

科学研究費助成事業 研究成果報告書

平成 27 年 6 月 1 日現在

機関番号：16301

研究種目：挑戦的萌芽研究

研究期間：2013～2014

課題番号：25630053

研究課題名(和文)電子顕微鏡を用いたナノ空間内の流れの流動解析とソフトマターの流れへの展開

研究課題名(英文)Flow analysis in a nanoscale space using scanning electron microscope and its development to soft matter flow

研究代表者

保田 和則 (Yasuda, Kazunori)

愛媛大学・理工学研究科・教授

研究者番号：80239756

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 2,800,000円

研究成果の概要(和文)：本研究では、走査電子顕微鏡(SEM)を用い、微小スケールの流路を用いて薄膜越しに可視化したトレーサー粒子を追跡し、速度を計測することに成功した。従来は、オープン流路中の自由表面を有する流れの速度分布を測定できていたが、電子線を透過する薄膜をその流路のフタとして微小スケールの内部流れを実現し、薄膜越しに流速の測定を行うことができた。また、様々なソフトマターを対象に、蛍光顕微鏡を用いて微小スケール流れの速度分布計測にも取り組んだ。その結果、ソフトマターのイオン性に依りて壁面近傍で大きな滑りが観察された。そこで、エバネッセント光を用いて、壁面のごく近傍を観察し、壁面滑りを定量的に評価した。

研究成果の概要(英文)：In the present research, we have successfully measure the velocity of test fluid in a small-scale channel by using electron scanning microscope (SEM) through a thin film. The velocity was obtained by tracking a particle. Previously, the velocity measurement was carried out in a open channel flow having a free surface. However, in our study, we have employed a thin film which transmit a electron beam as a lid of the channel. Furthermore, we have measured a velocity profile using a regular fluorescent microscope for various soft materials in a small-scale inner-flow. As a result, we have found that a large velocity slip on solid wall and that the magnitude of slip depends on the ionicity of soft material. We have observed only the near region of the wall and have quantitatively examined the slip by evanescent light.

研究分野：非ニュートン流体力学

 キーワード：走査電子顕微鏡 流れの可視化 イオン液体 非ニュートン流体 エバネッセント光 壁面スリップ
 高分子流体

1. 研究開始当初の背景

昨今、フォトリソグラフィーの技術を応用して微細流路の作成が容易になり、マイクロスケールの流れの研究が盛んに行われるようになった。その結果、多くの研究者がマイクロスケールの流れ現象の研究に取り組み、通常のスケールの流れでは見られない流れ現象を見いだしている。特に、ソフトマターでは、その分子サイズが流れのスケールにより近づくために、より顕著なマイクロスケール特有の流動現象が生じることが明らかとなっている。たとえば、微小流れでは、流体に作用する体積力と比較して壁面から受ける面積力の影響が大きくなるため、とくに固体との界面での流体の挙動が流れ全体に大きく影響する。

マイクロスケール流れの延長として、さらに微細なスケールであるナノスケールの領域内での流動にも関心が寄せられている。しかし、ここで大きな問題が生じる。マイクロスケール流れの可視化に用いる光学顕微鏡では特殊な光学系を用いない限り、 $1\ \mu\text{m}$ 程度以下のスケールの流れを観察することは困難である。そこで本研究の先行研究ではこの限界を克服すべく、本来は静止した固体表面を観察するために用いられる汎用的な走査電子顕微鏡 (SEM) を流動の観察および流速測定に使うことを発案し、自由表面を有するオープンチャンネル内の流れの速度分布を計測することに成功した。SEM では観察対象を真空のチャンバーに入れるため、水などの液体ではすぐに蒸発してしまうという問題点があったが、それについては、真空中でも蒸発しないイオン液体を用いることで解決した。しかし、その先行研究では、流路がオープンチャンネルであり、閉じられた空間を流れる内部流れではない。そこで、内部流れにおける流れの可視化を SEM で行いたいという期待があった。

2. 研究の目的

将来、マイクロスケールのプラスチック成形等を考えた場合、先行研究のオープンチャンネル内の流れではなく、内部流れを可視化したいという期待があるため、本研究では、オープンチャンネルにフタをする形で内部流れを実現し、その流れを SEM によって観察することを目的とする。SEM は、本来は物体の表面観察に用いる観察装置であるため、チャンネルにフタをすると、そのフタの表面だけを観察することになってしまう。そこで、電子線を透過し、かつチャンネルのフタとして機能する薄膜をフタとして採用することが求められる。

また、比較のため、一般の蛍光顕微鏡と、光源として壁面近傍のみを可視化できるエバネッセント光を用いることで、マイクロスケールの流れの、特に壁面近傍におけるソフ

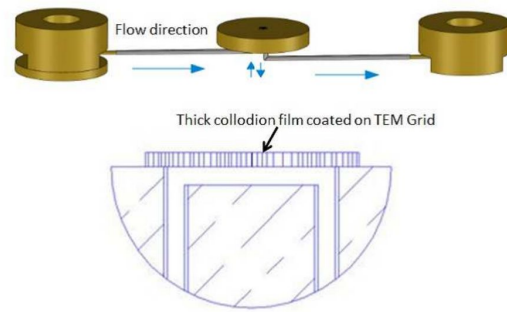


図1 実験流路の概略図と断面

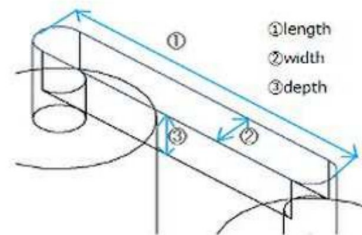


図2 流路形状の詳細

トマターの流動挙動について調べる。

3. 研究の方法

(1) SEM による内部流れの観察

本研究では、微小スケールの流路を真鍮で作成した。流路の概略図を図1に示す。流路は三つの部品からなり、それぞれパイプでつながれている。流路はそのうちの中央に図示された部品に作成されており、横から見た断面を同じく図1に示す。流路は真鍮板の表面に溝のようにして刻み込んだ。その溝にフタをかぶせることで、流路を形成した。図中の斜線部分がフタである。

試料流体にはイオン液体 (1-メチル-3-メチルイミダゾリウムテトラフルオロボレート, $\text{C}_6\text{H}_{11}\text{BF}_4\text{N}_2$, 比重 1.279, 関東化学) を用い、金メッキしたプラスチック粒子 (マイクロパール Au, 直径 $3\ \mu\text{m}$, 比重 3.16, 積水化学) をトレーサーとしてイオン液体に少量添加し

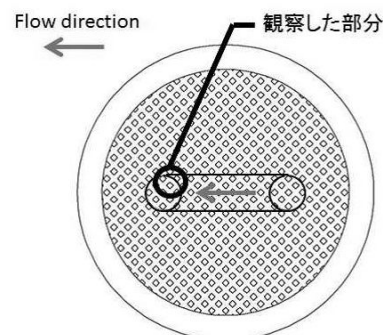


図3 流路のフタと流れの観察部分

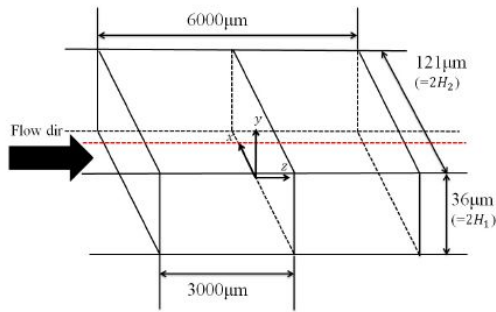


図4 蛍光顕微鏡を用いた流れの測定のための流路形状の詳細

た。イオン液体はニュートン流体である。

観察は二次電子像で行った。二次電子は物体表面近くから発生するため、フタとしてガラス等を用いると電子がさえぎられ、内部流れ場を観察できない。そこでオープンチャンネルに、電子線が透過する薄膜をフタとして採用することでクローズドチャンネルを構成し、内部流れ場を実現した。フタとして、市販の透過型電子顕微鏡(TEM)用のコロジオン膜付グリッドを使用した。コロジオン支持膜の膜厚は40~50 nmであり、膜厚が非常に薄いため、SEMの加速電圧でも電子線が透過することができ、膜越しに流れを可視化することが期待できる。

次に、流路部分のイラストを図2に示す。流路長さは2 mm、流路幅は0.5 mmまたは0.3 mm、流路深さは0.3 mmまたは0.1 mmである。SEMによる流れの可視化は図3に示すように、グリッド面に垂直な方向(紙面に垂直な方向)から行き、グリッドにあいた多数の穴(直径81 μm、穴のピッチ100 μm)をのぞき窓として、内部の流れを可視化した。実際に観察した部分を図3中に示す。図にはグリッドの向こうにある流路の位置も図示した。

(2) 蛍光顕微鏡による内部流れの速度分布測定

SEMによる微小スケール流れの観察実験と同時に、比較のために、微小スケールの流れの速度分布を蛍光顕微鏡で測定する実験も行った。実験に用いた流路を図4に示す。この流路はシリコンゴムであるPDMSに刻んだ幅121 μm、深さ36 μm、長さ6 mmの流路で、下面がガラス、他の3面がPDMSである。この下面ガラス越しに流路内の流れを観察し、流路幅方向(121 μm)の中央部分において、流路深さ方向(36 μm)の速度分布を測定した。試料流体としては、ニュートン流体であるグリセリン(70 wt%または85 wt%水溶液)および非ニュートン流体である各種のソフトマター(イオン性が異なる高分子水溶液)を用いた。それらは以下の通りである。N520P(非イオン性,分子量1200万), AH70P(弱アニオン性,1500万), AH330P(強アニオン性,1700万), KP206BHV(弱

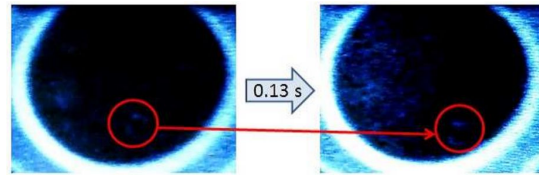


図5 フタ越しにSEMで観察したトレーサー粒子の挙動

カチオン性,1000万), KP1200HV(強カチオン性,700万)。

(3) エバネッセント光を用いた内部流れの壁面近傍の速度分布計測

微小スケールの流れにおいては、固体界面における流体の挙動が全体の流れに大きく影響することが考えられるので、ガラス壁面から流路深さ方向に400 nm程度までの速度分布を、エバネッセント光を用いて測定した。エバネッセント光は、ガラスと流体との界面で光の全反射が起きるときに、流体側のガラス表面ににじみ出る光のことをいう。この光を利用すれば、ガラス表面のごく近傍だけを照明することが可能である。この実験用いた試料流体は(2)の蛍光顕微鏡による観察と同じである。

4. 研究成果

(1) SEMによる内部流れの観察

微小スケールの流路を用いて薄膜越しに可視化したトレーサー粒子を追跡することに成功した。そのとき得られた可視化映像のスナップショットを図5に示す。図中の大きな円は、グリッドにあいている観察窓(直径81 μm)であり、そこにコロジオン膜が貼り付けてある。トレーサー粒子が0.13秒後に画面中央下部からやや右方向に移動している。この結果から流速を求めることができ、69 μm/sであることがわかった。以上のようにして、薄膜越しにSEMを用いて内部流れの

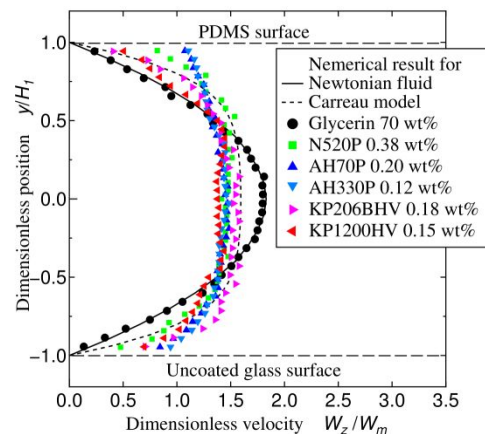


図6 蛍光顕微鏡を用いて測定した流路厚み方向の速度分布

流速を求めることができた。

(2) 蛍光顕微鏡による内部流れの速度分布測定

次に、比較のための研究として微小流路内における壁面近傍の流れの流速測定を、蛍光顕微鏡を用いて行った結果について述べる。流路深さ方向の速度分布の一例を図6に示す。横軸が流速、縦軸が流路深さ方向の位置である。この結果からわかるように、ニュートン流体であるグリセリンでは、図中に示した数値解析結果（図中の実線）とほぼ同じ速度分布が測定（印）でも得られ、本研究で用いた実験装置が正確に作動していることがわかる。また壁面上（ $y/H_1 = -1$ ）において壁面滑りが見られない。

一方、高分子水溶液については、高分子のイオン性によって異なった速度分布結果を得た。非イオン性の流体（印）では、壁面での滑りなし条件を用いた数値計算の結果（破線）とほぼ一致する結果が得られたのに対し、アニオン性あるいはカチオン性の流体では数値計算結果から大きくはずれる速度分布となった。この点については、固体壁面であるガラス面とイオン性高分子との電気的な干渉が原因である。いずれの高分子水溶液でも壁面近傍（ $y/H_1 = -1$ ）において、ニュートン流体では見られない壁面滑りが生じていると推察できる速度分布となった。ただ、蛍光顕微鏡による流速測定では、装置の機構上、壁面から最も近いところでも $1\ \mu\text{m}$ 離れた位置でしか流速が測定できないため、ガラス壁面上において本当に滑りが生じているのかどうかについてはわからない。そこで、ガラス壁面から最大 $400\ \text{nm}$ 程度までの領域だけを証明できるエバネッセント光を用いて、ガラス壁面のごく近傍だけの流速を測定した。

(3) エバネッセント光を用いて測定した壁面近傍の速度分布

SEMの観察では、薄膜の壁面近傍と思われる

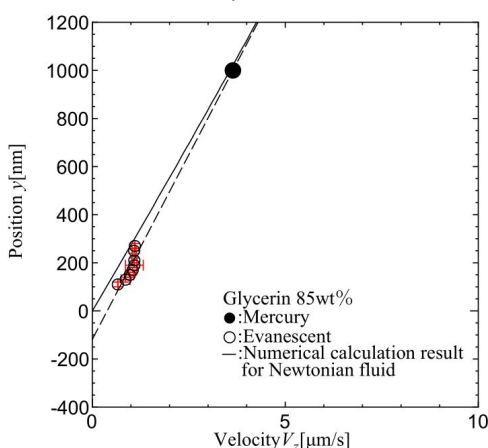


図7 エバネッセント光を用いて測定した壁面近傍の速度分布（グリセリン）

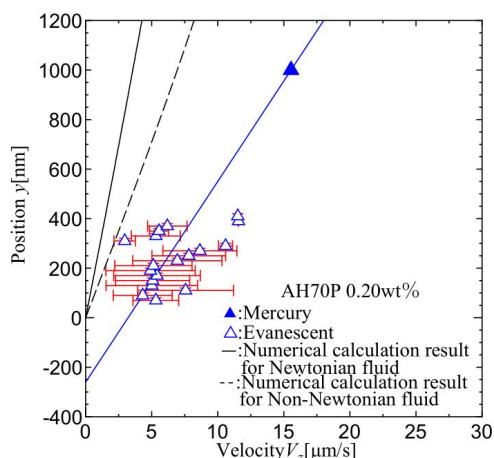


図8 エバネッセント光を用いて測定した壁面近傍の速度分布（AH70P）

る流れを観察できたので、さらに詳しく検討するために、光源にエバネッセント光を用い、壁面から $100 \sim 40\text{nm}$ 程度の範囲だけを観察することにした。その結果を図7に示す。図7はニュートン流体の場合の壁面近傍の速度分布の測定結果であり、図中の実線は数値計算結果、印は蛍光顕微鏡による測定結果、印はエバネッセント光による測定結果である。横軸が速度、縦軸が壁面からの位置を示す。この結果から、ニュートン流体の場合には、数値計算の結果とほぼ一致する速度分布を得ることができ、壁面上での滑りもほとんどないことがわかる。

図8に、高分子水溶液の代表例であるAH70Pの場合の、エバネッセント光による測定結果を示す。図中の破線は数値計算結果であり、印は蛍光顕微鏡による測定結果、印はエバネッセント光による測定結果である。数値計算では、壁面上では滑り無し条件を用いている。この図から、実験による測定結果は数値計算の結果から大きく外れ、さらには壁面上で大きな滑りがあることがわかる。以上のことから、高分子水溶液では壁面上で滑りがあることが確認できた。

(4) まとめ

本研究では、SEMを用いることで、内部流れの可視化が可能となった。ただ、SEMによる測定結果と蛍光顕微鏡、あるいはエバネッセント光による測定の結果との直接的な比較まではできなかった。その理由として、SEMによる可視化実験では、真空中において流体を安定して流すことが困難であったことが最も大きい。その点を解決できれば、SEMによる流れの観察は、本研究の成果を踏まえれば、比較的容易であると考えられる。

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0件)

〔学会発表〕(計7件)

長野和樹, 小田泰之, 保田和則, 岩本幸治, 十河基介, 高分子水溶液のマイクロチャンネル内流れの速度分布計測, 日本機械学会中国四国支部第53回総会・講演会, 2015年3月6日, 近畿大学(広島県東広島市)

Kazunori Yasuda, Husni Yassin, Yukiharu Iwamoto, Motosuke Sogo, Effect of Surface Material on Velocity Distribution in Polymer Solution Flows through a Microchannel, 6th Pacific Rim Conference on Rheology, 2014年7月24日, メルボルン(オーストラリア) 十河基介, 保田和則, 岩本幸治, 電子顕微鏡を用いた微小流れの流動観察, 第42回可視化情報シンポジウム, 2014年7月21日, 工学院大学(東京都新宿区)

Motosuke Sogo, Kazunori Yasuda, Yukiharu Iwamoto, Micro-scale flow visualization using scanning electron microscope, The 16th International Symposium on Flow Visualization, 2014年6月26日, 沖縄コンベンションセンター(沖縄県宜野湾市)

Husni Yassin Bin Sarbini, Kazunori Yasuda, Yukiharu Iwamoto, Motosuke Sogo, Velocity distributions of complex fluids in a microchannel, The 12th International Symposium on Fluid Control, Measurement and Visualization (FLUCOME 2013), 2013年11月19日, 奈良県新公会堂(奈良県奈良市)

K. YASUDA, M. SOGO, Y. IWAMOTO, VISUALIZATION AND MEASUREMENT OF VELOCITY FIELD IN A MICRO-SCALE OPEN CHANNEL USING ELECTRON MICROSCOPE, The 24th International Symposium on Transport Phenomena (ISTP-24), 2013年11月2日, 山口東京理科大学(山口県宇部市)

長野和樹, フスニ・ヤシリン, 保田和則, 岩本幸治, 十河基介, 高分子溶液のマイクロチャンネル内流れにおける壁面の影響, 日本機械学会 2013年度年次大会, 2013年9月11日, 岡山大学(岡山県岡山市)

6. 研究組織

(1) 研究代表者

保田 和則 (YASUDA KAZUNORI)

愛媛大学・大学院理工学研究科・教授

研究者番号: 80239756