高分解能マイクロディスペンサの開発

正員 小出 晃 (日立製作所 機械研究所) 非会員 佐々木 康彦 (日立製作所 機械研究所)
 非会員 吉村 保廣 (日立製作所 機械研究所) 正員 三宅 亮 (日立製作所 機械研究所)
 非会員 寺山 孝男 (日立製作所 計測器事業部)

Micromachined Dispenser with High Resolution

A. Koide, Member, Y. Sasaki, Non-member, Y. Yoshimura, Non-member,
 R. Miyake, Member (Mechanical Engineering Research Laboratory, Hitachi, Ltd.)
 T. Terayama, Non-member (Instrument Division, Hitachi, Ltd.)

A micromachined dispenser with a high flow rate and high resolution for chemical analysis is described. The flow rate as a function of the actuation frequency increases linearly up to a frequency of 700 Hz with a final value of about 148 $\mu\text{l/s}$ using water as a pump medium. The dispensing accuracy is better than 1 % (coefficient of variance) at a dispensing volume of 56 μl . This dispenser shows good dispensing performance thanks to its precise valve structure and surface-treated nozzle.

キーワード：マイクロディスペンサ，異方性エッチング，圧電駆動，与圧バルブ

Keywords: micromachined dispenser, anisotropic etching, piezo-electrically driven diaphragm actuator, pre-load valve

1. まえがき

近年，医療や食品，農業等で使用される化学物質の開発において，開発期間の短縮を目的に自動合成・評価システムの開発が活発に行われている。例えば，新しい医薬品の開発では，薬品となる可能性を有する化学物質が発見されると，その化学物質を他の様々な化学物質で修飾し，その薬品としての有効性や副作用の評価を行う。この際の化学物質の組み合わせは何十万通りもあり，ノウハウ等で合成する対象を選別しても，その合成・評価に多大な人員と時間を要する。そのため，コンビナトリアルケミストリや HTS (High Throughput Screening)¹⁾を用いた自動合成・評価システムの構築などにより，必要とする人員・時間の削減が試みられている。このシステムでは，合成・評価を行う場として図1 (a)に示すようなウエルと呼ばれる反応容器がマトリックス状に配置されたウエルプレート (86×128 [mm]) が用いられる。このプレート上のウエルは，スループット向上や化学物質の消費量削減を目的として高密度・低容量化される傾向にあり，現在は 96 ウエル／プレートから 384 ウエル／プレート (同一プレートサイズ) への移行期にある。既に 1536 ウエル／プレートも登場しはじめていくものと考えられるが，その時の課題としてウエルへ分注を行うディスペンサの最小分注量 (市販自動ディスペンサ: 0.5 [μl]) の微量化が必要となり，その性能向上が望まれている。また，多数のウエルに分注を行うにはディスペンサのマルチ化が必要不可欠だが，現行のディスペンサをマルチ化するとコストがかさむため，その低コスト化が求められている。

筆者等は，これらの課題を解決することを目的として，平板圧電素子を駆動源とするダイアフラムポンプ方式のディスペンサを開発した。ダイアフラムポンプは，ダイアフラムの駆動で変化した容積分だけの液体を吐出できるため，ダイアフラムサイズや振幅を小さくすることで吐出分解能を微量化できる利点を持っている。また，本ディスペンサでは，半導体の加工技術を用いることで寸法精度の良い加

度・低容量化される傾向にあり，現在は 96 ウエル／プレートから 384 ウエル／プレート (同一プレートサイズ) への移行期にある。既に 1536 ウエル／プレートも登場しはじめていくものと考えられるが，その時の課題としてウエルへ分注を行うディスペンサの最小分注量 (市販自動ディスペンサ: 0.5 [μl]) の微量化が必要となり，その性能向上が望まれている。また，多数のウエルに分注を行うにはディスペンサのマルチ化が必要不可欠だが，現行のディスペンサをマルチ化するとコストがかさむため，その低コスト化が求められている。

図1. (a) 現行の高分解能ディスペンサ、(b) マイクロディスペンサによるマルチディスペンサ化

Fig. 1 Concept of (a) conventional dispenser and (b) arrayed micromachined dispensers

工を施し、固体差の少ないディスペンサを実現している。また、小型・低コスト化にも適しており、図1 (b)のように複数のディスペンサを一体化したマルチディスペンサ化も容易である。

半導体の加工技術を用いて製作されたダイヤフラムポンプは、静電駆動タイプ²⁾や圧電駆動タイプ³⁾⁴⁾など様々な駆動方式が研究開発されているが、液滴の吐出を行うのはインクジェットプリンタヘッド⁵⁾⁶⁾などに代表される弁を持たないタイプに限られている。これらのポンプは、ノズル部でのメニスカスを制御することで液滴の吐出を行うが、このメニスカスが液体の物性に依存するため、様々な液体を取り扱う用途には適していない。そこで、ノズル部での液滴の吐出速度を速くし、逆止弁で急激に液の流れを止めた時の液体の慣性力だけでノズル部での液切れを行うマイクロディスペンサを開発した。

本報告では、開発したマイクロディスペンサの加工方法および特性評価結果について述べる。

2. マイクロディスペンサ

< 2. 1 > マイクロディスペンサの構造

開発したマイクロディスペンサの部品構成を図2 (a)に示す。4枚のシリコン基板と1枚の板状圧電素子の積層構造体で、二つの逆止弁とノズル、圧電駆動のダイヤフラムアクチュエータから構成される。各シリコン基板は、Auをイ

ンサート材とした表面活性化接合技術⁸⁾を用いて組立て、板状圧電素子はシリコンダイヤフラムに厚みを制御した接着剤を用いて貼り付ける (図2 (b))。ダイヤフラムアクチュエータを構成するシリコンダイヤフラムのサイズは、 $8 \times 8 \times 0.3$ [mm]、板状圧電素子は、 $7 \times 7 \times 0.3$ [mm]である。図2 (c)に開発したマイクロディスペンサ ($14 \times 14 \times 1.7$ [mm]) の写真を示す。現行のディスペンサの仕様等から、微量化したときのマイクロディスペンサの仕様を考えると、吐出流量として $100 [\mu\text{l/s}]$ 、吐出分解能として $0.2 [\mu\text{l/step}]$ 程度の性能が要求される。この吐出流量と分解能を両立させる方法としては、液滴のサイズを小さくしてダイヤフラムアクチュエータの駆動周波数を高くすることが考えられる。しかし、逆止弁を用いたダイヤフラムポンプでは、高周波になると逆止弁の応答遅れにより送液効率が低下し^{2)~4)}、液滴のサイズが小さくなるとノズルに液滴が付着しやすくなり、吐出流量の精度が落ちる傾向にある。この課題を解決するために、1) 単結晶シリコン一体構造の与圧型逆止弁、2) 微細棒構造型撥水ノズル、を特長とするマイクロディスペンサを開発した。このマイクロディスペンサの製作には、逆止弁やノズルを高精度に加工し、組立てるために、多段異方性エッチング法⁷⁾と表面活性化接合技術⁸⁾を用いた。以下において、その構造と加工方法の詳細を述べる。

< 2. 2 > 与圧型逆止弁

図3 (a)に逆止弁の外寸を示す。逆止弁は、弁部を4本の梁で支えた構造をしている。弁部は、シリコン基板の接

図2. 開発したマイクロディスペンサの(a) 構成図、(b) 断面図、(c) 外観写真
Fig. 2 (a) Principle design, (b) crosssectional view and (c) photograph of micromachined dispenser

図3. 与圧型逆止弁の(a)上面図、(b) (a) A部の梁の写真、(c) 断面構成図、(d) X線による断面写真

Fig. 3 (a) Bottom view of outlet valve, (b) photograph of section A in (a), (c) crosssectional view of valve and (d) x-ray image of valve.

合面よりも突き出るように加工されており、ポートのあるシリコン基板と組立てた時に変形する4本の梁の復元力で与圧が発生する(図3(c)参照)。この与圧により、入口と出口の逆止弁が同時に開いていることによる逆流を押さえることができ、高周波における送液効率の低下を低減できる。また、この逆止弁は単結晶シリコンの一体構造ででき

ているため耐久性が高く、高周波で駆動しても疲労破壊することはない。図3(d)に、組立てた逆止弁のX線写真⁹⁾を示す。左右から伸びた梁により、中央の弁部がポートに押し付けられている様子が確認できる。この弁部をポートに押し付ける力は、駆動周波数や吐出液タンクとの位置関係により最適化するが、本実験では、与圧が0.02[MPa]になるように梁を設計した。

図4に示す逆止弁の加工では、深さ方向に4段の構造を持っているため、パターンの異なるエッチングマスクを用いて4回の異方性エッチングをウエハ表面に施す必要がある。しかし、1回でも加工したウエハ表面は、凹凸を持つためエッチングマスクをウエハ表面に転写するフォトリソグラフィ技術との相性が悪くなり、プロセスの安定性が損なわれる。そこで、図4に示すように、平坦なウエハ表面に4回の異方性エッチングで用いる4枚のエッチングマスクを予め重ねて成形し、エッチング毎にエッチングマスクを除去して4回の異方性エッチングを加える多段異方性エッチング法を用いた。4層に積んだエッチングマスクは、全てシリコン酸化膜で形成し、後で使うエッチングマスク部分はシリコン酸化膜を厚くした。これにより、異方性エッチング毎にシリコン酸化膜全体を均一に薄くすることで、厚みの薄い部分から除去することができ、異なるパターンを用いた異方性エッチングが可能となる。

<2.3> 撥水ノズル

図5に吐出側から見た撥水ノズルの写真を示す。ノズル先端は、幅20[μm]、高さ100[μm]の微細な杵構造からなる。この杵構造には、フッ素樹脂コーティング剤(旭硝子製、CYTOP)を用いて撥水処理が施してある。これにより、液滴がノズル先端に付着して飛翔する方向が曲がったり、ノズルに残留することがなくなり、安定した吐出が可能となる。

図4. 与圧型逆止弁の加工プロセス断面図

Fig.4 Crosssectional view of four anisotropic etching steps for producing 3-D structure. (Fig. 3 B-B cross-section)

図5. 撥水ノズル外観写真
Fig. 5 Photograph of surface-treated nozzle.

図6. 撥水ノズルの加工プロセス断面図
Fig. 6 Crosssectional view of two anisotropic etching steps for producing the nozzle.

図7. マイクロディスペンサの評価系構成図
Fig. 7 Experimental setup

このノズルも逆止弁と同様の理由により図6に示した2層マスクを用いた多段異方性エッチング法で加工する。この際、ノズル部が貫通した後もエッチングを続けることで、貫通部の凸形状がエッチングで除去され、枠構造は20[μm]厚の壁になる。

3. 特性評価結果

図7にマイクロディスペンサの特性を測定した評価系を示す。以下において、評価結果の詳細を述べる。

< 3. 1 > 逆止弁特性

逆止弁の特性は、図7のように逆止弁の順方向及び逆方向に対して水頭差を利用して圧力を加え、逆止弁を通る流量を測定した。なお、実験の際には、逆止弁に加わる圧力を圧力センサを用いて測定している。図8に実験結果を示す。ここで、入口側の逆止弁は、片持ち梁タイプで、与圧を加えておらず、出口側の逆止弁のみ両持ち梁タイプで与圧を与えている。入口側逆止弁は、順方向に対しては、加えられた圧力に比例して液体が流れ、逆方向に対しては液体の流れを止めており、逆止弁として機能していることが確認できる。出口側逆止弁は、順方向に対しては、0.02[MPa]強の圧力が加わるまで液が流れず、その以降は圧力とほぼ比

例する形で流量が増していく。逆方向に関しては、液の流れは見とめられない。設計では、ディスペンサ内の圧力が負圧になって入口側逆止弁が開き出す前に、この与圧により出口側逆止弁が閉じることになっている。これを確認するため、ディスペンサ吐出流量の周波数依存性を調べたので、その結果を次節で述べる。

< 3. 2 > 吐出流量の周波数依存性

吐出流量は、電子天秤によりディスペンサが1秒間に吐出した水の重量を測定し、その結果から算出した。連続して測定が行えるように計量容器は電子天秤内に置き、計量容器内には水よりも比重の小さいシリコンオイルを入れることで吐出した水が蒸発するのを防いだ。圧電アクチュエータの駆動は、-150~400[V]正弦波の300[V]以上の電圧を持つ領域を300[V]の電圧一定領域に加工した波形で行った。波形の加工は、入口側逆止弁の応答遅れをカバーするため、入口側逆止弁が締まるまでダイアフラムアクチュエータが液滴を吐出する方向に動き出さないように電圧を一定に留めている。この条件下でのアクチュエータの振幅をレーザー変位計で測定し、2000[Hz]までの範囲で常に12[μm]の安定した振幅が得られていることを確認した。図9に、駆動周波数と吐出流量の測定結果を示す。吐出流量は、駆動周波数に比例して増大し、700[Hz]で148[μl/s]となる。

図 8. 逆止弁の締切り性
Fig. 8 Capacity to resist pressure of inlet/outlet valve

図 9. マイクロディスペンサの吐出特性
Fig. 9 Frequency dependence of micromachined dispenser at zero backpressure (-150 ~ 300 V)

図 10. ノズルから吐出された液滴 (400Hz)
Fig. 10 Ejection of water droplets at 400Hz

この結果より、駆動周波数を高くしても逆止弁が追従し、ディスペンサの送液効率が低下しないことが確認できる。なお、これ以上の駆動周波数においては、液滴の吐出間隔が短く計量容器内のシリコンオイルを液滴が通り抜ける前に次の液滴が追いついてしまうため、シリコンオイル表面に水が溜まるようになり、その水に液滴が当たって飛び散り正確な計量ができなかった。

< 3. 3 > ノズルでの液滴挙動

ディスペンサを用いて安定した分注を行うには、確実にノズルで液滴を生成できなければならない。そこで、ノズル部での液滴の挙動を高速シャッターカメラを用いて観察した。図 10 に、ダイヤフラムアクチュエータを -100 ~ 320 [V] の正弦波の 250 [V] 以上の電圧を持つ領域を 250 [V] の電圧一定領域に加工した波形を用いて 400 [Hz] で駆動した場合のノズル部での液滴の飛翔の様子を示す。この写真より 0.14 [μl] の安定した液滴が連続して飛翔していることが確認できる。液滴の間隔より前記駆動条件下での液滴の飛翔速度は、0.8 [m/s] と算出された。また、この時の吐出流量は 56 [μl/s] である。

< 3. 4 > 分注性能

最後に、ディスペンサの分注性能について検証する。前節

表 1. マイクロディスペンサの分注精度

Table. 1 Accuracy of dispensed water volume at 400 Hz sine-wave drive (-100 ~ 250 V).

droplet count	40	200	400
volume [μl]	5.6	28.1	56.2
σ [μl]	0.04	0.10	0.12
C.V. [%]	0.72	0.36	0.22

σ : standard deviation

C.V. := (σ / average) × 100
(coefficient of variance)

表 2. マイクロディスペンサの性能比較

Table. 2 Performances of micromachined and commercial dispensers

	Micromachined	Commercial
C.V.	0.22 % (56 μl)	>1 % (100 μl)
size [mm]	14W × 14D × 2H	490W × 450D × 354H
arrayed dispensers	easy	difficult, expensive

で示したように、安定した液滴が得られていることから、分注する液量の制御を吐出する液滴の数で行うことが可能と考えられる。そこで、実際に液滴の数を変えて吐出を行い、その特性を調べた。測定での圧電アクチュエータの駆

動は、 $-100\sim 320$ [V]の正弦波の250[V]以上の電圧を持つ領域を250[V]の電圧一定領域に加工した波形を用いて400[Hz]で行った。表1に吐出した液滴の数を40, 200, 400とした場合の分注流量の平均値、標準偏差 σ 、ばらつき(C.V.値)を示す。分注流量は、一つの液滴量が $0.14[\mu\text{l}]$ で安定していることから液滴の数に比例して増加し、液滴数を増すほど分注流量のばらつきが小さくなることがわかった。これは、液滴数を増しても標準偏差に大きな差が現れないためで、液滴量が安定していることを裏付けている。分注流量が $56[\mu\text{l}]$ の時のばらつきは 0.22 [C.V.%]であり、表2に示した市販の高性能シリンジポンプを用いて $100[\mu\text{l}]$ 分注した場合の 1 [C.V.%]に対して十分な性能が出ていることが確認できる。また、サイズもシリンジポンプを用いたディスペンサに比べて数桁下がり、システムの小型化が図れることがわかる。

4. むすび

ダイヤフラムポンプを微量分注を行うマイクロディスペンサとして用いた場合の性能を評価した。開発したマイクロディスペンサの特徴は以下の通りである。

- (1) 多段異方性エッチング法により加工した単結晶シリコン一体構造の逆止弁により、 0.02 [MPa]の与圧を得た。これにより、逆止弁の応答遅れに起因する送液効率の低下を防ぎ、駆動周波数 700 [Hz]で $148[\mu\text{l/s}]$ の吐出流量を得るまでリニアな吐出流量の周波数特性を実現した。
- (2) 微細なノズルに撥水処理を施すことで、液滴のノズルへの付着を防ぎ、安定した液滴 ($0.14[\mu\text{l}]$) の生成を可能にした。吐出する液滴の数で分注流量の制御が可能となり、 $56[\mu\text{l}]$ の分注をばらつき 0.22 [C.V.%]で実現した。

この他、開発したディスペンサは、Auを使った組立てを行っているため、耐化学物質性が高く、様々な用途への適用が可能である。また、逆止弁の与圧により、吐出する液体を溜めたタンクがマイクロディスペンサのノズルよりも高い位置にある場合でも、液漏れによるノズルの汚染がなく、ノズルの撥水性を長期間維持できると考えられる。

以上から、ダイヤフラムポンプをマイクロディスペンサとして化学物質の分注に用いることは可能であり、化学物質の合成や評価のスループットの向上や化学物質の消費量削減の有効な手段となると考える。

(平成12年10月30日受付、平成13年4月5日再受付)

文献

- [1] Fan-Gang Tseng, Chang-Jin "CJ" Kim and Chih-Ming Ho, "A Novel Microinjector with Virtual Chamber Neck", Proc. of MEMS'98, pp. 57-62, (1998).
- [2] R. Zengerle, S. Kluge, M. Richter and A. Richter, "A Bidirectional Silicon Micropump", Proc. of MEMS'95, pp.19-24, (1995).
- [3] P. Woias, R. Linnemann, M. Richter, A. Leistner and B. Hillerich, "A Silicon Micropump with a High Bubble Tolerance and Self-priming Capability", Proc. of μ TAS'98, pp.383-386, (1998).
- [4] Sebastian Bohm, Marcel Dierselhuis, Wouter Olthuis and Piet Bergveld, "Manufacturing of Self-Priming Plastic Micropumps", Proc. of μ TAS, pp.391-394, (1998).
- [5] S. Kamisuki, T. Hagata, C. Tezuka, Y. Nose, M. Fujii and M. Atobe : "A Low Power, Small, Electrostatically-Driven Commercial Inkjet Head", Proc. of MEMS'98, pp. 63-68,

(1998).

- [6] Ingo Ederer, Josef Grassegger and Carsten Tille, "Droplet Generator with Extraordinary High Flow Rate and Wide Operating Range", Proc. of Transducers'97, pp. 809-812, (1997).
- [7] A. Koide, K. Sato, S. Suzuki and M. Miki, "A Multistep Anisotropic Etching Process for Producing 3-D Silicon Accelerometers", Proc. of The 11th Sensor Symposium, pp. 23-26, (1992).
- [8] Y. Sasaki, A. Kouno, M. Horino, M. Usami, M. Tokuda and T. Tase, "Defect Rescue Method for Microprocessor, Using Bonding Technology with Ar Atom Bombardment", Quarterly Journal of The Japan Welding Society, Vol.17, pp. 264-271. (1999)
- [9] N. Watanabe, A. Koide, Y. Nagaoka, R. Miyake and T. Terayama : "A New Visualizing Technique for Micro-Channels Using Micron-sized Focal Spot of X-Ray-source", Proc. of Transducers'99, pp. 1380-1383, (1999).

小出 晃

(正員) 1961年10月28日生まれ。1987年3月横浜国立大学大学院博士前期課程修了。同年4月(株)日立製作所入社。主としてマイクロマシンの加工技術、特にアルカリ水溶液を用いた単結晶シリコンの異方性エッチング技術の研究開発に従事。

佐々木康彦

(非会員) 1966年9月27日生まれ。1992年3月茨城大学大学院博士前期課程修了。同年3月(株)日立製作所入社。主としてマイクロマシンの組立て技術、特に低温での異種材料接合技術の研究開発に従事。

吉村 保廣

(非会員) 1990年3月姫路工業大学大学院工学研究科修了。同年4月(株)日立製作所入社。主として機能性分子膜の研究開発に従事。

三宅 亮

(正員) 1960年4月20日生まれ。1985年大阪大学大学院基礎工学研究科修了。同年4月日立製作所入社。主としてフローサイトメータの研究開発を経て、分析装置用流体マイクロデバイスの研究に従事。

寺山 孝男

(非会員) 1971年3月早稲田大学大学院工学研究科修了。同年4月日立製作所入社。主として磁気ディスクのメカトロニクスの研究開発を経て、計測機器の研究開発に従事。