

## 蛍光一粒子像追跡を用いたナノすきまの流体流れの定量計測

Quantitative measurement of fluid flow in nanogaps using nanoparticle image velocimetry

名大・工（学）\*尾関 秀隆 名大・工（正）\*東 直輝

Hidetaka Ozeki\*, Naoki Azuma\*

\*Nagoya University

### 1. はじめに

材料・加工技術の高度化によって、固体二面間のすきまがこれまでのマイクロメートルオーダからナノメートルオーダ(ナノすきま)へと狭小化してきた。これにより微小なすきまでの流体の流れや潤滑が可能となり、小型化や高精度化など機械システムの性能を向上できるため、ナノすきまを有する機械システムのさらなる発展が期待される。一方で、ナノすきまにおける流体特性は粘度増加や界面スリップ発生などバルクとは異なることが示されてきた<sup>1,2)</sup>。これらは、ナノすきまにおける流体の流れや潤滑に従来のマクロすきまの流体理論を適用することが困難であることを示しており、ナノすきまを有する機械システムの設計には、ナノすきまで流体がどのように流れているかを実験的に明らかにする必要がある。一般に、流体の流速計測には、蛍光粒子を流体に混合し、顕微鏡によって蛍光像を追跡するPTV(Particle tracking velocimetry)やPIV(Particle Image Velocimetry)が用いられてきた<sup>3,4)</sup>。しかし、これまでには蛍光粒子の直径が数十  $\mu\text{m}$  から数十 nm と大きかったため、ナノすきまでは蛍光粒子と固体表面間の相互作用によって、定量的な流速計測は実現されていなかった。そこで本研究では、直径が一桁 nm の蛍光粒子である量子ドットに着目した。量子ドットは、輝度値の SN 比が大きく、混合する溶媒に合わせて表面を化学的に修飾できることから、これまでにバイオイメージング分野において用いられてきた。一方で、量子ドットを用いた PIV や PTV を固体二面間に形成されたナノすきまの流体の流速計測に応用した例は少ない。そこで本研究では、量子ドットを用いた PIV によるナノすきまの定量的な面内の流速分布計測を実現することを目的とした。量子ドットを用いた PIV の有効性を検証するため、固体二面間のすきまを狭小化した際に生じるスクイーズ流れに着目した。すきまを狭小化する制御系と蛍光顕微鏡を組み合わせた計測系を構築した。実験的に計測されたスクイーズ流れの面内の流速分布結果は、理論的に算出された面内の流速分布結果と比較することで定量的に評価された。

### 2. 実験方法

#### 2.1 実験試料と実験装置

試料としてシリコーンオイル(200 mPas)を用いた。シリコーンオイルに量子ドット溶液(蛍光波長 660 nm)を 0.5 v/v% の濃度で混合した。シリコーンオイルへの溶解性を向上するため、量子ドットの表面にはカルボキシル基が修飾されたものを用いた。シリコーンオイル中に溶解した量子ドットの直径は、動的光散乱法を用いて  $5.5 \pm 1.3 \text{ nm}$  と測定された。これは、量子ドットがシリコーンオイル内に一粒子レベルで混合されたことを示す。

ナノすきま内のスクイーズ流れの流速分布測定を実現するため、すきま制御系と顕微鏡から構築される実験装置を構築した。すきま制御系において、上記の基板として、スパッタによって表面に 100 nm 厚さのステンレス薄膜が形成された球面平凸レンズが使用された。下側の基板として、厚さ 1.0 mm のガラス基板が使用された。ステンレス成膜レンズはピエゾアクチュエータに固定され、ファンクションジェネレータを用いてピエゾアクチュエータに印加する電圧を調整することで、基板間のすきまを狭小化させた。顕微鏡系の LED 光源からの励起光は、ハーフミラー、対物レンズ、ガラス基板を通して試料に照射された。対物レンズの倍率は 60 倍とした。ガラス基板表面とステンレス膜表面からの反射光の干渉光が、蛍光フィルタによって反射され、すきま計測用のカメラへと入射され、光干渉像が観察された。一方で、量子ドットから発光された蛍光は、蛍光フィルタを通して流速計測用のカメラへと入射された。2 つのカメラの撮像を外部の入力信号によって同期することで、光干渉像と蛍光像が同時に観察された(Fig. 1)。

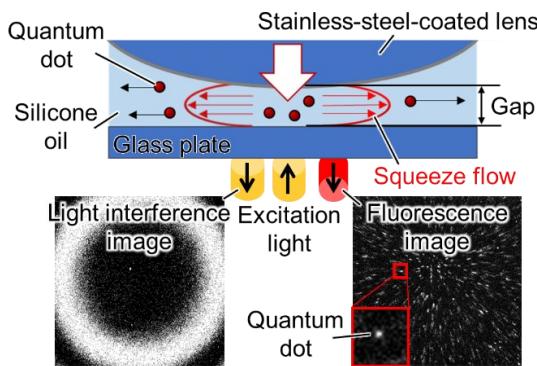


Fig. 1 Experimental setup

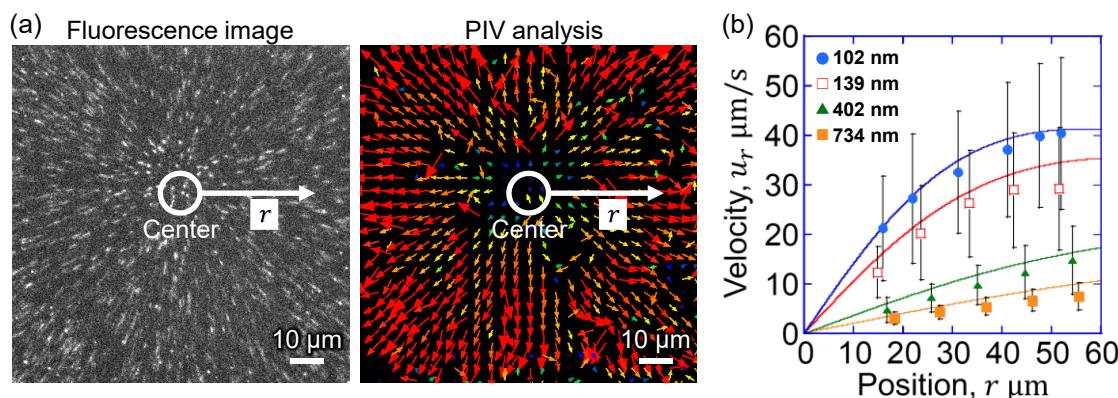
## 2.2 実験手順

ステンレス成膜レンズとガラス基板の間に量子ドットを混合したシリコーンオイルの  $20 \mu\text{l}$  が滴下された。ピエゾアクチュエータに電圧を印加し、ステンレス成膜レンズとガラス基板の間のすきまを数  $\mu\text{m}$  のすきまから接触するまで狭小化させた。すきまの狭小化速度を  $300 \text{ nm/s}$  とした。すきまを狭小化している間の光干渉像と蛍光像の時間変化を高感度カメラでそれぞれ撮影した。光干渉像と蛍光像の解析には画像処理ソフトである imageJ が用いられた。

## 3. 実験結果

Figure 2(a)にそれぞれ中心すきまが  $102 \text{ nm}$  の際に得られた量子ドットの蛍光像を示す。すきま分布は光干渉像を解析することで  $3 \text{ nm}$  精度で定量的に計測された。PIV 解析を行うことで面内の流速分布が得られた。PIV 解析結果の矢印の向きは流速の向きを示す。この結果は、 $100 \text{ nm}$  のすきまにおいても中心位置から外向きに放射線状のスクイーズ流れが生じたことを示した。他のナノすきまにおける結果についても同様の解析を実施し、実験で得られた流速値を理論結果と定量的に比較した。Figure 2(b)は、実験によって得られた流速値の半径  $r$  方向の計測結果とスクイーズ流れの理論式を用いて算出された理論結果を示しており、全てのすきまにおいて実験結果は理論結果とよく一致した。 $100 \text{ nm}$  のすきまにおける定量的な流れ分布計測を実現した例はこれまでになく、この結果は量子ドットを用いた PIV がナノすきまの流速分布の定量計測に有効であることを示した。一方で、得られた流速値は同じ半径  $r$  位置において幅を持った。この流速値の幅は流速測定の誤差によるものではなく、スクイーズ流れが深さ方向に流速分布を持ったために、量子ドットの深さ方向の位置で流速が異なったからであると考えられる。

先行研究において、流体に混合された微小粒子がすきまを流れた際の粒子と壁面との流体的相互作用を算出することで、その粒子の直径と平均流速の関係が明らかにされた<sup>4)</sup>。この結果に基づくと、 $6 \text{ nm}$  直径の量子ドットでは  $30 \text{ nm}$  のすきままでの定量的な流速計測が可能であると算出された。しかし、この理論式はマイクロ～ミリ直径の粒子を仮定しており、ナノ直径の粒子で理論的もしくは実験的に検証された例はない。スクイーズ流れでは、平均流速はすきまの狭小化速度とすきまの大きさによって決定され、流体の粘度増加や界面スリップによって変化しない。したがって、スクイーズ流れを用いた評価は、面内の流速分布の実験結果を理論結果と比較することで、使用された蛍光粒子の直径がどのすきままで定量的に計測できるかを評価できると考えられる。



**Fig. 2 Experimental results of PIV using quantum dots. (a) Fluorescence image and PIV analysis result, (b) Flow velocity distribution in  $r$ -direction obtained from PIV results**

## 4. おわりに

本研究では、量子ドットを用いた PIV によって、固体二面間のナノすきまの面内の流速分布の定量計測を実現した。すきまの狭小化によって生じるスクイーズ流れに着目し、得られた実験結果を理論的に算出された結果と比較し、流速分布の計測結果を評価した。量子ドット用いた PIV によって、 $100 \text{ nm}$  のナノすきまにおけるスクイーズ流れの面内の流速分布を定量的に得ることに成功し、量子ドットを用いた PIV がナノすきまの流速分布の定量計測に有効であることを示した。ナノすきまの定量的な流速分布計測法は、ナノすきまを有する機械システムの理論設計や動作検証に役立つだけでなく、ナノすきまにおける特有な流体流れや潤滑現象の解明のためにも利用できることが期待される。

## 文献

- 1) S. Itoh, Y. Ohta, K. Fukuzawa & H. Zhang: Enhanced viscoelasticity of polyalphaolefins confined and sheared in submicron-to-nanometer-sized gap range and its dependence on shear rate and temperature. *Tribol. Int.* 120 (2018) 210.
- 2) S. L. Han, F. Guo, J. Shao & Q. H. Bai, L.L. Han: On the velocity profile of Couette flow of lubricant within a micro/submicro gap. *Tribol. Lett.* 67 (2019) 114.
- 3) V. Strubel, S. Simoens, & P. Vergne et al.: Fluorescence tracking and  $\mu$ -PIV of individual particles and lubricant flow in and around lubricated point contacts. *Tribol. Lett.* 65 (2017) 75.
- 4) Y. Kazoe, K. Iseki, K. Mawatari & T. Kitamori: Evanescent wave-based particle tracking velocimetry for nanochannel flows. *Anal. Chem.* 85 (2013) 10780.