

ナノ・マイクロレベルの革新的熱物性センシングとその応用

Development of Innovative Nano-Micro Level
Thermophysical Properties Sensing Techniques
and Their Applications

長坂 雄次 (NAGASAKA YUJI)

慶應義塾大学・理工学部・教授



研究の概要

本研究では、近接場光、温度波の干渉、ソーレー効果、レーザー誘起表面波、熱的ゆらぎによる表面波、光 MEMS 技術等を用いて、全く新しい熱物性センシング手法を原理の段階から提案し、時空間分解能ならびに感度を究極的に発展させることで、ナノ・マイクロレベルの熱・物質・運動量輸送性質を非接触かつ高速にモニタリング可能なセンシングツール群を創成した。

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：熱物性センシング、レーザー計測技術、マイクロ・ナノスケール熱工学

1. 研究開始当初の背景

ナノ・マイクロレベルの熱物性値（特に輸送性質）の計測技術は、次世代熱工学の基盤としてのみならず、あらゆる分野を横断する最先端研究開発の基盤技術として極めて重要である。例えば情報通信分野では、半導体デバイス内部の微細領域での放熱問題や高密度記録メディア内部の多層薄膜のナノ秒オーダーの熱伝導や相変化問題、ライフサイエンス分野では DNA 等の拡散や分離問題、またエネルギー・環境分野では、燃料電池用ポリマー薄膜内部の物質拡散問題等、枚挙にいとまがない。また学術的には、これら最先端の技術的課題を包括的に取り扱うためのナノ・マイクロレベル輸送現象に関する横断的な学問体系を構築する必要があり、熱物性センシング技術はその未知基本現象を定量的に解明する重要なツールとして不可欠である。しかしながら、従来の古典的な熱物性計測技術では、定常的な温度勾配や濃度勾配を mm~cm オーダーで生成する必要があり、測定対象がナノ・マイクロレベルで極短時間に変動し、さらに空間分布しているような場合には原理的に適用が不可能であった。

2. 研究の目的

本研究の目的は、ナノ・マイクロレベルの熱・物質・運動量輸送性質（熱伝導率、温度伝導率、相互拡散係数、ソーレー係数、粘性係数、表面張力、表面粘弾性質）を（1）非侵襲かつ in situ、（2）高空間分解能、（3）

高時間分解能、（4）極微量サンプル、（5）異方性・2次元分布、がセンシング可能な全く新しい計測手法体系を基本原理から独自に開発し、熱物性センシングの新たな応用を世界に先駆けて提案することである。

3. 研究の方法

従来の熱物性計測技術では測定が原理的に不可能であった系に適用するために、（1）近接場光、（2）温度波の干渉、（3）ソーレー効果、（4）レーザー誘起表面波、（5）熱的ゆらぎによる表面波（リップロン）の5つの物理現象を用いて熱物性センシング技術を開発し、様々な応用実証を行った。

4. これまでの成果

4.1 近接場光学熱物性顕微鏡の開発

固体表面あるいは液体中の近接場光学応答を非常に高感度かつ高い空間分解能で検出し、試料の熱物性情報を抽出可能なナノレベルのセンシング技術を構築し、量子ドットの蛍光寿命-温度依存性をナノレベルで測定し、革新的デバイスデザインに資する知見を得た。更に、近接場光学顕微鏡(NSOM)プローブを用いた蛍光相関分光法(FCS)を開発し、界面からナノスケール領域における拡散運動を観測する手段を確立した。本測定手法は、ナノ粒子に対し、真にナノスケールの界面領域の拡散現象を解明する方法として唯一の測定法であり、学術的なインパクトが大きい。

4. 2 フォトサーマル赤外検知法の開発

試料表面を高速に周期加熱することによって、固-固界面における温度波干渉を直接観察し、ナノ・マイクロレベルでナノ機能材料の熱伝導率、温度伝導率、接触熱抵抗をセンシングする技術を開発した。本センシング手法を熱電薄膜、ナノコンポジットや超伝導薄膜線材に適用し、ナノ機能材料の熱物性値がバルク材料と大きく異なることを明らかにした。また、SiP (System in Package) 実装半導体デバイス内部におけるマイクロスケール熱抵抗評価手法を新たに開発し、Au-Si 界面における接触熱抵抗を精緻にモニタリング可能なセンシング技術を確立した。

4. 3 ソーレー強制レイリー散乱法の開発

直接メタノール型燃料電池に用いられる電解質膜内メタノール水溶液の相互拡散係数を高速非接触で光学的に測定する手法を新たに開発した。非常に高感度な検出手法を提案し、微弱なメタノール水溶液の拡散情報を抽出することに成功した。開発したソーレー強制レイリー散乱法において、3成分溶液の交差拡散を考慮した理論を新たに導出し、3成分ポリマー溶液の交差拡散係数の濃度依存性を明らかにした。また、負の交差拡散係数の存在を初めて明らかにした。

更に、光 MEMS (MicroElectroMechanical Systems:微小電気機械システム) 技術を用いたマイクロ拡散センサーの開発に成功した。数 mm 角のチップ内に、数 μm 程度の干渉縞間隔で濃度分布を励起するシステムを集積化し、高速な拡散係数モニタリング技術を開発した。

4. 4 レーザー誘起表面波法の開発

光学的に非接触で高速かつ広粘性率域に渡る粘性率センシングが可能な測定手法を開発した。高せん断速度域において擬塑性流動を示すスクアランを測定し、粘性率変化の検知に成功した。更に、血液粘性率を微量サンプルかつ高速に測定可能なセンシングシステムを開発した。異なる健康者の血液において、ヘマトクリット値の違いに伴う粘性率の差異の検知が可能であることが示した。また、レーザー誘起表面波励起・検知システムと試料-センサー間距離制御システムを数 mm 角のチップ上に高集積化し、液膜の乾燥過程における粘性率変化をモニタリングすることに成功した。

4. 5 リプロン表面光散乱法の開発

広範囲なリプロン観測波長(4~800 μm)を選択可能なリプロン表面光散乱法を開発し、マイクロミキシング混合液体の表面物性セ

ンシングを可能とした。混合方法の違いによるエタノール水溶液の表面粘弾性情報を含んだ見かけの表面張力変化を初めて明らかにし、エタノール水溶液の疎水性水和と表面吸着に関連した表面分子近傍のミクロな構造変化を提案した。また、加圧溶解法によって発生させた酸素ナノバブルの表面物性値の経時変化を測定することに成功した。

5. 今後の計画

今後、開発した5つの熱物性センシング要素技術の統合と高効率化および高安定化による更なるセンシング技術の高度化を行うことで、ナノデバイスの包括的なナノレベル熱・物質・運動輸送性質に関する基盤体系の構築を実現することができると考える。

6. これまでの発表論文等

【主要な論文】

- (1) Kasahara, K. and Saiki, T., "Numerical simulation of near-field fluorescence correlation spectroscopy using a fiber probe", *J. Nanophotonics*, **4**, 043502/1-6, (2010).
- (2) Niwa, M., Ohta, Y., and Nagasaka, Y., "Mass Diffusion Coefficients of Cellulose Acetate Butyrate in Methyl Ethyl Ketone Solutions at Temperatures between (293 and 323) K and Mass Fractions from 0.05 to 0.60 Using the Soret Forced Rayleigh Scattering Method", *J. Chem. Eng. Data*, **54**, 2708-2714, (2009).
- (3) Taguchi, Y., Oka, T., Saiki, T., and Nagasaka, Y., "Development of Near-field Fluorescence Life-time Thermometry", *Nanosc. Microsc. Therm.*, **13**, 77-87, (2009).
- (4) Suzuki, M., and Saiki, T., "Near Field Fluorescence Correlation Spectroscopy Using a Fiber Probe", *Jpn. J. Appl. Phys.*, **48**, 070209/1-3, (2009).
- (5) Taguchi, Y., Ebisui, A., and Nagasaka, Y., "Miniaturized optical viscosity sensor based on a laser-induced capillary wave", *J. Opt. A: Pure Appl. Opt.*, **10**, 044008-044013, (2008).

【受賞】

- (1) 長坂雄次 他, 化学工学会 2008 年度優秀論文賞, (社)化学工学会, 2009 年.
- (2) 長坂雄次 他, 日本熱物性学会賞論文賞, 日本熱物性学会, 2007 年.
- (3) 長坂雄次 他, 日本機械学会賞(論文), (社)日本機械学会, 2007 年.
ホームページ等
<http://www.naga.sd.keio.ac.jp/kiban-s.html>