test fluids using platinum and gold sensors approximately 10  $\mu$ m in length. The fact that the temperature rise of the sensor does not depend on the flow was also demonstrated by an experiment in an external air flow, which is important for the application of the sensor as gas sensors.

交付決定額

（金額単位：円）

	直接経費	間接経費	合計
2010年度	30,000,000	9,000,000	39,000,000
2011年度	5,400,000	1,620,000	7,020,000
2012年度	3,300,000	990,000	4,290,000
年度			
年度			
総計	38,700,000	11,610,000	50,310,000

研究分野：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，測定法，MEMS，センサ，計測技術

## 1. 研究開始当初の背景

流体の熱輸送性質測定には非定常細線加熱法が用いられる。これは流体中に鉛直に張った直径10 $\mu$ m程度の金属細線をセンサとして通電加熱し、その温度応答から熱拡散率を求めるものである。この方法では試料が100 ml

程度、より短いセンサを用いる短細線法でも数十 ml 程度必要である。したがって、生物由来の試料、試験開発段階の試料、高価な試料など、サンプル量が十分でない流体試料の熱輸送性質の測定は不可能である。また、これらの方法では、試験装置の設計製作のみな

らずセンサの取り付けにも技術とノウハウを要し、しかもセンサを取り替える毎に検定を行う必要があるため、市販の測定装置はないのが現状である。

一方、極微量の試料の熱輸送性質測定のための様々な MEMS センサも提案されている。それらはすべて自立薄膜上にヒータとセンサを作製し、寸法形状が全く等しいモデルに対して行った三次元非定常熱伝導解析結果と比較して熱輸送性質を決定するものである。したがって、実際のセンサとモデルのわずかな違いが結果の精度に影響を与えることになる。

以上のように、微量試料を手軽に測定できる手段がないのが現状である。

## 2. 研究の目的

本研究代表者は溝の上に懸架された梁状の金属薄膜センサ（マイクロビームセンサ）を用いて流体の熱伝導率を測定する方法を考案した。このセンサを試料中で通電加熱すると、その温度上昇は周囲の流体の熱輸送性質に依存する。事前に行った熱伝導解析によると、長さが  $10\ \mu\text{m}$  程度の微細なセンサでは  $1\ \text{ms}$  以下で定常状態に達し、自然対流が発生する前の定常熱伝導状態での温度測定より流体の熱伝導率が求められることが明らかになった。そこで本研究は、実際に MEMS センサを作製して測定法を開発すること、そしてこのセンサをガスセンサ等の熱伝導率検出器に応用するため、センサの温度上昇に及ぼす流れの影響を明らかにすることを目的とした。

## 3. 研究の方法

### (1) センサの電気的・熱的性質

マイクロビームセンサの概略図を図 1 に示す。センサ部分はビーム（梁）状であり、その両端にリード線を接続するための薄膜電極パッドが設けられている。10 mm 角のシリコン基板に薄膜を蒸着、リフトオフすることでパターンを形成し、さらに、センサ周辺のシリコン基板を等方的にエッチングすることにより架橋構造を作製した。その際、センサの根元部分のシリコンもエッチングされるので、電極薄膜の溝側端部が基板から突出した状態（オーバーハング）になり、その先端にセンサが形成された構造となった（図 2）。なおセンサの寸法は図 2 中に示すとおりであった。

実験に先立って、まずセンサの温度と電気抵抗の関係性を求めた。センサをクライオスタット内に設置し、真空中でセンサを通電加熱して種々の発熱量（電流）に対する電気抵抗値を測定した。これを外挿して発熱量ゼロの時、すなわちセンサ温度がクライオスタットの温度と等しい時の電気抵抗値を求め、発熱量に対する電気抵抗値の増加率  $\epsilon_R$  を算出した。この実験をクライオスタット温度  $0\sim 40$  の範囲で 5 条件に対して行い、温度と電気抵抗

の関係性を求めた。続いて、温度上昇の測定値を真空中での加熱すなわちセンサ表面からの放熱がない場合の理論解析の結果と比較してセンサの熱伝導率を算出した。

### (2) 密閉容器内での実験

図 3 に実験装置の概略を示す。センサチップをセラミック製の台座に取り付け、薄膜電極に銀ペーストで接合した銅線を台座に取り付けられた銅ブロックを介して直流電源と電圧計に結合した。そして、4 端子法によりセンサの電気抵抗を測定した。センサチップ全体を容器内の試料に浸漬し、その容器全体を恒温水槽内に設置した。実験は FC-72 および空気を試料として行い、電気抵抗と温度の関係より種々の発熱量に対するセンサの温度上昇を求めた。

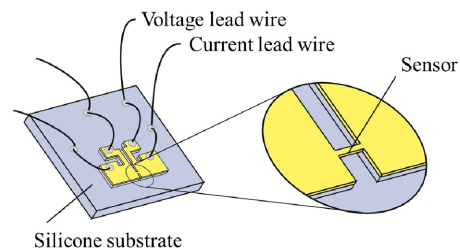


図 1 センサの概略

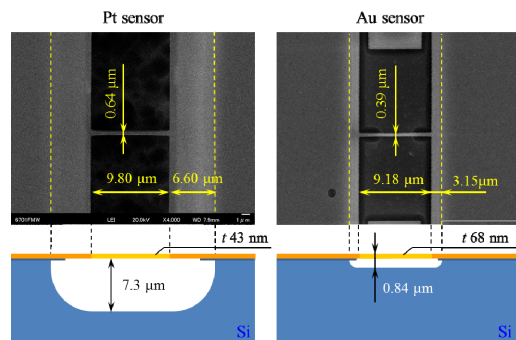


図 2 センサの SEM 写真と断面

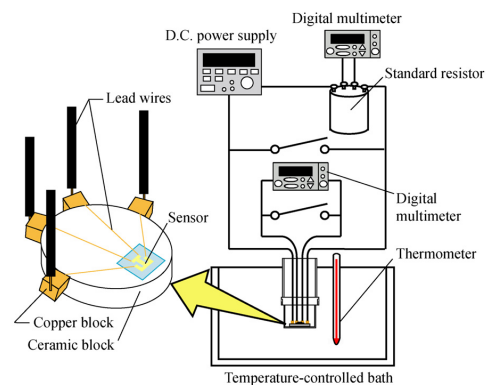


図 3 実験装置（密閉容器実験）

(3) 解析

測定結果と比較するため、熱伝導解析を行った。解析に用いたモデルを図4に示す。センサはオーバーハング部分を有するH型とし、長さ $L_s$ の薄帯センサ部分のみが流体中で一様発熱する場合の無次元定常熱伝導方程式を数値的に解いた。なお、対称性を考慮して、センサ中心を原点としたデカルト座標系において1/4の空間を解析領域とし、基板に接する部分(溝の表面とオーバーハングの根元)は温度一定とした。解析は基礎式を無次元化して行い、次の無次元温度上昇を求めた。

$$\theta_{ave} = \frac{(T - T_0)\lambda_s}{\dot{q}_v \cdot (L_s / 2)^2} \quad (1)$$

ここに、 $T$ は発熱時のセンサ温度、 $T_0$ は初期温度、 $\dot{q}_v$ は単位体積あたりの発熱量、 $\lambda_s$ はセンサの熱伝導率である。

一方、作製した2種類のセンサの熱伝導率を求めるためにセンサを真空中で加熱した場合の熱伝導解析も行った。この場合はセンサとオーバーハング部の表面を断熱と仮定した。本解析には九州大学大型計算機センターの有限要素法ソフト MSC.Marc/Mentat を用いた。

(4) 外部流中での実験

図5に実験装置の概略図を示す。流速を制御した乱れの少ない流れを得るため、ノズルから噴出させた空気のパテンシャルコア中にセンサを設置した。空気は内容量900 cm<sup>3</sup>の容器にポンプから導入し、容器内で整流したあと直径30 mmのノズル(JIS流量測定用)から大気中に噴出させた。センサチップをセラミックブロックに取り付け、ブロックに設けた銅電極にリード線を接合した。さらに、ナイフエッジを有する塩化ビニル製の板にこのブロックを取り付けて流れの中に設置した。ノズル出口と板のリーディングエッジの距離は10 mmとした。

実験は、リーディングエッジからチップの先端までの距離 $L$ が10 mmと70 mm、チップと主流の角度 $\theta$ が0°(平行)と15°の場合について行った。なお、センサは流れに直交して設置した。ノズル出口の空気の流速は容器流入前の流量の測定値より求め、0~1.2 m/sの範囲で実験を行った。センサの加熱量は0~19 μW(設定電流0~350 μA)であり、センサの温度上昇は最高で12 Kであった。

4. 研究成果

(1) センサの電気的・熱的性質

センサを真空中で加熱すると電気抵抗 $R$ は加熱量 $Q$ に対して線形に増加した(図6)。この結果は次式で表される。

$$R = R_i + \varepsilon_R Q \quad (2)$$

ここに、 $R_i$ は加熱による温度上昇が無視できる場合、すなわち設定した基板温度におけるセンサの電気抵抗、 $\varepsilon_R$ は直線の勾配である。

この $R_i$ を種々の温度に対して求め、以下の電気抵抗と温度の関係(図7)を得た。

$$R = R_0 [1 + \beta(T - T_0)] \quad (3)$$

ここに、 $R_0$ はセンサの温度0における電気

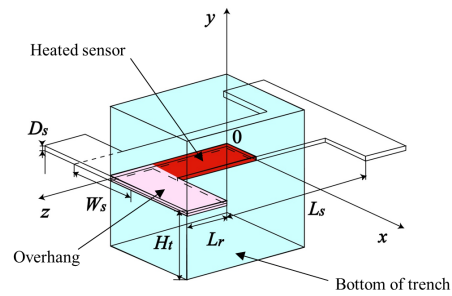


図4 理論解析モデル

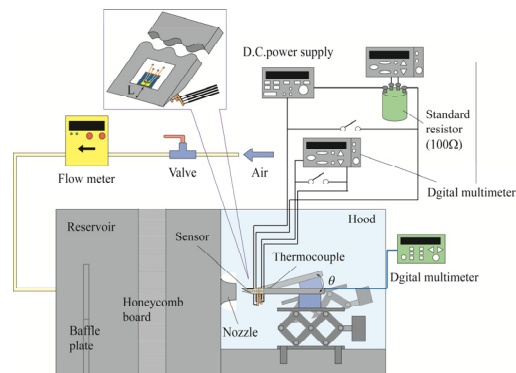


図5 実験装置(流動実験)

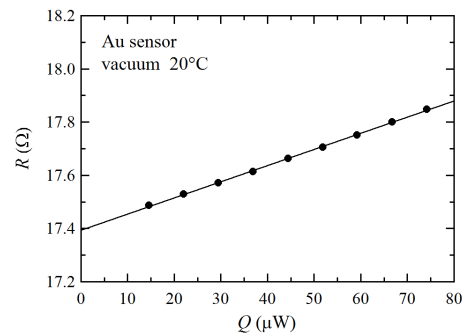


図6 電気抵抗と加熱量の関係(金センサ)

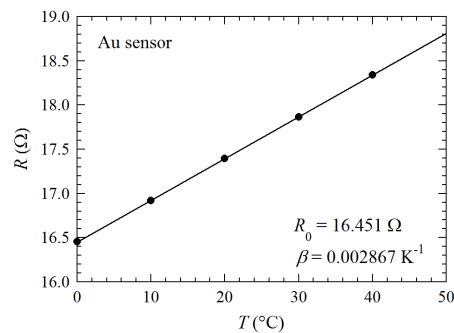


図7 電気抵抗と温度の関係(金センサ)

抵抗値,  $\beta$  は温度係数である.

一方, センサの熱伝導率 $\lambda_s$  は次式で求められる.

$$\lambda_s = \frac{L_s R_0 \beta}{\varepsilon_R D_s W_s} \theta_{ave} \quad (4)$$

ここに,  $L_s, D_s, W_s$  はそれぞれセンサの長さ, 厚さ, 幅である. また,  $\theta_{ave}$  は理論解析による真空中でのセンサの無次元平均温度上昇であり, 白金センサが 0.108, 金センサが 0.126 であった.

表 1 に得られた結果を示す. 金センサは白金センサと比べて電気抵抗は 9%程度, 導電率では 10.5 倍であった. これに対し, 熱伝導率は金センサが白金センサの 7.3 倍であった. また, 温度係数も金センサのほうが大きく, 白金センサの 2.2 倍であった. これらの導電率, 熱伝導率の値はいずれもバルクの値より小さく(表 1 中のカッコ内の値参照), その程度は導電率と熱伝導率では異なった. また, 白金薄膜のほうがバルクとの差が大きかった.

## (2) 密閉容器内での実験

図 8 に FC-72 中で加熱したときのセンサの温度を示す. 温度は加熱開始とほぼ同時に上昇した後, ずっと一定であった. この結果は, このように微細なセンサの場合, 自然対流が抑制されて定常な熱伝導場が維持されることを表していると考えられ, 定常状態での熱伝導率測定が可能なが示された.

図 9 に空気と FC-72 を試料とした場合の電気抵抗の測定値を加熱量に対して示す. どちらのセンサの場合も温度上昇が最大で約 10 K になるように加熱したため, 金センサの加熱量は白金センサの約 8 倍であった. センサおよび試料にかかわらず, 真空中と同様, 電気抵抗は加熱量に対して線形に増加した. 電気抵抗は温度に対して線形であるため, センサの温度上昇は加熱量に比例, すなわち

$$T - T_i = \varepsilon_T Q \quad (5)$$

で表される. この結果は温度上昇が自然対流の影響を受けていないことを示唆している. 温度上昇の程度は FC-72 中より熱伝導率の小さい空気中の方が大きかった.

試料の違いによるセンサの温度上昇の差を明らかにするため, センサの無次元温度上昇 $\theta_{ave}$  を次式より求めた.

$$\theta_{ave} = \lambda_s \varepsilon_T \frac{W_s D_s}{L_s} = \lambda_s \varepsilon_R \frac{W_s D_s}{R_0 \beta L_s} \quad (6)$$

ここに,  $\varepsilon_R$  は図 9 に示す実験結果を最小二乗近似して求められる直線の勾配である.

図 10 に $\theta_{ave}$  を試料の無次元熱伝導率 $A (= \lambda_f / \lambda_s)$  に対して示す. いずれのセンサの場合にも, 空気に対する $\theta_{ave}$  は熱伝導率がほぼ 2 倍の FC-72 の場合より高くなった. ただし, 白金センサの場合には, 空気に対する $\theta_{ave}$  は FC-72 の約 1.7 倍であったのに対し, 金セン

表 1 センサの特性

	Pt sensor	Au sensor
Electrical resistance at 0°C, $R_0$ ( $\Omega$ )	188.499	16.451
Temperature coefficient $\beta$ ( $K^{-1}$ )	0.001235 (0.31)	0.002867 (0.49)
Electrical conductivity $\sigma$ ( $\Omega^{-1}m^{-1}$ ) at 20°C	$1.89 \times 10^6$ (0.19)	$1.99 \times 10^7$ (0.44)
Thermal conductivity $\lambda$ (W/(m·K)) at 20°C	35.2 (0.51)	257 (0.83)

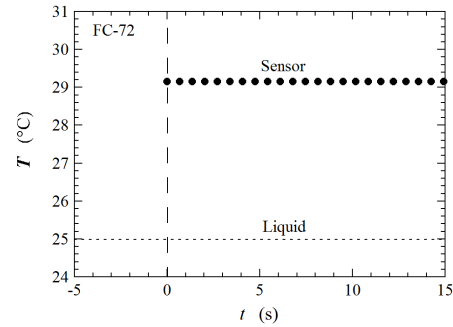


図 8 FC-72 中での加熱後のセンサ温度

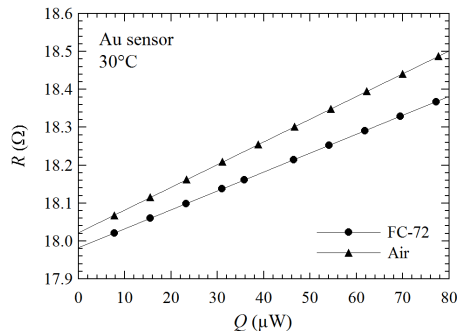
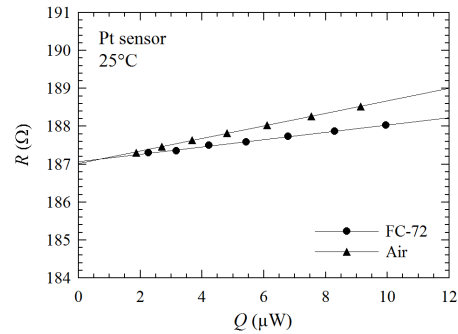


図 9 電気抵抗の測定値と加熱量の関係

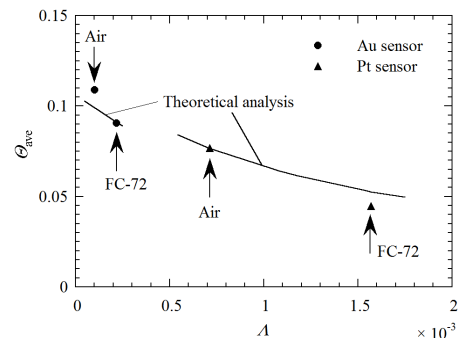


図 10 無次元温度と無次元熱伝導率の関係



サの場合には 1.2 倍程度であった。このように、温度上昇に及ぼす試料の熱伝導率の影響が金センサの場合に比較的小さくなったのは、金センサの熱コンダクタンスが白金センサのほぼ 7.5 倍であり、センサ根元から基板に伝わる熱量が大きく、発熱量に占める流体への伝熱量の割合が白金センサよりかなり小さかったのが原因と推測される。したがって、センサの形状寸法の設計には、事前の数値解析による測定感度の検討が必要であることが明らかになった。

図 10 中には計測した寸法のセンサに対する理論数値解析結果も合わせて示している。ただし、実際のセンサ、特に白金センサの両縁にはバリが不規則に形成されているのに対し、モデルでは完全な矩形断面を有する薄帯を仮定した。また、正確な測定が困難なためオーバーハング幅もモデルと実際とは多少異なると考えられる。それにもかかわらず  $\theta_{ave}$  の実験値は解析値と概ね一致している。厳密には、白金センサの場合には FC-72 に対する  $\theta_{ave}$  は実験値のほうが解析結果より約 15 % 低く、金センサの場合には空気の実験値が解析結果より 9% ほど高い。しかし、実験と解析モデルが完全には一致していないことを考慮すると、それぞれの場合について実験結果と解析結果の差を論ずるのはあまり意味のないことと考えられる。一方、両方のセンサとも試料の熱伝導率に対する  $\theta_{ave}$  の依存性が実験値のほうが大きい点は看過できない。この原因は現段階では空気希薄性の問題にあると考えている。センサの幅を代表寸法としたクヌッセン数は空気の場合には 0.2 程度であり、センサからの伝熱が連続流体への熱伝導とは異なり、その結果、空気の場合にのみ実際の温度上昇が熱伝導解析より高くなった可能性がある。この点については今後、定量的な検討が必要と考えられる。

### (3) 外部流中での実験

図 11 は、センサの温度上昇  $\Delta T$  を発熱量  $Q$  に対して示したものであり、 $\theta = 0^\circ$  の場合の例である。この場合も、真空中および密閉容器中の実験と同様、 $\Delta T$  は  $Q$  に対して直線的に増加した。また、 $\Delta T$  は流速の影響をほとんど受けないことが明らかになった。

図 12 は、図 11 に示す各流速に対するデータを最小二乗近似した直線から求めた勾配  $\varepsilon_r (= \Delta T / Q)$  を流速  $u$  に対して示したものである。センサの無次元温度は式(6)で求められるので、この  $\Delta T / Q$  が等しければ無次元温度が等しく、その結果得られる熱伝導率も一致する。 $\Delta T / Q$  は  $\theta = 0^\circ$  および  $15^\circ$  のいずれの場合も流速によらず一定であり、すべて約 0.5 % 以下の偏差で一致した。熱伝導数値解析の結果によると、温度浸透厚さの最大値はセンサ長さにほぼ等しく、この場合は 10  $\mu\text{m}$  程度であると考えられる。リーディングエッジ

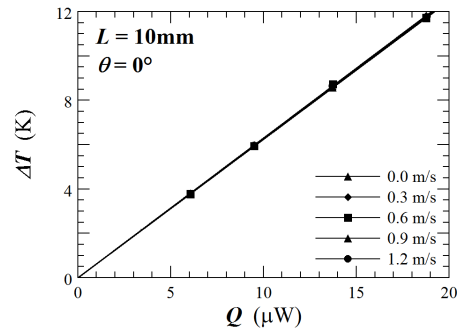


図 11 センサの温度上昇と加熱量の関係

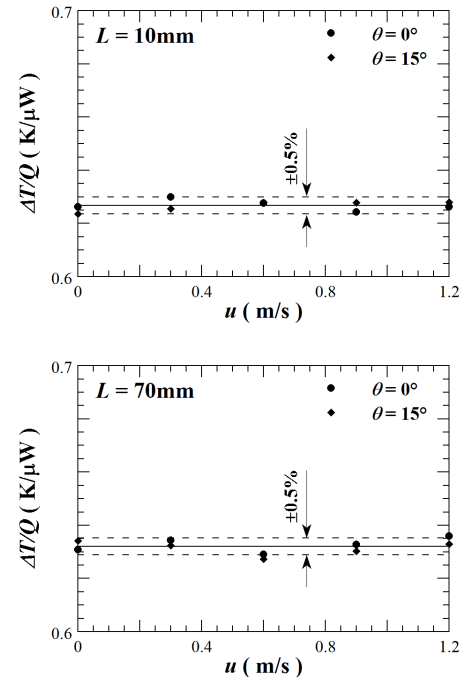


図 12 加熱量当たりの温度上昇と流速の関係

から 10 mm の位置でも速度境界層はそれより十分大きく、これが流速の影響を受けなかった原因と考えられる。

### (4) 本研究のまとめ

本研究で得た重要な点は以下のとおりである。

長さ 10  $\mu\text{m}$ 、幅 0.5  $\mu\text{m}$ 、厚さ 50 nm 程度の白金および金センサの作製技術を確立した。

試料中のセンサ温度は、加熱直後に上昇した後は定常状態を維持する。

センサの温度上昇は試料の熱伝導率に依存し、その値は理論解析結果とほぼ同程度である。

センサの温度上昇は、流れの影響を受けない。

以上より、未知の試料の熱伝導率測定の実証には至らなかったものの、流体試料の熱伝導率を定常で測定することが可能であることを試作センサを用いて明らかにした。また、こ

のセンサを流れの中においても熱伝導率検出器として使用可能であることを明らかにした。なお、本補助金による研究期間終了後も研究は継続する予定であり、その際の課題として明らかになった点は以下のとおりである。

センサの熱コンダクタンスを考慮した寸法の最適化のため、熱伝導率の検出感度解析が必要である。

ガス試料の場合には、ガスの希薄性の影響を受ける可能性がある。その影響の有無およびその程度を定量的に明らかにする必要がある。

自然対流の発生限界およびその影響の有無を明確にするために、センサ温度の動特性の計測が必要である。

電極パッドとリード線の接合に用いた銀ペーストは液中で溶解する可能性があるため、新しい接合方法を考案する必要がある。

センサがもう一回り大きいほうが強度的には望ましく、その場合でも本測定法が実現できると考えられる。ただし、その場合にはセンサの作製法を完全に見直す必要がある。

## 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)

H. Takamatsu, K. Inada, S. Uchida, K. Takahashi, M. Fujii, Feasibility Study of a Novel Technique for Measurement of Liquid Thermal Conductivity with a Micro Beam Sensor, Int. J. Thermophysics, Vol. 31, No. 4-5, 2010, pp. 888-899.  
DOI 10.1007/s10765-009-0700-5

[学会発表](計8件)

久田耕祐, 福永鷹信, 内田悟, 藏田耕作, 高松洋, マイクロビーム型熱伝導率検出器に関する研究-センサの温度上昇に及ぼす流れの影響, 日本機械学会熱工学コンファレンス 2012, 2012.11.17, 熊本。

福永鷹信, 田中雄樹, 藏田耕作, 高橋厚史, 高松洋, 第33回日本熱物性シンポジウム, 2012.10.3, 大阪。

Y. Tanaka, T. Fukunaga, K. Kurata, K. Takahashi, H. Takamatsu, Fabrication of a micro-beam MEMS sensor for measurement of thermal conductivity of fluids, The 18th Symposium on Thermophysical Properties, 2012.6.28, Boulder, USA.

塩入雅貴, 田中雄樹, 内田悟, 藏田耕作, 高橋厚史, 高松洋, 常温駆動マイクロビーム水素センサに関する研究, 第49回日本伝熱シンポジウム, 2012.6.1, 富山。

Y. Tanaka, T. Tanaka, S. Uchida, T. Fukunaga, K. Kurata, K. Takahashi, H. Takamatsu, A Micro-Beam MEMS Sensor for Measurement of Thermal Conductivity of Fluids at a Steady State, The 4th International Conference on Heat Transfer and Fluid Flow in Microscale, 2011.9.6, Fukuoka.

古屋悠作, 田中利幸, 内田悟, 藏田耕作, 高橋厚史, 高松洋, マイクロビームセンサによる流体の熱伝導率測定(測定と理論解析の比較), 第31回日本熱物性シンポジウム, 2010.11.19, 福岡。

H. Takamatsu, T. Tanaka, Y. Furuya, S. Uchida, K. Kurata, K. Takahashi, The 9th Asian Thermophysical Properties Conf., 2010.10.20, Beijing, China.

古屋悠作, 田中利幸, 内田悟, 藏田耕作, 高橋厚史, 高松洋, マイクロビームセンサによる流体の熱伝導率測定に関する研究, 第47回日本伝熱シンポジウム, 2010.5.28, 札幌。

## 6. 研究組織

### (1)研究代表者

高松 洋 (TAKAMATSU HIROSHI)  
九州大学・大学院工学研究院・教授  
研究者番号: 20179550

### (2)研究分担者

高橋 厚史 (TAKAHASHI KOJI)  
九州大学・大学院工学研究院・教授  
研究者番号: 10243924  
藏田 耕作 (KURATA KOSAKU)  
九州大学・大学院工学研究院・准教授  
研究者番号: 00368870  
内田 悟 (UCHIDA SATORU)  
九州大学・大学院工学研究院・助教  
研究者番号: 80038041

### (3)連携研究者

康 東天 (KAN DONCHEON)  
九州大学・大学院医学研究院・教授  
研究者番号: 80214716