

(19) 日本国特許庁(JP)

(12) 特許公報(B2)

(11) 特許番号

特許第4634035号
(P4634035)

(45) 発行日 平成23年2月16日 (2011.2.16)

(24) 登録日 平成22年11月26日 (2010.11.26)

(51) Int. Cl.	F I		
BO1J 19/00 (2006.01)	BO1J	19/00	321
B81B 1/00 (2006.01)	B81B	1/00	
B81C 99/00 (2010.01)	B81C	5/00	

請求項の数 5 (全 15 頁)

(21) 出願番号	特願2003-532965 (P2003-532965)	(73) 特許権者	397068274
(86) (22) 出願日	平成14年9月13日 (2002.9.13)		コーニング インコーポレイテッド
(65) 公表番号	特表2005-503923 (P2005-503923A)		アメリカ合衆国 ニューヨーク州 148
(43) 公表日	平成17年2月10日 (2005.2.10)		31 コーニング リヴァーフロント プ
(86) 国際出願番号	PCT/US2002/029179		ラザ 1
(87) 国際公開番号	W02003/029803	(74) 代理人	100073184
(87) 国際公開日	平成15年4月10日 (2003.4.10)		弁理士 柳田 征史
審査請求日	平成17年9月13日 (2005.9.13)	(74) 代理人	100090468
(31) 優先権主張番号	0112500		弁理士 佐久間 剛
(32) 優先日	平成13年9月28日 (2001.9.28)	(72) 発明者	ギュズマン, ギローム
(33) 優先権主張国	フランス (FR)		フランス国 F-77250 ヴェヌー-
前置審査			レーサブロン リュ ドゥ セーヌ 52

最終頁に続く

(54) 【発明の名称】 超小型流体素子及びその作製

(57) 【特許請求の範囲】

【請求項 1】

超小型流体素子の作製方法において、
有機結合剤及び前駆体材料を含む混合物を第1の基板上に、該混合物を該第1の基板上に支持しながら、形成する工程、

固結した第1の集成体を形成するために、前記混合物及び前記基板を予備焼結する工程、

前記第1の集成体と第2の基板を有する第2の集成体とを、前記第1の基板上の前記予備焼結された混合物が前記第1の基板と前記第2の集成体との間に配置されるように集成する工程、及び

前記集成された第1の集成体及び第2の集成体を、前記第1の基板と前記第2の基板の間に少なくとも1つの凹部を画成する一体型の微細構造体を形成するのに十分な温度まで加熱する工程、

を有してなることを特徴とする方法。

【請求項 2】

前記形成工程を真空下で行うことを特徴とする請求項1に記載の方法。

【請求項 3】

前記混合物を前記第1の基板と金型の間に形成することを特徴とする請求項1または2に記載の方法。

【請求項 4】

前記第2の基板上の熱成形済混合物を予備焼結することにより前記第2の集成体を製造する工程をさらに有し、前記集成する工程が前記第1の集成体の前記予備焼結された混合物を前記第2の集成体の前記予備焼結された熱成形済混合物に隣接して配置する工程を含むことを特徴とする請求項1から3いずれか1項に記載の方法。

【請求項5】

外部と前記少なくとも1つの凹部の間の連絡を提供するための少なくとも1つの流路を孔開けする工程をさらに含むことを特徴とする請求項1から4いずれか1項に記載の方法。

【発明の詳細な説明】

【関連出願の説明】

10

【0001】

本出願は、ギラモ・グズマン (Guillermo Guzman) 及びジャン・ピエール・テモン (Jean-Pierre Thémont) の名義で2001年9月28日に出願された、仏国特許出願公開第0112500号の利益を主張するものである。上記特許の明細書の全内容は本明細書に参照として含まれる。

【技術分野】

【0002】

本発明は、全般的にはマイクロリアクターの分野に関し、さらに詳しくは、超小型流体素子及びそのような超小型流体素子の作製方法に関する。

【背景技術】

20

【0003】

超小型流体素子は当業者には良く知られた構造体であり、特に非特許文献1及び非特許文献2のような参考文献に数多くの用途が既に説明されている構造体である。容積が小さい(一般には10 μ mから1000 μ mの範囲にある特性寸法を有する)そのような構造体内で、流体が誘導され、及び/または互いに混合され、及び/または反応させられる。

【0004】

当業界において公知のそのような素子として、様々なタイプの材料、特に高分子材、シリコンまたは金属でつくられた超小型流体素子がある。これらの材料が直面する欠点は数多くある。例えば、高分子材でつくられた素子は200 から300 をこえる温度に長時間耐えることができない。さらに、そのような構造体内では表面準位の有効な制御が困難であることが多い。

30

【0005】

シリコン素子は高価であり、ある種の生物体液には適合せず、シリコンの半導体性が、電磁流体力学的ポンピング及び電気浸透ポンピングのような、ある種のポンピング技法の実施にあたって問題を引き起こす。

【0006】

金属でつくられた素子は腐食し易く、したがって、同様に、ある種の生物体液には一般に適合しない。

【0007】

したがって、ガラス、ガラスセラミックまたはセラミックでつくられた流体用超小型構造体を有することが、数多くの状況において望ましいことがわかっている。これらの材料は、絶縁性のため(すなわち、特許文献1は流体が電気浸透または動電学により移動する場合に絶縁性構造体を利用できることの恩恵を説明している)、化学作用に対して耐性があるかまたは不活性でさえあるため、透明であるため、表面均質性のため、及び表面を容易に化学的に変性できるため、特に好ましい。ガラスでつくられた超小型流体素子は、化学的または物理的エッチングにより得られている。これらのエッチング技術はガラス基板にくぼみを生じさせるものであるが、実施して完全に満足な結果が得られるものではない。等方性化学エッチングでは大きなアスペクト比を得ることができず、物理エッチングは、コストがかかり生産能力に限られることから、特に実施が困難である。そのような開放構造体を塞ぐために最も多く用いられる技法はイオン付着である。この技法は費用がかか

40

50

り、塵埃に極めて敏感であり、及び高品質封止を提供するには接する層のそれぞれの表面が可能な限り平坦でなければならぬため、実施が困難である。

【0008】

特許文献2に記載されているように、セラミックでつくられた超小型流体素子は一般に、セラミック化可能な層(セラミック粉末及び有機結合剤の生混合物)の積層をセラミック化することにより得られる。積層体には支持層はなく、セラミック化可能な層のそれぞれの内部の空孔容積は限られたままである。

【0009】

スクリーン及びデジタルディスプレイのような、別の状況においては、以下の技法が説明されている。一般的に言って、平坦な支持体上に直線平行リブを形成するためのガラス成形作業は当業界において公知である。本発明の方法とは異なり、そのような成形工程は真空中で実施されない。特許文献3にも公知の技術が述べられている。

【0010】

上述の成形作業により得られるような直線平行リブを有する開放面構造体を塞ぐための作業も既知である。そのような成形作業によれば、極薄ガラスペースト層が、互いに離れすぎてはいない、それぞれのリブの上におかれる。これは特許文献4に説明されている。極薄ガラス層を導入する技法が、本発明にしたがってつくられる素子の支持基板と等価であると考えすることは不可能である。

【0011】

したがって、必要とされているが当業界で現在利用できないものは、当業界において公知の超小型流体素子の使用及び作製にともなう上記及びその他の欠点を克服する超小型流体素子及びそのような超小型流体素子の作製方法である。そのような超小型流体素子は、高アスペクト比を得ることができるべきであり、化学工業、製薬工業及びバイオテクノロジー工業のためのマイクロリアクターとしての使用に十分適するべきである。そのような超小型流体素子の作製方法は、低コスト生産に適合するべきであり、同時に、有利な歩留を提供するべきである。

【特許文献1】米国特許第6210986号明細書

【特許文献2】欧州特許出願公開第0870541号明細書

【特許文献3】米国特許第5853446号明細書

【特許文献4】特公平12-187028号公報

【非特許文献1】ダブリュー・エーフェルト(W. Ehrfeld)編,「マイクロリアクション技術(Microreaction Technology),第3回マイクロリアクション技術国際会議」,スプリングー・バーラグ(Springer-Verlag)(ベルリン)刊,2000年

【非特許文献2】エイ・バン・デン・ベルグ(A. Van Den Berg),ダブリュー・オルティウス(W. Olthius),ピー・バーグベルト(P. Bergveld)編,「マイクロ-総合分析システム2000(Micro-total Analysis Systems 2000)」,クリュワー・エイシー出版(Kluwer Ac)刊,2000年

【発明の開示】

【発明が解決しようとする課題】

【0012】

本発明が目的とするのは、そのような超小型流体素子及びそのような超小型流体素子の作製方法の提供である。

【課題を解決するための手段】

【0013】

本発明の一態様は超小型流体素子に関する。この超小型流体素子は微細構造体と第1の基板とを有する第1の集成体を備え、微細構造体は真空中で第1の基板上に構築および配置される。第1の集成体が予備焼結された後に第2の基板を有する第2の集成体が微細構造体上に配置され、熱処理により微細構造体に固着されて、第1及び第2の基板の間に少なくとも1つの凹部を画定する一体型の微細構造体が形成される。

【0014】

別の態様において、本発明は超小型流体素子の作製方法に向けられる。本方法は、金型と第1の基板の間に有機結合剤及び前駆体材料を含む混合物を配する工程、第1の基板上に混合物を金型の形状で熱成形するに十分な温度で混合物を真空下で加熱する工程、及び第1の基板に熱成形された混合物を予備焼結して固結した第1の集成体を形成する工程を含む。第1の集成体は第2の基板を有する第2の集成体と、予備焼結された熱成形済混合物が第1の予備焼結基板と第2の集成体の間に配置されるように、集成される。集成された第1の集成体及び第2の集成体は、第1の基板と第2の基板の間に少なくとも1つの凹部を画定する一体型の微細構造体を形成するに十分な温度まで加熱される。

【0015】

本発明の超小型流体素子及びそのような超小型流体素子の作製方法により、当業界において公知の他の超小型流体素子及び作製技法に優る多くの利点が得られる。例えば、本発明の真空成形態様は低コスト生産及び高歩留に適合する技法である。さらに、真空成形により、物理エッチングのような費用のかかる技法を用いずに、高アスペクト比を実現できる。

10

【0016】

本発明のさらなる特徴及び利点は以下の詳細な説明に述べられ、ある程度は、当業者にはその説明から容易に明らかであろうし、あるいは本明細書に説明されるように本発明を実施することにより分かるであろう。

【0017】

上述の一般的説明及び以下の詳細な説明はいずれも本発明の例示に過ぎず、特許請求される本発明の本質及び特性を理解するための概要または枠組みの提供を目的とするものであることを理解されたい。添付図面は、本発明の理解を深めるために含まれ、本発明の様々な実施形態を図示し、記述とともに本発明の原理及び動作の説明に役立つ。

20

【発明を実施するための最良の形態】

【0018】

ここで、添付図面を参照して、本発明を方法及び素子という2つの態様において非限定的に説明する。

【0019】

以下でかなり詳細に示されるように、本発明の超小型流体素子は、超小型流体素子を構成する材料による超小型流体素子の特別な（サンドイッチ型の）構造と、真空成形技法を使用することが好ましい超小型流体素子の作製に用いられる、方法とにより、独創的である。さらに、本発明の方法は、第1に真空成形（例えば真空中でのマイクロ成形）を実施し、第2に予備焼結を実施する点で独創的であり、特に有利である。他の方法とは異なり、本発明の方法は基板または支持体も利用する。

30

【0020】

ここで本発明の第1の態様すなわち独創的な超小型流体素子を参照すれば、そのような超小型流体素子は（“カバープレート”で）塞がれていることが好ましく、当該実施形態に依存して、単体（ $n = 1$ ）で、あるいは複数（ $n > 1$ ）の素子の組合せで存在することができる。

【0021】

40

本発明の超小型流体素子は、2枚の基板の間にヒートシールされた、（チャンネル、分配室または（化学的、生体学的、電気化学的）反応室のタイプの）少なくとも1つの凹部が形成された一体型の微細構造体（すなわち、“サンドイッチ”型構造体）を有する、少なくとも1つ（ $n = 1$ ）の機素を含み（詳しくは、本発明の超小型流体素子は単一の機素、あるいは1つに集成された一組のそのような機素（集成体のそれぞれの機素はモジュールまたは段と称することができる）からなることができ、實際上、少なくとも1つのそのような機素及び少なくとも1つの別のタイプの機素を有する複合集成体からなることができる）、一機素の微細構造体のそれぞれの凹部は、その機素の微細構造体の少なくとも1つの別の凹部または素子の別の機素（したがって素子は $n > 1$ の機素を有する）の別の微細構造体の少なくとも1つの凹部と通じ、及び/または、本発明の素子内に少なくとも1つ

50

の流入口及び流出口を介して外部と通じる少なくとも1つの流体（液体またはガス）循環回路が見いだされることになるように、素子の外部と通じる。

【0022】

本発明の素子の（1つまたは複数の）構成機素の基板は、ガラス、ガラスセラミック、セラミック、金属、シリコンのような半導体及び/またはこれらの組合せから選ばれる材料で作製することができる。

【0023】

（1つまたは複数の）一体型の微細構造体は、ガラス、ガラスセラミック、セラミック及びこれらの組合せから選ばれる少なくとも1つの材料でつくられたそのような基板の間に挟み込まれることが好ましい。

10

【0024】

上掲の材料の間の接触に関与する材料またはそのような材料の前駆体（特にガラスフリット）は、熱膨張係数に関して適合させることができる。以下に、より詳細に説明されるように、熱膨張係数の適合は、とりわけ、第1には最終集成体の熱成形及び焼成後の冷却中の、第2には素子の使用中の、いかなるクラック発生も回避するために行うことができる。

【0025】

当業者には本発明の素子の利点の多くが容易に理解されるであろう。そのような素子内では、関与する流体は完璧な制御の下にある表面としか接し得ない。そのような表面には、一体型の微細構造体がつくられる材料（（1つまたはそれより多くの）ガラス、ガラスセラミック、セラミック）の表面、または変性後の材料の表面が含まれ得る。ある種の状況では、例えば触媒を被着することによりそのような表面を活性化することができ、また別の状況では、例えば特にポリシロキサン膜で表面を被覆することにより表面を完全に中性化することができるので、そのような表面を変性させることは一般に容易である。この観点によれば、本発明の素子は高分子材または金属でつくられた既知の素子をはるかに上回る性能を提供する。さらに、本発明の素子の構造は基板の存在により強化される。

20

【0026】

構造及び構成材料の性質にかかわる上記の特性は、そのような素子の作製方法についても有利であることが以下で説明される。

【0027】

本発明の素子には、同種の機素からなつて実施されるか、さもなければ複数の機素が構造体に含まれる、多数の別形が存在し得る。それぞれの機素の（同質または異質であり得る）2枚の基板の間の一体型の微細構造体は、それ自体が複数の別形で実施されてもよい。例えば、本発明の素子は上で特徴が挙げられた種類の単一（ $n = 1$ ）の機素から構成できる。本発明の素子は上で特徴が挙げられた複数（ $n > 1$ ）の機素から構成することもでき、それぞれの機素は必要に応じて同種とすることができ、また互いに対して確実に固定されることが好ましい。詳しくは、2つの機素を、それらが接続して作成される場合のように、共通基板を用いることにより、あるいは素子が使用される温度に耐える結合材料（例えば接着剤）により、互いに対して確実に固定することができる。したがって、それぞれの機素を前もって互いに別個に作成することができる。

30

40

【0028】

本発明の素子が2つより多く（ $n > 2$ ）の機素を含む場合には、第1の上述した技法を用いて機素の全てを互いに対して確実に固定することができるか、第2の上述した技法を用いて機素の全てを互いに対して確実に固定することができるか、あるいは、機素の内の少なくとも2つを第1の技法を用いて互いに対して確実に固定することができ、機素の内の少なくとも2つを第2の技法を用いて互いに対して確実に固定することができる。したがって、本発明の超小型流体素子は、単一機素を有することもできるし、あるいは共通基板を介して互いに対して確実に固定されている、及び/または少なくとも2つの機素が（基板間に結合材料を用いて）それぞれの基板を介して互いに対して確実に固定されている、少なくとも2つの機素を有することもできる。

50

【0029】

本発明の素子には、1つの機素があるかまたはそれより多くの機素があるかにかかわらず、一般には、その中で両基板が実質的に平行に配されている少なくとも1つの機素がある。1つまたはそれより多くの機素を有する集成体の基板の全てが実質的に平行であるように配されることが有利である。それにもかかわらず、本発明の素子の構造が、実質的に平行ではない、対面する機素基板を有することは必ずしも不可能ではない。

【0030】

本発明の素子は、少なくとも1つの多孔質基板及び/または多孔質の一体型の微細構造体を有する少なくとも1つの機素を含むこともできる。素子内で分離を行うためには(1つまたは複数の)基板を構成する材料が多孔質であることが望ましいこともあるし、あるいは、触媒を固定するため、化学反応を行わせるため、流体を分離するためまたは濾過を行うためには一体型の微細構造体を構成する材料が多孔質であることが望ましいこともある。

10

【0031】

一般に、本発明の素子はその中を流れるべき(1つまたはそれより多くの)流体の流入口及び流出口のための適切な流路を備え、この流路は素子の終端基板及び/または素子の終端の一体型の微細構造体を貫通して形成される。とはいえ、外部に向けて直接開かれている一個構成構造体の凹部の1つを直接介して流体の流入口及び/または流出口を提供することは不可能ではない。

【0032】

20

本発明の素子が複数の機素を有するとすれば、少なくとも1つの基板を通して少なくとも1つの流路を設けて、その基板の両側に位置する微細構造凹部間の流通を提供することができる。それぞれの機素の一体型の微細構造体内につくられる凹部の断面はどのようなものであってもよい。したがって、凹部は数多くの角をもつ、すなわち実質的に正方形、長方形、六角形であるか、さもなければ平坦表面を含む、断面を有することもできるし、凹部は角のほとんどない、すなわち実質的に半円であるか、さもなければ曲面及び平坦面だけを含む、断面を有することもできるし、あるいは、凹部は角のない、実質的に円形であるか、さもなければ曲面だけを含む、断面を有することもできる。凹部は、凹部内の流体(特に液体)の循環が最適化され得るように、角のない断面を示すことが有利である。いかなる場合にも、凹部は制御された形状を有することが有利である。これにより、流体の流れのモデル化に基づく方法による素子内の流体の挙動及び/または反応の予測に関して確固とした利点が得られる。

30

【0033】

当該凹部は、壁であるかのように扱うのに完全に適する、微細構造体を構成する(1つまたはそれより多くの)材料のブロックで画定できる。そのような壁は一定の厚さをもつこともできるし、さもなければ、特に、厚さを一定にしたり、テーパを付けたり、またはフレアを付ける(それ等の間に微細構造体が配置されている基板の一方から徐々に離れさせる)こともできる。

【0034】

本発明の素子の有用な例示的实施形態の状況において、基板間の(1つまたは複数の)微細構造体には極めて多数の中空孔が開けられて、凹部の総容積(すなわち(1つまたは複数の)微細構造体の空所百分率)が大きくなっていることが好ましい。空所百分率(この百分率は当然容積百分率である)は一般に50%より大きいことが有利である。さらに、基板間の(1つまたは複数の)微細構造体は、1より大きいことが好ましく、約3~4程度であることが有利であり、約6より大きいことが最も有利である、高さ/厚さ比(アスペクト比)を有する凹部の間に壁を提供する。ほぼ10より大きいかまたはほぼ10に等しいアスペクト比を得ることが可能であった。そのようなアスペクト比は一般に、等方性化学エッチングでは得ることができない。当然、上に指定した特性を有する素子は、指定より小さい空所容積百分率を有していようと、及び/または(1つまたは複数の)微細構造体が1より小さいアスペクト比を示していようと、本発明の構成要素を形成する

40

50

【0035】

したがって、本発明の（単一機素の、あるいは同じ機素が n 回繰り返されるか、または別形を含めて n 回繰り返される複数機素を有する）超小型流体素子の基本モジュールまたは機素の特徴は、中空孔が形成された一体型の微細構造体を2枚の基板の間に有する三元構造体である。上述したように、基板＋一体型の微細構造体＋基板の三元構造体は、適当に多孔質の材料により、表面処理により、または何か別の当業界において公知の手段により、機能化することができる。この目的のためには、電気導体、電極、光導体等のような付加部品の使用による機能化も含めることができる。そのような部品は、加熱器機構、センサ等として用いることができる。

10

【0036】

三元構造体を作成している間に、2つの付加部品を三元構造体に組み込むことができ、これらは、一般には一体型の微細構造体に、必要に応じて基板の1つに接して、また必要に応じて凹部に向かう開口をもって、組み込まれる。これらの付加部品は、基板と一体型の微細構造体の間に設けられる中間層に配置することもできる。1つまたはそれより多くのそのような中間層を備えることが好ましい。

【0037】

すなわち、本発明の素子は少なくとも1つの付加部品、例えば、光導体、電気導体、電極をもつ少なくとも1つの機素を有することができ、及び/または前記少なくとも1つの機素は、表面が変性された少なくとも1つの凹部を一体型の微細構造体に有することが

20

【0038】

本発明の第2の態様が、全般的に、以下に説明される。さらに詳しくは、上述したような、少なくとも1つの機素を有する、超小型流体素子の作製方法は、ガラス、ガラスセラミック、セラミック、金属、シリコンのような半導体またはこれらの組合せから選ばれる材料でつくられた第1の基板上に有機材料及びガラス、ガラスセラミック、セラミックまたはこれらの組合せのための前駆体である材料の第1の混合物を、（いかなる気泡の閉込めも避けるため）真空下で成形する工程を含むことが好ましい。当該前駆体材料は熱膨張係数に関して第1の基板を構成する材料と適合することが好ましい。真空成形は、つくられる形状に少なくとも最小量の機械的強度を付与する条件の下で実施されることが好ま

30

【0039】

成形された混合物は、次いで、適切な熱処理を施すことにより予備焼結されて第1の基板及び成形された混合物を有する集成体にされることが好ましい（予備焼結は有機材料を除去し、構造体を固結するためにはたらく）。次いで、ガラス、ガラスセラミック、セラミック、金属、シリコンのような半導体またはこれらの組合せから選ばれる材料でつくられた第2の基板が与えられることが好ましく、第2の基板の材料は第1の基板の材料と同じとするかまたは異ならせることができ、第2の基板の材料は第2の基板の材料を接触させることができる前駆体材料の実質的に全てと熱膨張係数に関して適合している。該当する第2の基板は、未処理とするか、または一方の面が熱可塑性材料及びガラス、ガラスセラミック、セラミックまたはこれらの組合せのための前駆体である材料の第2の混合物で被覆することができ、第2の混合物は、必要に応じて第1の基板上に用いられた混合物と同じであるか、真空成形されていないか、または必要に応じて予備焼結されており、いかなる場合においても第2の基板及び第1の混合物と適合し、あるいは実際に、第2の基板は、あらかじめ、連続して真空成形及び予備焼結されたそのような第2の混合物で一方の面が被覆されている。次いで、必要に応じてそれぞれの基板上に存在する混合物が互いに面するようにして、2枚の基板を一つに集成することができる。必須ではないが、上記の作業は必要に応じて、2段、3段及び/またはそれより多くの段を連続して有する構造体の底部または最上部として既に得られている集成体を用い、第2の基板の性質に関して同じに、または変えて、少なくとも1回反復することができる。1つまたはそれより多くの

40

50

段を有する、得られた集成体を、次いで、（１つまたは複数の）前駆体材料と基板を１つに結合させるため、または相異なる前駆体材料をそれぞれの前駆体材料が配されている基板のそれぞれと１つに結合させるため、熱処理（焼成）することができる。

【 0 0 4 0 】

真空成形は、特に前駆体材料に混合される有機材料の性質を考慮して、相異なる様々な方法で実施することができる。混合物内の有機材料の組成は、特に、熱可塑性材料、熱硬化性材料または光重合性材料とすることができる。

【 0 0 4 1 】

一般的に言って、本方法は以下の内の１つ以上の多くの仕方で開始することができる。（真空外囲器内における）成形作業において金型を適用する前に第１の混合物を第１の基板上におくことができ、あるいは初めに金型が第１の基板上におかれ、真空が確立され、次いで混合物が金型に注入される。混合物に熱可塑性材料が用いられる場合、初めに混合物を加熱し、適切な金型で成形して冷却し、冷却後に金型を取り外すことができる。材料が熱硬化性材料であれば、混合物を適切な金型により室温で成形し、成形が終わると加熱して、冷却することができ、次いで金型を取り外すことができる。材料が光重合性材料であれば、混合物を適切な金型により室温で成形することができる。成形が終われば、金型を取り外した後に、成形された材料を適切な輻射線（光、X線）で露光することができる。当業者であれば分かるように、用いられる金型は、通常の態様で、適当な種型から作成して所望の最終形状に適合させてもよい。

【 0 0 4 2 】

真空成形により前駆体材料及び有機材料の混合物にレリーフ形状が形成される。本発明にしたがう、特徴的態様において、前記形状は混合物を基板上に支持しながら混合物を変形させることにより得られる。基板はいかなるエッチングも受けないことが好ましい。

【 0 0 4 3 】

予備焼結は支持されている構造体に施されることが好ましいから、実施が簡単であり、構造体は平坦性を保持する。予備焼結は、集成前に（構造体を塞ぐ前に）混合物から有機成分の大部分を除去するためにはたらく。複雑な３次元構造体からの揮発成分の除去は、構造体を損傷せずにガスが抜け出すことができなければならないから、常に問題である。ガラス、ガラスセラミック、セラミック、金属または半導体で作られた基板の使用は、下部構造体を脆弱であろう自立形状で作成し、取り扱う必要なしに容易にそのような下部構造体を成形することができ、構造体は垂下するかまたは歪むことなく、したがって遠く離れたリブ及びノッチまたは複雑な壁形状を備えることが可能であり、基板上に電気導体、電極または光導体のような付加部品を、優れた機械的挙動を付加部品にもたせて、導入することが容易である点で、特に有利である。

【 0 0 4 4 】

従来の態様では一般に、前駆体材料に比較して不活性であり且つ有機材料を吸収する材料が成形された混合物に与えられた後に、予備焼結が実施される。これにより、成形された混合物の垂下または崩壊の度合いが最小化される。吸収材料は一般に、予備焼結のために成形された混合物上に粉末として振りかけられるかまたは吹き付けられる。

【 0 0 4 5 】

作業が反復されない場合には、本発明の方法により（基板の一方は底部としてはたらく、他方はカバープレートとしてはたらく、第１及び第２の基板を集成し合わせることで）単段素子を形成できる。作業が反復される場合には、本方法により、１つまたはそれより多くの共通基板を用いて、 n 段からなる素子を形成できる。次いで、結合材料、特に接着剤を用いて、そのような単段または n 段素子を互いに対して確実に固定することができる。単段、共通の基板をもつ n 段、（共通ではない基板どうしの） n 段スタック、または、いくつかの基板が共通であり、いくつかの基板が共通ではない、 n 段を有する、本発明の素子は全て、縦位置、横位置、斜軸位置、または当業界において公知のいずれか別の向きで用いることができる。

【 0 0 4 6 】

最終素子のいずれかの機素を得るための本発明の方法は、当該カバープレートのタイプにより、3つの主な別形態様で実施することができる。上述したように、第2の(n番目の)基板を：未処理であるか(この別形は好ましくはないが、確定的に排除されることはない)；必要に応じて予備焼結された第2の混合物で被覆されているか、ここで第2の混合物は特に形がつくられていない一様な層の形態にあることが好ましく、必要に応じて予備焼結することができて、予備焼結されていなければ予備焼結された第1の混合物との接触が向上する；(第1の混合物と同様)真空成形されて予備焼結された第2の混合物で被覆されている、第1の(n-1番目の)基板の予備焼結された混合物に、付けることができる。この例示的实施形態は、混合物に凹部として形成された相補形状を利用するために、2枚の基板を位置合せして実施することが有利である。これにより、本発明の超小型流体素子において大きなアスペクト比を得ることが可能になり、アスペクト比は10をこえることができる。

10

【0047】

上述した工程に加えて、本発明の方法は付加工程を含むことができる。流体の循環を可能にするため、そのような流体の流入及び流出を可能にするため、または、實際上、1つの機素の凹部から別の機素の凹部への流体の流過を可能にするため、孔を開けることにより流路を設けることができる。孔開け作業は集成し合わされることになる部品に施すこともでき、予備焼結された混合物を通して施すことが有利である。さらに、1つまたはそれより多くの部品、特に上で指定したタイプの部品(電気導体、電極、光導体)を、当該基板の内の1枚の上に及び/または当該前駆体混合物に、あるいは、實際上、第1及び第2の基板の内の少なくとも1枚と対応する第1または第2の混合物の間に挿入される中間層に、挿入することができる。本発明の素子の機素のそれぞれの作製中に、一体型の微細構造体の一部をつくるために基板と前駆体混合物の間に少なくとも1つの中間層(Si薄層、ガラス層、セラミック層またはガラスセラミック層)、特に通常の印刷法、フォトリソグラフィ法、または電鍍法で形成することができる電極を、滑り入れることが完全に可能である。一体型の微細構造体の凹部の内表面上に手を加えることもできる。これは、例えば、触媒の被着、フィルムの貼付またはコーティングの目的のために行うことができる。言い換えれば、流体と接することになる表面に化学的または物理的な処理を施すことができる。

20

【0048】

その例が添付図面に示されている本発明の現時点で好ましい実施形態をここで詳細に参照する。可能な限り、同一または同様の要素を指すために、図面を通して同じ参照数字が使用される。

30

【0049】

図1に、本発明にしたがう超小型流体素子の作製方法の例示的实施形態が示される。

【0050】

好ましい実施形態においては、初めに、レリーフ微細構造体が(例えばガラスまたはシリコンの)基板A上につくられ、微細構造体は(例えば)ガラスフリット及び熱可塑性材料からなる混合物C₀を成形することによりつくられる。2つの異なる技法が簡略に示される。図1の右上側の技法は、特許文献3に説明される技法、さらに詳しくは、特許文献3の実施例4で説明される方法と同様である。その方法によれば、混合物C₀が基板A上に被着される。混合物を載せた基板Aはサーモスタット制御の支持体1上におかれる。エラストマーでつくられた、適する金型4が前もって作成される。金型が支持体3上に配置され、支持体3自体は加熱素子2に確実に固定される。要素2, 3及び4からなる集成体は、外囲器5内で混合物C₀に押し付けられる前に、外囲器内部で真空脱ガスされる。そのような脱ガスにより、混合物C₀が脱ガスされ、成形された混合物内へのいかなる気泡の閉込めも防止されることが好ましい。

40

【0051】

図1の左上側の方法は、金型4が前もって基板A上におかれた後の金型4への混合物C₀の注入に基づく。基板A及び金型4を含む集成体は、ピストン33の作用の下での開閉

50

に適するジャケット 3 2 内部で 2 つのホットプレート 3 1 の間に配置される。金型 4 の内部が排気機構 3 4 により排気された後、混合物 C₀ がインジェクター 3 5 を通して注入される。熱成形プロセスの終了時点で、熱成形された集成体が下部ホットプレートを通して作用する突出機構 3 6 を用いて押し出される。

【 0 0 5 2 】

真空成形工程の実施後、基板 A に確実に固定された混合物 C₁ が得られ、混合物 C₁ には熱成形された混合物 C₀ が含まれる。集成体は次いで、混合物 C₁ が予備焼結されるような熱処理にかけられる。混合物はこの時点で C₂ と称され、主に熱処理されたガラスフリットからなる。

【 0 0 5 3 】

並行して、目的とする素子のためのカバープレートが作成される。第 1 の実施形態において、カバープレートは処理されずに C₂ 上に配置される（必要に応じて基板 A と同じ）基板 B を含む。集成体は次いで、得られる超小型流体素子 1 0 の 3 つのコンポーネント、すなわち基板 A 及び B 並びに基板 A と B の間の焼成済一体型の微細構造体 C₃ を、確実に結合させるに適する条件の下で熱処理にかけられる。一般的に言って、微細構造体は凹部 6 を有することが好ましい。

【 0 0 5 4 】

第 2 の実施形態において、カバープレートは（例えば）ガラスフリット及び熱可塑性材料の混合物 D の一様な層で被覆された（必要に応じて基板 A と同じ）基板 B を含む。混合物 D は必要に応じて予備焼結される。したがって、混合物 D は必要に応じてかなりの量の熱可塑性材料を含む。得られた集成体は、本発明にしたがう超小型流体素子 1 0 ' をつくるのに適する条件の下で熱処理にかけられる。超小型流体素子 1 0 ' の微細構造体 C₃ + D は凹部 6 ' を有する。

【 0 0 5 5 】

第 3 の実施形態において、カバープレートは下部プレートと同じタイプのものである。カバープレートは、カバープレートに確実に固定された、予備焼結済の（先に示された実施形態の混合物 C₂ と同じ）熱成形済混合物を有する基板（先に示した例における A と同じ基板）を含む。したがって、レリーフパターンを、互いの位置が合うように配置することにより、大容積の（及び大きなアスペクト比を示す）凹部 6 '' を得ることが可能である。得られた集成体は、本発明の超小型流体素子 1 0 '' をつくるに適する条件下で熱処理にかけられる。

【 0 0 5 6 】

図 2 A に断面で示される、3 段構成の超小型流体素子 1 0 0 を得るには、3 つの素子 1 0 '' が連続して作成される。3 つの素子 1 0 '' は、第 1 段の上部基板が第 2 段の下部基板をなし、第 2 段の上部基板が第 3 段の下部基板をなすから、独立には作成されない。集成体は 1 段ずつ積み上げられ、次いで、最終集成体が焼成される。第 2 段の凹部の内の 1 つと第 3 段の凹部の内の 1 つの間に流路 2 0 が設けられる。

【 0 0 5 7 】

図 2 B は、横一列に配置された 4 つの段（1 0 ' + 1 0 '' + 1 0 '' + 1 0 ''）を有する、本発明の素子 1 0 1 を示す断面図である。素子 1 0 1 は、図 2 A に示されるような 3 段素子 1 0 0（1 0 '' + 1 0 '' + 1 0 ''）に図 1 に示されるような単段素子 1 0 ' を付加して得られる。素子 1 0 0 及び 1 0 ' は接着剤で連結されることが好ましい。接着材料接合部は参照数字 4 0 で与えられる。したがって、素子 1 0 1 は“複合”型（すなわち、共通基板を用いた集成体と 2 枚の基板を用いた集成体からなり、全てが同じ構造）の構造体を示す。

【 0 0 5 8 】

図 3 は本発明の 1 0 '' 型単機素子素子の断面図である。用いられる技法により、凹部 2 1 及び 2 2 に有利な形状を与えることが可能になる。第 1 の凹部 2 1 は断面が実質的に六角形であり、一方、第 2 の凹部 2 2 は断面が実質的に円形である。そのような角をもたない断面は特に有利である。

10

20

30

40

50

【0059】

図4は本発明の10'型単機素素子を示す断面図である。本単機素素子の構造には流路20及び電気導体23が含まれる。電気導体23は混合物C₀を被着する前に下部基板A上に配置される。適当な処理を用いることにより、凹部6'の(1つまたは複数の)表面が変性される。本素子は流路20を介して流体が供給されることが好ましい。

【0060】

図5は本発明の10''型単機素素子の斜視図である。しかし、本素子は、基板Aと一体型の微細構造体C₃の間に3つの中間層50、51及び52も有する。これらの中間層50、51及び52には電極及び光導体を含むタイプの付加部品24、24'、24''及び24'''が付帯している。第1の層50の部品24は、第3の層52内の部品24'及び第3の層52の上の部品24''と直交して配置されている。部品24''は微細構造体C₃内で第3の層52の上にある。例えばセンサタイプの、部品24'''は凹部6''内に通じている。

【実施例】

【0061】

以下の実施例により本発明を説明する。

【0062】

その上に電極を配したアルカリ-石灰タイプのガラスベースプレートを用いて(図4に簡略に示したような)10'型マイクロリアクターを作成した(電極は局所加熱のため、温度制御のため、またはプローブとして、用いることができる)。第1の基板の厚さは、少なくとも200μmとすべきであり、一般には約200μmから約3mmの範囲にあるべきである。ガラスのマイクロ成形によりレリーフ構造をガラスプレート上に成形し、本構造は約100μmから約300μmの範囲にある幅及び約800μmまでの高さを有する;得られた毛管(すなわち凹部)の幅は約50μmから約1000μmをこえる範囲にある。素子の凹部を外部と通じさせるため、適切な位置に孔を開けて流路を設けた。その後、孔開けしたガラスプレート上の所定の位置にアルカリ-石灰ガラスのカバープレートを配置した(カバープレートは第2の基板を構成し、同じく、少なくとも約200μmであり、一般には約200μmから3mmの範囲にある厚さを有する)。ベースプレートに用いたガラスと実質的に同等のガラスの平滑層でカバープレートを被覆した。集成体を加熱して構造体の凹部を封止した。

【0063】

さらに詳しくは、以下の工程を順次を実施した。

【0064】

第1工程: 適する金型の提供

本実施例では、可撓性シリコン(RTV141)で金型を作成した。そのような金型を作成するために、例えば、金属、高分子材またはガラスの種型を有しておくことが必要であった(種型自体は、機械加工、放電加工、ステレオリソグラフィのような方法で得られる)。用いた特定の種型は、厚いSU8フォトリジストを用いたステレオリソグラフィにより作成した。

【0065】

第2工程: 第1のガラス前駆体混合物の作成

第1の混合物には、ガラスフリット(CERDECから入手したVR725)及び熱可塑性材料(CERDECから入手したMX4462)を、約4より大きい無機物対有機物重量比で、含めた。混合するだけで混合物を得た。

【0066】

第3工程: 第1の基板上への電極の作成

第1の基板(ベースプレート)には、ガラスフリット(VR725)より軟化温度が高いガラスプレートを選んだ。選択したパターンで銀ペースト(CEDC商品番号7435)をシルクスクリーン印刷することにより電極を作成した。被着した銀ペーストを約500で予備焼結した。

【 0 0 6 7 】

第 4 工程：第 1 の混合物の成形

約 1 0 0 の温度で第 1 の混合物をガラスベースプレート上に堆積した。シリコン金型も約 1 0 0 に維持した。金型をガラスプレートに向けて配置した。次いで集成体を真空中においた。約 0.1 kg/cm^2 の力で金型を第 1 の混合物に押し付けた。次いで集成体を室温まで冷却し、シリコン金型を剥ぎ取った。

【 0 0 6 8 】

第 5 工程：カバープレートの作成

アルカリ-石灰ガラスプレート上に約 $10 \mu\text{m}$ から約 $50 \mu\text{m}$ 厚の第 2 の混合物の層をスピコートした。第 2 の混合物は、同様に、ガラスフリット (V R 7 2 5) 及び熱可塑性材料 (C E R D E C から入手した M X 5 4) とした。

10

【 0 0 6 9 】

第 6 工程：予備焼結

熱処理により、熱可塑性材料をベースプレート及びカバープレートから除去した。熱処理はキルン内において 5 0 0 で実施した。温度サイクルは以下の通りとした。

【 0 0 7 0 】

2 時間かけて約 2 0 から約 5 0 0 まで昇温、
1 時間、約 5 0 0 に安置、及び
2 時間かけて約 5 0 0 から約 2 0 まで降温。

【 0 0 7 1 】

通常の態様で、昇温中の構造体の崩壊を防止した。アルミナ粉末のような、ガラスフリットと反応しない吸収性材料を構造体に振りかけた。これは、例えば、特許文献 3 の実施例 4 に説明される態様で行うことができる。

20

【 0 0 7 2 】

第 7 工程：孔開け

ダイヤモンドビット付ドリルを用いて、通常通りに孔開けを行った。ビットの直径は、当然、様々な流路に望ましい直径と同じとしている。この直径は一般に約 0.5 mm から約 3 mm の範囲にある。

【 0 0 7 3 】

第 8 工程：集成及び焼成

カバープレートをベースプレート上においた (ベースプレートをカバープレート上におくことも、同様に問題なく、できた)。集成体を以下の温度サイクルにかけることにより、ガラス-ガラス結合を達成した。

30

【 0 0 7 4 】

2 時間かけて約 2 0 から約 5 5 0 まで昇温、
2 0 分間、約 5 5 0 に安置、
1 0 分かけて約 5 5 0 から約 5 0 0 まで降温、及び
2 時間かけて約 5 0 0 から約 2 0 まで降温。

【 0 0 7 5 】

本発明を詳細に説明したが、本発明の精神または範囲を逸脱することなく本発明に改変がなされ得ることが当業者には明らかであろうことは至極当然である。本発明の精神及び範囲を逸脱することなく、形状、設計または配置の様々な変更が本発明になされ得る。したがって、上述した説明は、限定ではなく、例示と見なされるべきであり、本発明の真の範囲は添付される特許請求の範囲により定められる。

40

【 図面の簡単な説明 】

【 0 0 7 6 】

【 図 1 】本発明の好ましい方法の様々な工程を簡略に示し、本発明の素子のための前駆体である様々な中間製品を、最終製品、すなわち本発明の素子とともに、同様に簡略に示す。本方法による単機素子の 3 つの相異なる例示的实施形態の作製を可能にする、本方法の 3 つの例示的实施形態も示す

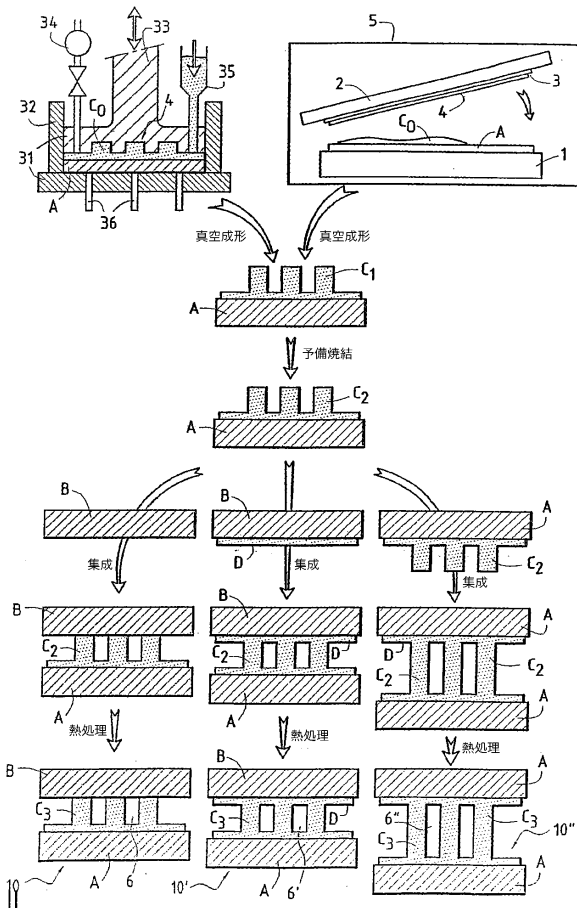
50

【図 2 A】複数の機素から構築された本発明の例示的素子を示す
 【図 2 B】複数の機素から構築された本発明の例示的素子を示す
 【図 3】単一の機素を有する本発明の例示的素子を簡略に示す
 【図 4】単一の機素を有する本発明の例示的素子を簡略に示す
 【図 5】単一の機素を有する本発明の例示的素子を簡略に示す
 【符号の説明】

【 0 0 7 7 】

- 4 金型
- 6 凹部
- 10 超小型流体素子
- A, B 基板
- C₀, C₁, C₂, D 混合物
- C₃ 一体型の微細構造体
- 31 ホットプレート
- 32 ジャケット
- 33 ピストン
- 34 排気機構
- 35 インジェクター
- 36 突出機構

【 図 1 】



【 図 2 A 】

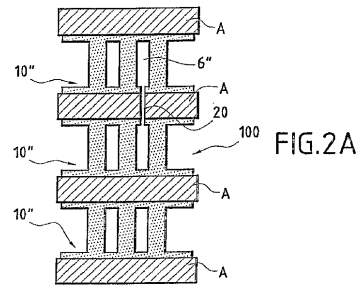


FIG.2A

【 図 2 B 】

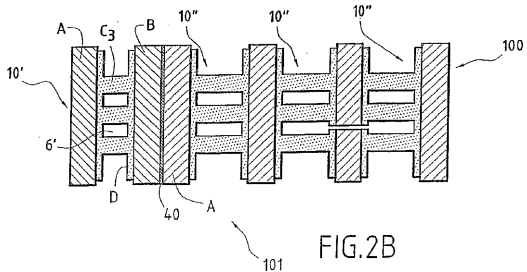


FIG.2B

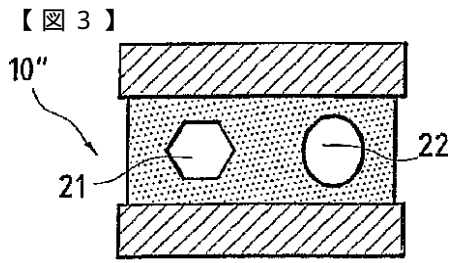


FIG.3

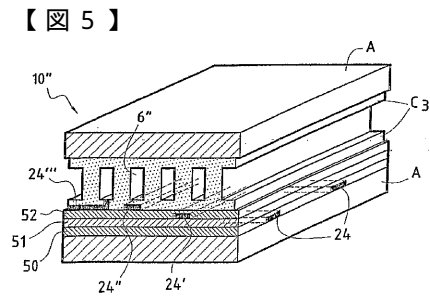


FIG.5

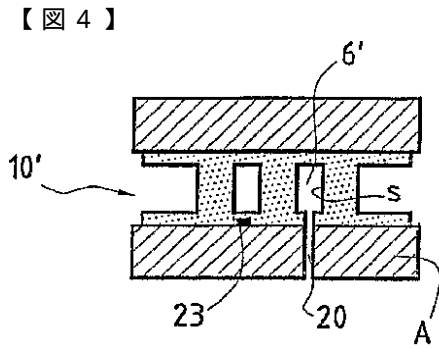


FIG.4

フロントページの続き

(72)発明者 テモン, ジャン - ピエール
フランス国 F - 77690 モンティニユ スクール ロワン リュ デ ウーゾー 19

審査官 神田 和輝

(56)参考文献 特開平08 - 187718 (JP, A)
特開平10 - 076156 (JP, A)
特表平01 - 502890 (JP, A)
特表2002 - 527254 (JP, A)

(58)調査した分野(Int.Cl., DB名)

B01J 19/00-19/32

B81B 1/00-7/04

B81C 1/00-5/00

G01N 37/00