

## 科学研究費助成事業（科学研究費補助金）研究成果報告書

平成24年 6月 5日現在

機関番号：13901

研究種目：基盤研究(A)

研究期間：2009～2011

課題番号：21246034

研究課題名（和文）

高クヌッセン数マイクロ流れの多次元多変量複合同時計測

研究課題名（英文）

Multidimensional and Multivariable Combined Simultaneous Measurement on High Knudsen Number Micro Flows

研究代表者

新美 智秀 (NIIMI TOMOHIDE)

名古屋大学・工学研究科・教授

研究者番号：70164522

研究成果の概要（和文）：高クヌッセン数流れとなるマイクロ流れに適用可能な多次元多変量複合同時計測手法の開発を、同じ高クヌッセン数となる希薄気体流れの知見も有効に活用しながら試みた。まず、レーザー誘起蛍光法と分子タギングを組み合わせた速度計測手法の開発を行い、希薄気体流れ及びミニチャンネル内部流れへの適用に成功し、その知見を基にマイクロ流れへの適用を試みた。また、壁面における圧力・温度・濃度計測を可能とする高秩序分子膜センサの開発を行い、マイクロ流れでの計測に成功した。

研究成果の概要（英文）：Multidimensional and multivariable combined simultaneous measurement on high Knudsen number micro flows have been studied applying the knowledge of measurement technique in rarefied gas flows, where the Knudsen numbers are also large. The molecular tagging velocimetry using the laser induced fluorescence was developed for rarefied and mini-scale internal gas flows, and was applied to micro gaseous flows. The ordered molecular film sensors for pressure, temperature, and concentration measurement were investigated, and the pressure-sensitive molecular film was successfully applied to micro gas flows.

交付決定額

(金額単位：円)

	直接経費	間接経費	合計
2009年度	27,100,000	8,130,000	35,230,000
2010年度	5,600,000	1,680,000	7,280,000
2011年度	4,000,000	1,200,000	5,200,000
総計	36,700,000	11,010,000	47,710,000

研究分野：希薄気体力学

科研費の分科・細目：機械工学・流体工学

キーワード：流体計測, 高クヌッセン数流れ, マイクロ流れ, 同時計測, レーザー誘起蛍光法, 感圧・感温塗料

## 1. 研究開始当初の背景

現在, MEMS/NEMS(Micro/Nano Electro-Mechanical Systems)に代表される微細加工技術に基づくシステムが注目を集め, 医療応用などの身近な分野でも革新的な技術となることが期待されている。そのため, マイクロ流れの解析に関しても数値シミュレーションを中心に数多く報告されている。現在一

般に呼称されているマイクロ流れは, 液体流れ, ないしサブ mm スケールであるために, 通常の流体力学により扱える範囲である。しかし, 将来的な MEMS/NEMS においては気体流れの利用やより小さなスケールとなることが容易に予想される。このような流れにおいては, 流体を構成する分子同士の衝突が起こる平均的な距離である平均自由行程が

系の代表長さに比べて無視できなくなり、通常の連続体を仮定した流体力学を適用できない。平均自由行程の系の代表長さに対する比である無次元数をクヌッセン数と呼ぶが、微小スケールにおいては系の代表長さの小ささ故にクヌッセン数の大きい高クヌッセン数流れとなり、原子・分子の運動の影響を強く受けることになる。

高クヌッセン数マイクロ流れでは、マクロ領域では無視しても問題ない内部自由度の非平衡現象など特異な物理現象によって、マクロ領域から推定される結果とは大きく異なる可能性がある。そのため、流れ場及び固体表面近傍における原子・分子オーダーでの理解を通してこれらの特異な物理現象の解明を行うことがナノテクノロジーの将来を決める大きな課題である。また、このような流れに対する数値解析が数多くされているものの、解析結果に対して実験結果による検証が必要不可欠であることから、精緻な実験データが非常に重要である。しかし、実験的計測は数値解析ほど進展していないのが現状である。そのため、高クヌッセン数流れに関連した高精度な実験手法の開発、特に流れ場全体にわたる多次元多変量複合同時計測の実現が必要不可欠であり、その実験的な精緻データの取得がナノテクノロジーの進展に大きく寄与するものと考えられる。特に、高クヌッセン数マイクロ流れでは、系のスケールそのものが絶対的に小さいことにより実験的計測そのものが困難である。そのため、計測手法としては、原理的に原子・分子レベルの詳細な情報が必要であり、非接触で分子の内部状態や非平衡現象までも計測可能な光計測が有望であると考えられる。また、高クヌッセン数流れにおいては、速度滑りや温度飛躍といった現象が知られており、流れ場の物理量を外挿しても壁面の物理量と一致しないことが知られている。そのため、流れ場の総合的な解明においては、流れ場の空間での情報と壁面における情報の両方が必要不可欠である。そのため、これらを同時計測できる手法が望まれる。

高クヌッセン数流れとしては、上述のようなマイクロ流れだけではなく、平均自由行程が系の代表長さに対して大きい希薄気体流れも分類され、航空宇宙分野、真空工学、半導体製造プロセスなどを対象として長い間研究が進められてきた。そのため、高クヌッセン数マイクロ流れの解析に対しては同じ高クヌッセン数流れという相似性を利用した希薄気体流れの知見の応用が期待できる。実際、高クヌッセン数マイクロ流れの数値解析に関しては、希薄気体流れに対して開発された直接シミュレーションモンテカルロ(DSMC)法などの手法が利用されており、その知見は有用である。

## 2. 研究の目的

希薄気体流れを中心とした高クヌッセン数流れの実験的解析を推し進めてきた知見を最大限に利用し、高クヌッセン数流れとなるマイクロ流れに適用可能な多次元多変量複合同時計測手法の開発を行い、流れ場の総合的解明の実現を本研究の目的とする。

高クヌッセン数マイクロ流れにおける実験的計測手法には、非接触、非侵襲であること、そして分子スケールの情報を得られる手法であることが必要であるため、測定手法の選択肢が非常に限られる。そこで、同じ高クヌッセン数流れである希薄気体流で利用されている計測手法の改良を通して実現を試みる。まず、速度、温度場計測に関しては顕微鏡下でのレーザー誘起蛍光法(LIF: Laser Induced Fluorescence)を利用した分子タギング速度・温度同時計測(MTV/MTT: Molecular Tagging Velocimetry/Thermometry)法を開発する。この手法はレーザーによる気体分子のパターン状の発光の形状変化及び強度変化より速度や温度を測定する手法である。希薄気体流れにおいては、LIFは広く利用されているものの、分子タギング法の概念を導入した事例はほとんどなく、非常に斬新である。同時に表面近傍の情報に関しては、Langmuir-Blodgett(LB)法による高秩序分子膜を用いた感圧・感温分子膜(PSMF/TSMF: Pressure/Temperature Sensitive Molecular Film)による圧力・温度同時計測を実現する。さらにこの技術を混合、分析や化学反応を伴う流れ場に適用可能な濃度センサへ発展させる。これらより空間の速度、温度分布、壁面における圧力、温度、濃度分布の多次元多変量複合同時計測法を確立する。手順としては、すでに実績と知見の多い希薄気体流れにおいて計測手法の要素開発を行い、クヌッセン数の相似性により得られた知見を活用して高クヌッセン数マイクロ流れへと適用する。

## 3. 研究の方法

### (1)分子タギング計測法の開発

まず、分子タギング速度・温度同時計測法(MTV/MTT)の開発を実施する。分子の可視化手法にはLIFを利用し、実績を有する希薄気体流れを用いて検証後、顕微鏡下におけるマイクロ流れへと適用する。併せて画像処理法や解析ソフトウェアも検討する。

具体的には、LIFの可視化に利用可能な分子種としては既にいくつか知られているが、希薄気体流れの知見より作動流体として空気を想定し、構成分子である酸素や窒素と質量の差が小さく、質量分離が生じにくいと考えられる一酸化窒素(NO)を選択する。MTV/MTTにおいては、レーザーによりパル

的にドットないし格子状のパターンに分子をタグ付けし、そのタグ付けした分子を可視化してパターンの位置や強度の時間的変化を追跡することで速度や温度を取得する。まずはタグ付けに用いるレーザーをビーム上により直線状のパターンを用いて計測を試みる。また併せて画像処理法や解析ソフトウェアの開発も実施する。希薄気体流れでも知見が多い超音速自由噴流場に適用することにより、計測結果の妥当性の検証を行う。

その後、高クヌッセン数マイクロ流れへの適用を目指し、まずマイクロスケールにおいて LIF を実施するためのシステム構築を行い、実際に可視化計測を行う。マイクロスケールにおける LIF が実現した後に、希薄気体流れでの知見を応用しながら高クヌッセン数マイクロ流れにおける MTV/MTT の実現を試みる。測定対象は、まず静止平衡状態から始め、ベンチマークとなるようなシンプルな形状の流路へと発展させる。

## (2)高秩序分子膜センサの開発

感圧塗料(PSP: Pressure Sensitive Paint)は原理的に高クヌッセン数マイクロ流れの計測に適しているものの、膜厚が流れ場のスケールに対して厚い、色素分子の凝集により流れ場に対して十分な空間解像度を得ることができない、などの問題が知られており、そのままマイクロ流れには利用できない。そこで、LB 法により高秩序な分子膜構造を持つ PSMF/TSMF の作成を行う。基礎特性の評価は、既存の知見を活かして高い圧力、温度感度を持つ発光分子を採用して、圧力、温度感度を調査し、適切な発光分子を選定する。さらに、膜の表面粗さや均一性を調査する。なお、PSMF/TSMF は酸素のみならず NO に対しても応答することが知られており、MTV/MTT との同時計測が可能であることが期待できる。なお、圧力、温度及び濃度の同時計測においては発光分子の発光の波長が重なり合わないよう特性調査の結果を踏まえ発光分子を適切に選択する必要がある。

その後、PSMF を用いて濃度センサとしての開発も試みる。PSP は原理的に分子数密度を用いて圧力を測定しているため、濃度そのものを測定することも可能であると考えられる。そのため、濃度に対する定量性について理論及び実験によって詳細に検討し、測定手法の確立を目指す。また、高秩序分子膜センサを非定常現象の解明に利用できるよう、時間応答特性の調査も行う。デジタルハイスピードカメラを用いて、流動構造の変動という非定常現象を計測する。

基礎特性の調査後には顕微鏡下において高クヌッセン数マイクロ流れへの適用を行

う。

## (3)多次元多変量複合同時計測

最後に、顕微鏡下で高クヌッセン数マイクロ流れに適用可能な多次元多変量複合同時計測手法の確立を行う。

まずは、MTV/MTT 及び高秩序分子膜センサそれぞれで別々のカメラを利用することで同時計測を試みる。流路内部の計測を行う MTV/MTT は高秩序分子膜センサが塗布していない側から画像を取得し、反対側から壁面情報である高秩序分子膜センサの画像を取得することで実現を目指す。その後、光学系を導入することにより1台のカメラによる同時計測も試みる。

次に、より複雑な形状の流れ場に適用し、その適用範囲を広げる。流速の速い流れから遅い流れ、真空に近い領域から大気圧以上までの圧力範囲、室温程度から低温及び高温領域へなど、構築した計測手法の適用限界を明らかにする。

## 4. 研究成果

### (1)分子タギング計測法の開発

まず、希薄気体流れの代表例として既に多くの知見が得られている超音速自由噴流を選択し、NO を用いた LIF による可視化システムを構築した。その結果、SN 比の大きい明瞭な画像の取得に成功した。その後、分子タギング計測法として MTV を適用するために、NO<sub>2</sub> の光解離によるタグ付け手法を採用し、生成した NO をタグ付けされた分子として可視化して追跡することにより速度の計測を行える実験系の構築を行った。そして MTV により速度算出を行ったところ、誤差の範囲内で理論値と一致した。また様々な特性についての調査も実施した。特に、生成した NO の振動準位に着目し、異なる波長を用いて基底状態及び第一励起準位の NO を可視化計測し、SN 比について検討した。その結果、信号強度が高い基底状態を利用した方が良いことを明らかにした。

その後、流路壁面が存在することにより計測が困難となることが予想されたため、気体の内部流れに対する適用を行った。実験系の構築にあたっては、流路と光学系の調整をよりし易くするよう工夫を行った。流路は mm スケールの矩形流路とした。取得した画像よりタグ付けした分子の移動量を計測し、画像間の時間より速度を算出した。その結果、速度分布が理論的に想定される放物線状であり、中心軸上で理論的な速度と良く一致することを示した。また、内部流れにおいても光解離によって生成した NO は長時間安定して存在し、壁面近傍でも計測が可能であることを明らかにした。

最後に、マイクロスケールの気体内部流れ

において想定される問題点を洗い出し、感圧分子膜により圧力分布の計測が実施されたマイクロ流路に対して速度計測が行える計測システムを構築し、計測を行った。その結果、マイクロスケールにおいてもタグ付けされた分子の検出に成功した。速度算出には至らなかったものの、高クヌッセン数マイクロ流路に対して非常に有望な計測手法であることを明らかにすることができた。

## (2) 高秩序分子膜センサの開発

高秩序分子膜センサの開発においては、感圧分子膜をマイクロ気体流れに適用することで様々な特性評価を実施し、色素分子や膜形成のための高分子のみならず、分子膜の形成手法などに対しても最適化を実施し、より高精度に圧力測定が可能な分子膜センサの開発を行った。さらに、マイクロ流路やマイクロノズル内流れに適用し、数値解析などと比較することにより、その実用性を確認した。その後、流路内に障害物を有する複雑なマイクロ気体流れ場にも適用し、その実用性の検証を実施した。

また、感温塗料として利用可能な様々な色素に対して広範な基礎特性の調査を実施した。さらには、感圧塗料の濃度センサとしての利用を目指し、酸素濃度計測に対する解析についての検討を行った。そして、酸素濃度の異なる流れの混合場に適用し、解析手法を検証した。さらには非正常特性についても詳しく検証した。併せて、液体流れに適用する際の特性についても調査を実施した。

さらに、感圧塗料と感温塗料を利用した圧力・温度同時計測に関しても詳細に検討を実施し、新しい手法を用いることで同時計測が実現できることを明らかにした。

## (3) 多次元多変量複合同時計測

現状では、顕微鏡下で分子タギング計測法と高秩序分子膜センサの同時計測を実現しようとする、光学アクセスに問題があることが判明した。分子タギング計測法では2つの紫外線レーザーが必要であり、観察する波長も紫外光であるため、観察やレーザー照射のための光学窓が複数必要である。一方で高秩序分子膜センサも光学窓表面を利用するため、同じ光学窓を利用するとレーザー光による著しい劣化を避けることが困難である。

しかし、それぞれの技術が確立しており、同じマイクロ流路に対する別々の計測が実現できていることから、実験系に更なる工夫を適用することにより複合同時計測の実現が期待できることも明らかとなった。

## 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 18 件)

- ① Y. Matsuda, F. Nagashima, H. Yamaguchi, Y. Egami, T. Niimi, Unsteady 2D Measurement of Dissolved Oxygen Distribution using Luminescent Sensor Film, *Sensors and Actuators B: Chemical*, 査読有, 160, 2011, 1464-1467.  
DOI: 10.1016/j.snb.2011.07.031
- ② 新美智秀, 高クヌッセン数流れ(マイクロ気体流れに関する実験を中心として), *日本機械学会論文集 B 編*, 査読有, 77, 2011, 1168-1177.  
DOI: 10.1299/kikaib.77.1168
- ③ 松田佐, 山口浩樹, 江上泰広, 新美智秀, 感圧塗料計測における誤差評価, *日本機械学会論文集 B 編*, 査読有, 77, 2011, 1189-1200.  
DOI: 10.1299/kikaib.77.1189
- ④ Y. Matsuda, T. Uchida, S. Suzuki, R. Misaki, H. Yamaguchi, T. Niimi, Pressure-sensitive molecular film for investigation of micro gas flows, *Microfluidics and Nanofluidics*, 査読有, 10, 2011, 165-171.  
DOI: 10.1007/s10404-010-0664-6
- ⑤ 新美智秀, 高クヌッセン数流れの光計測, *日本機械学会論文集 C 編*, 査読有, 76, 2010, 1893-1895.
- ⑥ T. Niimi, H. Yamaguchi, Y. Matsuda, Experimental Analyses of High Knudsen Number Flows, *International Journal of Emerging Multidisciplinary Fluid Sciences*, 査読有, 1, 2009, 213-227.  
DOI:10.1260/175683109789686691
- ⑦ Y. Matsuda, H. Yamaguchi, T. Niimi, Extension and characterization of pressure-sensitive molecular film, *Experiments in Fluids*, 査読有, 47, 2009, 1025-1032.  
DOI: 10.1007/s00348-009-0694-6
- ⑧ H. Yamaguchi, Y. Matsuda, T. Niimi, Discussion on Measurement Mechanism of Pressure-Sensitive Paints, *Sensors and Actuators B: Chemical*, 査読有, 142, 2009, 224-229.  
DOI: 10.1016/j.snb.2009.07.022
- ⑨ 新美智秀, 山口浩樹, 松田佐, 高クヌッセン数流れのセンシング技術, *ながれ*, 査読有, 28, 2009, 217-224.
- ⑩ 松田佐, 山口浩樹, 新美智秀, 酸素感応色素を用いた混合流路内酸素濃度分布の計測 -第1報 流動様式の可視化-, *可視化情報学会論文集*, 査読有, 29, 2009, 27-33.

DOI:10.3154/tvsj.29.51

- ⑪ 松田佑, 山口浩樹, 新美智秀, 酸素感応色素を用いた混合流路内酸素濃度分布の計測 -第2報 流路形状が臨界Reynolds数に与える影響-, 可視化情報学会論文集, 査読有, 29, 2009, 51-57.  
DOI:10.3154/tvsj.29.27

[学会発表] (計 42 件)

- ① H. Yamaguchi, Experimental Study on Tangential Momentum Accommodation Coefficient in a Single Microtube, The 8th JSME-KSME Thermal & Fluids Engineering Conference (Invited), 2012.03.18-21, Incheon (Korea).
- ② T. Niimi, New Possibilities of Laser-induced Fluorescence and Pressure Sensitive Paint, Korea-Japan Joint Seminar on Measurements for Multi-scales & Multi-physics, 2011.12.02-04, Jeju (Korea).
- ③ T. Niimi, Challenge to New Measurement Techniques with LIF and PSP, Diagnostik in Verbrennungen 7 (DIV7), 2011.9.28-29, Berlin (Germany).
- ④ 亀谷知宏, 感圧・感温塗料による圧力と温度の同時計測, 日本機械学会 2011 年度年次大会, 2011.09.12-15, 東京工業大学 (東京都).
- ⑤ Y. Matsuda, Pressure-Sensitive Molecular Film for Experimental Analyses of Micro Gas-Flows, ASME 2011 9th International Conference on Nanochannels, Microchannels, and Minichannels, 2011.06.19-22, Edmonton (Canada).
- ⑥ Y. Matsuda, Development of Pressure-Sensitive Molecular Film for Measurement of Micro Gas Flows, The 3rd GASMEMS Workshop, 2011.06.09-11, Bertinoro (Italy).
- ⑦ Y. Egami, Investigation of Polymer Properties for the Enhancement of TSP Sensitivity, The 11th Asian Symposium on Visualization, 2011.06.05-09, Niigata (Japan).
- ⑧ 長島史裕, 水中溶存酸素濃度計測のための感圧塗料の開発, 日本機械学会流体工学部門講演会, 2010.10.30-31, 山形大学 (山形県).
- ⑨ 見崎亮太, 感圧色素を用いたマイクロスケール気体流れの計測, 日本機械学会 2010 年度年次大会, 2010.09.05-09, 名古屋工業大学 (愛知県).
- ⑩ 江上泰広, 感温塗料の温度感度に対するポリマ特性の影響, 第 38 回可視化情報シンポジウム, 2010.07.20-21, 工学院大

学 (東京都).

- ⑪ 松田佑, 白金ポルフィリン錯体を用いたマイクロ気体流れ計測, 第 38 回可視化情報シンポジウム, 2010.07.20-21, 工学院大学 (東京都).
- ⑫ Y. Egami, Change of TSP Properties by polymer characteristics, The 14th International Symposium on Flow Visualization, 2010.06.21-24, Daegu (Korea).
- ⑬ 長島史裕, 感圧塗料を用いた混合流路内酸素濃度分布計測, 日本機械学会流体工学部門講演会, 2009.11.07-08, 名古屋工業大学 (愛知県).
- ⑭ 松田佑, 感圧分子膜を用いたマイクロスケール気体流の圧力分布計測, 可視化情報学会全国講演会, 2009.10.24-25, 山形大学 (山形県).
- ⑮ 新美智秀, 高クヌッセン数流れの光計測, 第 1 回マイクロ・ナノ工学シンポジウム, 2009.10.15-16, タワーホール船堀 (東京都).
- ⑯ 鈴木卓, 感圧分子膜によるマイクロスケールの流れ場計測, 日本機械学会 2009 年度年次大会, 2009.09.14-17, 盛岡大学 (岩手県).
- ⑰ 松田佑, 感圧分子膜を用いたマイクロ流の圧力分布計測, 可視化情報シンポジウム, 2009.07.21-22, 工学院大学 (東京都).
- ⑱ Y. Matsuda, Pressure Sensitive Molecular Film for Measurement in Micro-Flows, 7th World Conference on Experimental Heat Transfer, Fluid Mechanics and Thermodynamics, 2009.06.28-07.03, Krakow (Poland).

## 6. 研究組織

### (1) 研究代表者

新美 智秀 (NIMI TOMOHIDE)  
名古屋大学・工学研究科・教授  
研究者番号: 70164522

### (2) 研究分担者

山口 浩樹 (YAMAGUCHI HIROKI)  
名古屋大学・工学研究科・講師  
研究者番号: 50432240  
松田 佑 (MATSUDA YU)  
名古屋大学・工学研究科・助教  
研究者番号: 20402513

### (3) 連携研究者

江上 泰広 (EGAMI YASUHIRO)  
愛知工業大学・工学部・准教授  
研究者番号: 80292283  
(H21: 研究分担者)