

科学研究費助成事業 研究成果報告書

令和 3 年 6 月 9 日現在

機関番号：14301

研究種目：若手研究

研究期間：2018～2020

課題番号：18K13701

研究課題名（和文）エバネッセント光による微粒子操作技術の確立に向けた界面近傍熱流動に関する実験計測

研究課題名（英文）Experimental Measurement of Thermal Flow Field in Near-wall Region for Development of Microparticle Manipulation Technique Using Evanescent Wave

研究代表者

栗山 怜子 (KURIYAMA, Reiko)

京都大学・工学研究科・助教

研究者番号：70781780

交付決定額（研究期間全体）：（直接経費） 3,200,000円

研究成果の概要（和文）：本研究はエバネッセント波を利用した固液界面近傍における微粒子操作技術の確立に向けて、粒子と光および熱流動場が相互作用する系における粒子の運動特性について、実験に基づく体系的な理解を行うことを目的とした。粒子駆動ならびに観察用の全反射光学系を構築し、ガラスと溶液の界面で発生させたエバネッセント場中でマイクロ粒子が界面接線方向に駆動される様子を確認した。またその移動速度から放射圧を見積もり、各種光学条件が粒子速度に与える影響を実験的に評価した。更に、熱的・流体力学的要因が粒子運動に与える影響を見積もるために、蛍光観察に基づく非接触な温度・粘度計測手法の開発に取り組み、一定の妥当性を確認した。

研究成果の学術的意義や社会的意義

マイクロ・ナノメートルオーダーの微粒子を自在に操る手法は、マイクロ流体デバイスにおける細胞や液滴の選別・輸送技術から、新規光学材料や素子開発のための粒子集積化・配列技術まで応用先が広く、革新的な技術開発が期待される。本課題は固液界面に特化した微粒子操作技術の確立に向けて、エバネッセント場中の粒子に働く放射圧や熱的・流体力学的作用の実験的評価を行った。得られた知見は、エバネッセント場内の微粒子運動に関する体系的理解の一助となるもので、光と熱流動の相乗効果による新規輸送技術の提案の基礎になる。また本課題で開発した界面近傍温度計測法は今後、沸騰現象など様々な固液界面熱流動現象への適用が期待される。

研究成果の概要（英文）：The present study aimed at experimental evaluation and understanding of the microparticle motion in the evanescent field where dielectric particles, electromagnetic field and thermal flow field interact each other for the purpose of developing a microparticle manipulation technique near solid wall. The evanescent wave was generated by the total internal reflection of a laser beam at the interface between glass and aqueous solution, in which polystyrene microparticles were suspended. The particle motion induced by the radiation pressure in the traveling direction of the evanescent wave was measured, and the effects of the laser light intensity, incident angle of total internal reflection, and particle size on the velocity of particles in the evanescent field were evaluated. We also developed fluorescence-based nonintrusive measurement techniques for temperature and fluid viscosity to evaluate the influence of thermal flow field on the particle motion in the evanescent field.

研究分野：伝熱工学，流体工学，光計測，マイクロ・ナノ工学

キーワード：エバネッセント光 放射圧 固液界面 微粒子操作 温度計測 粘度計測 熱泳動

1. 研究開始当初の背景

マイクロ・ナノメートルオーダーのサイズの微粒子を自在に操る手法は、様々な工学分野における基盤技術である。応用先はマイクロ流体デバイスにおける細胞や液滴の選別・輸送技術から、新規光学材料やデバイス素子開発のための粒子集積化・配列技術まで裾野が広く、革新的な技術開発が期待される領域の一つと言える。これまで、流体中の微粒子の輸送には電気泳動や誘電泳動、電気浸透流が多く利用されてきたが、特に生体物質に対しては高電圧の印加による影響が懸念される。一方、光の放射圧を利用する光ピンセットは、集光したレーザスポットに微粒子を捕足することで非侵襲に三次元的な位置制御を可能にするが、多数の粒子の同時制御には不向きな側面があった。

これに対して、本申請課題が着目する「エバネッセント光を利用した微粒子操作技術」は、光の全反射に伴って物質表面に局在するエバネッセントフォトンを用いて微粒子の運動制御を行う手法であり、①複数(数百個以上)の粒子を同時かつ広範囲にわたり操作可能、②粒子群の捕足、整列輸送、パターン形成などの多様な運動制御が可能、③エバネッセント場の表面局在性により、表面近傍の粒子のみ選択的に操作可能、などの特徴・利点を有する。従来研究では、エバネッセント場内の粒子に働く光放射圧に関する電場解析が報告されている他、数百 nm～数 μ m 程度のサイズの様々な試料(シリカ粒子、赤血球、カーボンナノチューブバンドル等)を対象とした整列輸送やパターンニングに関する実験結果も報告されている。

一方で、特に光の波長よりも大きいミミ粒子に作用する放射圧に対しては、各種光学条件が与える影響について整理されているとは言い難い。また、過去の研究において、光熱効果による対流や熱泳動の発生によって粒子集積パターンが変化しうること(Gracés-Chávez, et al.; *Phys. Rev.*, 2006)や、整列する粒子数の変化に伴って粒子速度が変化すること(Šiler et al., *Appl. Phys. Lett.*, 2012)など、温度場や流れ場が粒子運動に及ぼす影響について複数の報告があるものの、それらの影響に関する定量的考察は十分に行われてこなかった。エバネッセント場内の粒子運動は、光による作用と熱流動に起因する作用(流体抵抗、対流輸送、熱泳動)および、粒子の熱揺らぎによる作用のつり合いによって決定される。従って、実際のデバイス内で複数粒子の正確な位置制御を実現するには、放射圧との各種光学パラメーターの関係を整理するとともに、光熱効果などにより誘起される局所粘性変化や対流・熱泳動の影響、複数粒子を同時に駆動する際の流体力学的作用について定量的な評価を行い、粒子と光と熱流動場の相互作用を体系的に理解することが不可欠である。

2. 研究の目的

上記の研究背景より、本申請課題は、粒子周囲の熱流動現象に関する計測・解析を行い、従来研究の知見と統合することで、温度勾配や流れを有する壁面近傍エバネッセント場内における粒子運動の定式化を目指す。つまり、実流動場におけるエバネッセント波を用いた粒子群の操作・輸送技術の確立に向けて、粒子と光および熱流動場が相互作用する系について実験に基づく体系的な理解を行い、高精度な位置制御を実現するための定量的指針を示すことを目的とする。そのために、エバネッセント場中の粒子に働く放射圧の大きさを実験的に評価するとともに、エバネッセント場内の粒子周囲の熱流動場を計測・解析し、熱流体力学的作用など、放射圧以外の要因が粒子運動に与える影響を明らかにする。

3. 研究の方法

本研究は、平成 30～32 年度の研究期間に主に下記の内容に取り組んだ。

- (1) エバネッセント場中の粒子に働く光の放射圧について各種光学条件が与える影響を体系的に整理することを目的に、粒子駆動用の全反射光学システムを構築し、エバネッセント場中で電磁場の進行方向に駆動される粒子速度を計測した。入射レーザーの強度や入射角、粒子径などを変化させて計測を行い、粒子速度から放射圧を見積もることで各パラメータの影響を評価した。
- (2) 粒子周囲の流動場における局所温度分布や粘度分布を明らかにするために、蛍光を利用した非接触な計測手法の開発に取り組んだ。粘度分布計測については蛍光偏光法に基づく手法、固液界面近傍の液体温度計測については全反射蛍光観察とレーザー誘起蛍光法や蛍光偏光法に基づく手法をそれぞれ提案し、マイクロ流路内において測定の妥当性の検証を行った。
- (3) 粒子周囲の温度場によって有機される熱泳動現象が粒子に与える影響を評価するため、各種マイクロ粒子の熱泳動移動度の計測を試みた。温度場の数値計算結果に基づいて薄膜電極を敷設した熱泳動評価用マイクロデバイスを設計・作製し、熱泳動によるマイクロ粒子の運動特性評価を行った。

4. 研究成果

- (1) はじめに、粒子駆動および速度計測のための全反射光学システムの構築を行い、その妥当性を検証した。プリズムを利用した全反射光学系を設計・製作し、可視レーザー光を励起光としてガラス・溶液界面にエバネッセント波を発生させることに成功した(図 1)。色素溶液を用いてエバネッセント波スポット内の強度分布を評価したところ、ガウシアン分布を持つ楕円状の強度分布が得られた。長径と短径の比から入射角を逆算し、プリズム入射前のミラーの位置調整により簡便に全反射の入射角を調整できることを確認した。また、表面を蛍光色素により染色したシリカ粒子像の解析に基づいて染み込み深さの評価を行い、理論式と定性的に一致する(界面からの距離に従ってエバネッセント波強度が指数関数的に減衰する)ことを示した。

続いて、構築した上記システムを利用して、エバネッセント場の放射圧による粒子駆動実験を行い、粒子運動に関する基礎データの取得に取り組んだ。近赤外および可視レーザー光を用いて発生させたエバネッセントスポット内で、ポリスチレン製マイクロ粒子(直径 1~10 μm)がエバネッセント波の進行方向(界面接線方向)に $\sim 1\ \mu\text{m/s}$ オーダーの速度で駆動されることを確認した(図 2)。ストークス抵抗に基づいて粒子に作用する界面接線方向の放射圧を見積もると $\sim 0.1\ \text{pN}$ 程度と算出された。更に、各種光学的条件(入射光の強度、全反射角、粒径、屈折率)を変化させた際のマイクロ粒子の駆動速度を計測し、粒子に作用する放射圧との定量的な関係性を評価した(図 3)。その結果、エバネッセントスポット内の平均粒子速度および放射圧はレーザー光強度に比例して増大し、全反射の入射角が臨界角に近いほど大きくなるという結果が得られた。これらの結果は、エバネッセント波強度は入射レーザー光強度に比例すること、エバネッセント波の染み込み深さが臨界角に近いほど大きいことによると考えられる。粒子径については、放射圧が直径に比例して大きくなる結果が得られた。また、実験を進めるに従い、マイクロ粒子とガラス表面の間の疎水性相互作用や静電的相互作用が粒子運動に大きく影響を与える可能性が明らかとなった。例えば、使用するガラス素材や粒子の表面電位、溶媒のイオン強度などの差が粒子駆動速度に影響するような結果が得られた。よって今後のエバネッセント波を利用した粒子駆動・操作技術の確立のためには、これらの作用の影響を考慮する必要がある。

- (2) 非接触かつ高空間分解能な流体粘度分布計測に向けて、蛍光分子の回転ブラウン運動を利用した蛍光偏光法に基づく計測手法を提案した。濃度の異なるスクロース溶液中にプローブとなる蛍光分子(Casein-FITC)を分散させ、溶液から発せられた蛍光信号の偏光度と流体粘度との相関を取得した結果、流体粘度の逆数と偏光度の逆数との間に比例関係が得られ、理論式(Perrin の式)との定性的な一致が確認された。この校正結果に基づいてマイクロ流路内の一様温度場における粘度分布計測を行った結果、幅 100 μm 程度の拡散層における粘度勾配の可視化に成功し、数値計算結果との良好な一致も確認された(Kuriyama et al, *Meas. Sci. Technol.*, 2021)。

また、上記(1)で構築した全反射光学システムを利用して、全反射蛍光観察に基づく固液界面近傍における液体温度分布計測法の開発にも取り組んだ。ペルチェ素子を用いた温度制御兼プリズム保持ステージを作製し、蛍光色素であるスルホローダミン B(SrB)の蛍光強度と壁面近傍温度の相関の取得を試みたが、励起レーザー光の時空的な揺らぎにより 10 $^{\circ}\text{C}$ 程度の大きな計測誤差が現れた。そのためこの課題の解決に向けて、次年度は蛍光強度に依存しない測定方法の開発に取り組んだ。具体的には、2色 LIF 法(蛍光の 2 波長帯の強度比に基づいた温度校正を行う)や蛍光偏光法(蛍光の偏光度に基づいた温度校正を行う)の手法を取り入れた温度計測を試みた。2色 LIF については、SrB の 2 つの蛍光波長帯の強度比に基づいた温度校正を行うことでレーザー光の変動の影響を受けにくい計測が可能となったが、SrB の流路素材への吸着に起因すると考えられる、測定値の大きな時間的変動が見られた。一方、蛍光色素ウラニンをを用いた偏光法を採用した場合には流路素材への吸着が少なく、良好な時間的安定性が得られた。マイクロ流路底面の金薄膜電極への通電加熱により非一様な温度場を形成し、エバネッセント波励起の蛍光偏光法により温度分布を計測した結果、電極から 50 μm 以上離れた領域では数値計算結果と良好に一致する結果が得られた(図 4)。電極近傍で両者に 5 $^{\circ}\text{C}$ 程度の差が生じた原因については今後詳しく検証する必要がある。

- (3) 初年度は、流路内で熱泳動現象を発生させる前段階として温度場のシミュレーションを行った。流路底面を構成するガラスに敷設された薄膜電極への通電加熱を念頭に、熱泳動を発生させるために必要な通電量や最適な電極パターンを見積もりを行った。その結果に基づき、薄膜電極を敷設した熱泳動評価用マイクロデバイスを実際に設計・作製し、流路内に 10 K/mm 程度の急峻な温度勾配を形成することに成功した。このデバイスを用いて通電開始から数分間の各種マイクロ粒子の熱泳動現象を観察し(図 5)、レーザー誘起蛍光法により計測したバルクの流体温度分布と照合することで、各種粒子の熱泳動移動度の算出した。このようにして実測した粒子の熱泳動移動度($|D_T| \sim 10\ \mu\text{m}^2\ \text{s}^{-1}\ \text{K}^{-1}$)と光吸収による温度上昇の程度から、熱泳動が界面の微粒子操作に与える影響を見積もることが可能となった。

(まとめ) 本課題の成果として、エバネッセント場中の粒子に働く放射圧に対して各種光学条件が与える影響を実験的に評価・整理するとともに、熱的・流体力学的要因が粒子運動に与える影響を評価するための計測手法について一定の妥当性を確認した。今後は、得られた知見に基づいて光と熱を利用した粒子の補足・輸送・集積デバイスの開発に取り組み、入射光の時空間的制御や表面プラズモン共鳴による電場増強を利用した具体的応用の提案を行う。また本課題で開発した界面近傍温度計測法は、沸騰現象を含む様々な固液界面の熱流動現象への適用も期待されるため、更なる高度化を図る予定である。

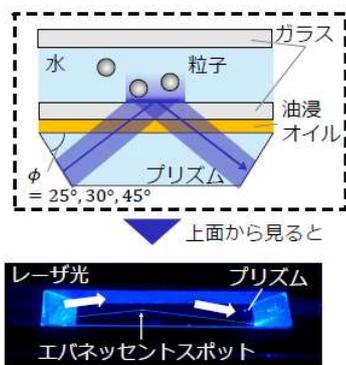


図1 エバネッセント波の発生.

直径10 μm のPS粒子の駆動の様子

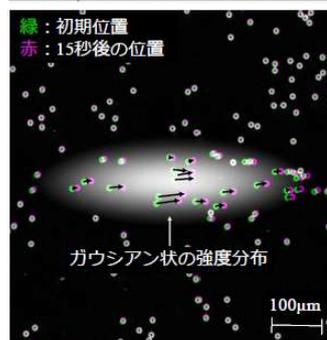


図2 エバネッセント場中の粒子駆動の様子.

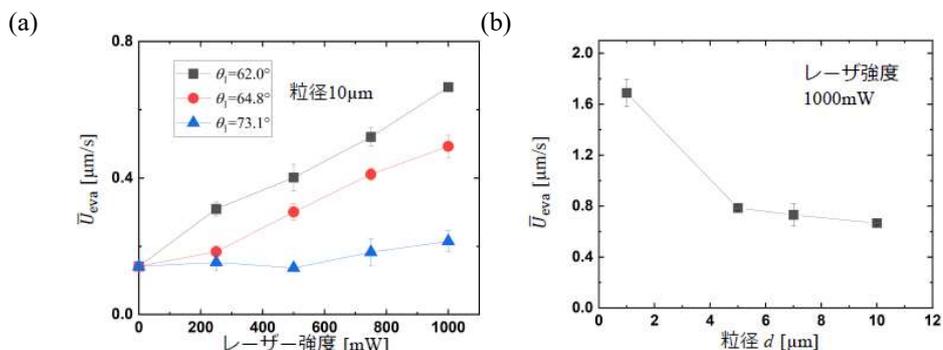


図3(a)レーザー光強度や入射角と粒子駆動速度 U_{eva} の関係. (b)粒子径と U_{eva} の関係.

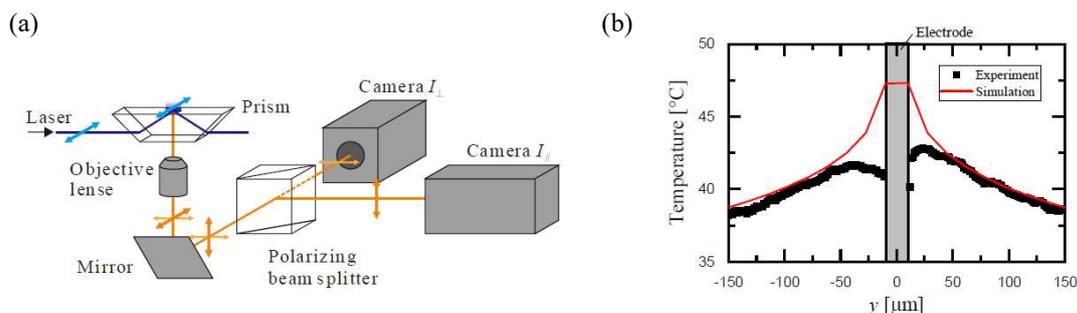


図4(a) エバネッセント波励起の蛍光偏光法の計測システム概要. (b)マイクロ流路底面近傍における液体温度分布計測結果と数値計算結果の比較.

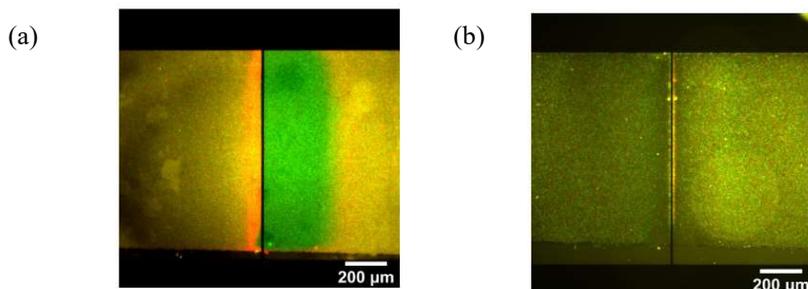


図5 マイクロ流路中央に配置した電極近傍での熱泳動現象の発生の様子 ((a) ポリスチレン粒子および(b)シリカ粒子). 温度勾配発生前後の粒子位置をそれぞれ赤, 緑色で示す.

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計1件（うち査読付論文 1件／うち国際共著 0件／うちオープンアクセス 0件）

1. 著者名 Kuriyama Reiko, Nakagawa Tomotaka, Tatsumi Kazuya, Nakabe Kazuyoshi	4. 巻 -
2. 論文標題 Two-dimensional fluid viscosity measurement in microchannel flow using fluorescence polarization imaging	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 Measurement Science and Technology	6. 最初と最後の頁 -
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1088/1361-6501/abeccb	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

〔学会発表〕 計8件（うち招待講演 0件／うち国際学会 1件）

1. 発表者名 井上実優, 栗山怜子, 巽和也, 中部主敬
2. 発表標題 エバネッセント光を用いた流路壁面近傍の粒子操作技術の開発
3. 学会等名 日本機械学会 関西学生会2019年度学生員卒業研究発表講演会
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 小山侑介, 栗山怜子, 巽和也, 中部主敬
2. 発表標題 熱泳動による粒子駆動特性の評価と粒子分離集積手法の開発
3. 学会等名 日本機械学会 関西支部第95期定時総会講演会
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 栗山怜子, 角野達也, 小山侑介, 巽和也, 中部主敬
2. 発表標題 プリズム式全反射蛍光顕微鏡を用いたマイクロ流路内流れ壁面近傍の濃度計測
3. 学会等名 第9回マイクロ・ナノ工学シンポジウム
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 鈴木雅史, 小山侑介, 栗山怜子, 巽和也, 中部主敬
2. 発表標題 全反射蛍光顕微鏡を用いたマイクロ流路壁面近傍の温度場計測
3. 学会等名 日本機械学会 関西学生会2018年度学生員卒業研究発表講演会
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 植田啓太, 栗山怜子, 巽和也, 中部主敬
2. 発表標題 全反射蛍光観察に基づくマイクロ流路壁面近傍の流体温度計測
3. 学会等名 日本機械学会 関西支部第96期定時総会講演会
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 栗山怜子, 植田啓太, 巽和也, 中部主敬
2. 発表標題 エバネッセント波を用いた蛍光偏光法によるマイクロ流路壁面近傍の液体温度計測
3. 学会等名 第58回日本伝熱シンポジウム
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 井上実優, 栗山怜子, 巽和也, 中部主敬
2. 発表標題 エバネッセント場の放射圧を受ける固体壁面近傍マイクロ粒子の輸送特性評価
3. 学会等名 第58回日本伝熱シンポジウム
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 Miyu INOUE, Reiko KURIYAMA, Kazuya TATSUMI, Kazuyoshi NAKABE
2. 発表標題 Measurement of near-wall microparticles motion under the influence of radiation pressure of evanescent field
3. 学会等名 The 2nd Joint Meeting of ESCHM-ISCH-ISB 2021 (国際学会)
4. 発表年 2021年

〔図書〕 計0件

〔産業財産権〕

〔その他〕

日本機械学会関西支部第96期定時総会講演会における口頭発表（「全反射蛍光観察に基づくマイクロ流路壁面近傍の流体温度計測」）について、発表者(植田)が日本機械学会若手優秀講演フェロー賞を受賞した。

6. 研究組織		
氏名 (ローマ字氏名) (研究者番号)	所属研究機関・部局・職 (機関番号)	備考

7. 科研費を使用して開催した国際研究集会

〔国際研究集会〕 計0件

8. 本研究に関連して実施した国際共同研究の実施状況

共同研究相手国	相手方研究機関