

ナノすきま内流速分布計測に向けた一桁 nm 深さ分解能の蛍光粒子位置特定

Identification of depth position of fluorescent particle for velocity distribution measurement in a nanogap

名大院・工（学）*尾関 秀隆 名大・工（正）東 直輝 名大・工（正）福澤 健二

名大・工（正）伊藤 伸太郎 名大・情（正）張 賀東 名大・工（正）宋 玉玺

Hidetaka Ozeki*, Naoki Azuma*, Kenji Fukuzawa*, Shintaro Itoh*, Hedong Zhang*, Yuxi Song*

*Nagoya University

1. はじめに

近年、表面加工技術の発展によって加工面の平滑さが向上し、互いに相対運動（しゅう動）する機械部品間のすきまが狭小化してきた。特に、自動車エンジンや EV の駆動部においては粘性摩擦の低減のために低粘度潤滑油が使用され、潤滑油の発生する圧力の低下によって油膜厚さが薄くなり、要素間のすきまはナノメートルオーダへと狭小化している。一方で、ナノメートルオーダのすきま（ナノすきま）では、潤滑油の粘度がバルクと比べて増大することや、固体と液体の界面でスリップが発生することなど、マクロすきまと異なる特有の流体特性が生じることが報告されてきた^{1,2)}。このため、ナノすきまでは、すきま内を流れる潤滑油の流速分布をマクロの流体理論で予測することが困難であり、垂直力や摩擦力等の所望の機械特性を得るための潤滑設計が難しい。そこで、ナノすきまの潤滑設計のためには、ナノすきま内を流れる潤滑油の流速分布を計測し、界面スリップ等の特有の流体特性を量量化する必要がある。

流速分布の計測には一般に蛍光追跡が用いられる。この方法では、潤滑油中に混合した蛍光粒子の流れとともに移動する様子を顕微鏡を用いて追跡し、粒子の流れ方向の変位から流速を測定する。また、粒子の壁面からの深さ方向の位置を特定し、各深さ位置での流速を計測することで流速分布が得られる。しかし、これまでに用いられてきた蛍光粒子は直径が数十 nm～数 μm のものであり^{3,4)}、このような大きな粒子では壁面との相互作用の影響が大きく、ナノすきまでは定量的な流速計測が困難であった。また、深さ位置の特定には、励起光が固液界面で全反射したときに生じるエバネッセンント場が用いられてきた。この方法では、光強度が壁面からの距離に対して指數関数的に減衰することを用いて、蛍光粒子の光強度にもとづいて 10 nm オーダの分解能で深さ位置が計測された³⁾。しかし、エバネッセンント場の減衰長は数百 nm であるため、ナノすきまでは反対側の壁面での反射によって光強度分布が変化する。また、ナノすきま内の流速分布を定量的に計測するためには、さらに高い一桁 nm の深さ位置特定分解能が必要である。我々は、これまでの研究で、ナノすきま内の定量的な流速計測のため、一桁 nm 直径の蛍光粒子である量子ドットを用いた蛍光追跡による流速計測を実施し、100 nm レベルのナノすきまにおいてスクイーズ流れの流速の定量計測を実現してきた⁵⁾。そのため、ナノすきま内の量子ドットの深さ位置を一桁 nm 分解能で特定することができれば、量子ドットを用いた蛍光粒子追跡によってナノすきま内の流速分布計測を実現できる。そこで、本研究では、ナノすきま内の量子ドット一粒子の深さ位置を蛍光干渉を用いた新しい原理によって特定する手法を提案し、量子ドットの一桁 nm 分解能の深さ位置特定の実現性を検証することを目的とした。

2. 実験方法

潤滑油試料として、シリコーンオイル 200 mPa・s を用いた。直径 6 nm の量子ドット（蛍光波長 665 nm）を濃度 0.8 v/v% でシリコーンオイルに混合した。Figure 1 に示す実験装置を用いて、ナノすきまでの量子ドットの蛍光観察を行った。上側基板としてステンレス膜成膜した球面レンズを、下側基板としてガラス基板を使用した。上側基板は治具を介して深さ方向に駆動可能なピエゾアクチュエータに固定されており、基板間のすきまをナノオーダの精度で制御できる。すきまに試料を滴下した後に、励起光（波長 460 nm）を照射することで、上下基板表面からの光干渉像と、量子ドットからの蛍光像を対物レンズを通して観察した。光干渉像と蛍光は、同期された 2 台のカメラによって同時に取得した。

量子ドットの深さ位置特定のため、蛍光の干渉を用いる手法を着想した。ナノすきま内で蛍光粒子が発する蛍光は、上部の金属表面からの反射光と干渉する。そのため、量子ドットの深さ位置 z が変化すると、上面の金属板との距離 d が変化するため、量子ドットの発する蛍光（蛍光 1）と上面で反射した蛍光（蛍光 2）の干渉条件が変化する。したがって、量子ドットの深さ位置 z と蛍光強度 I の関係を取得することで、蛍光強度 I から深さ位置 z を特定する

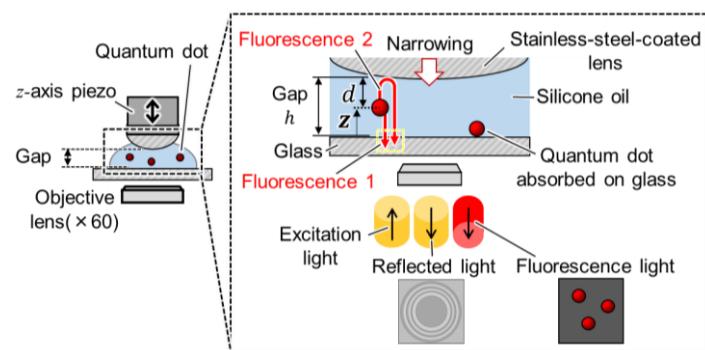


Fig. 1 Experimental setup for measuring the fluorescent intensity of quantum dot with the gap size.

ことができる。本研究では、この手法の実現性の検証と深さ位置特定分解能の評価のため、下面基板に吸着した量子ドットの蛍光強度 I と上面との距離 d の関係を取得した。

3. 実験結果と考察

Figure 2(a)に、すきまを狭小化したときの、下側基板に吸着した量子ドットの蛍光画像を示す。すきまの大きさ (= 上面との距離 d) は、同時に撮像された光干渉像から数 nm 精度で計測された。量子ドットと上面との距離が変化するにつれて、検出される蛍光強度が変化した。そこで、基板に吸着した量子ドットの蛍光強度 I と上面との距離 d の関係を計測した (Fig. 2(b))。量子ドットの直径は 6 nm であり小さいため、Fig. 2(b)ではすきまの大きさを量子ドットの上面との距離 d とした。また、蛍光強度 I の大きさは、量子ドットが存在しない領域の背景輝度値を引いた後に最大の輝度値で除することで正規化した。Figure 2(b)に示すように、すきまと蛍光強度の関係は、光干渉が生じた際に観察される \cos 関数型の曲線に似ており、量子ドットの蛍光干渉が生じたと考えられる。

Figure 2(b)内の実線は、上面との距離が 0~90 nm の領域における実験結果の近似曲線であり、これを本系の蛍光強度 I と上面との距離 d の校正曲線とした。近似曲線はすきまに対する二次多項式として表された。次に、Fig. 2(b)の蛍光強度 I と上面との距離 d の関係を、蛍光強度 I と深さ位置 z の関係に変換した。ここでは、すきまを $h_s = 90$ nm とし、上面との距離 d を深さ位置 z に変換することで蛍光強度 I と深さ位置 z の校正曲線を得た (Fig. 2(c))。この曲線の逆関数 $z = z(I)$ をとることで、蛍光強度 I から深さ位置 z を算出することができる。また、Fig. 2(b)の近似曲線に対する実験結果の標準偏差 σ は 0.035 であった。深さ位置 z における深さ方向の位置特定の分解能は、近似曲線の位置 z での傾き dI/dz を用いて $\sigma \cdot (1/(dI/dz))$ nm と表される。そこで、 $z = 20, 40, 60, 80$ nm の深さ方向の位置特定分解能は平均で 5 nm であると算出され、量子ドットの蛍光の干渉を用いた深さ位置特定は一桁 nm の分解能で深さ位置を特定できる可能性が示された。

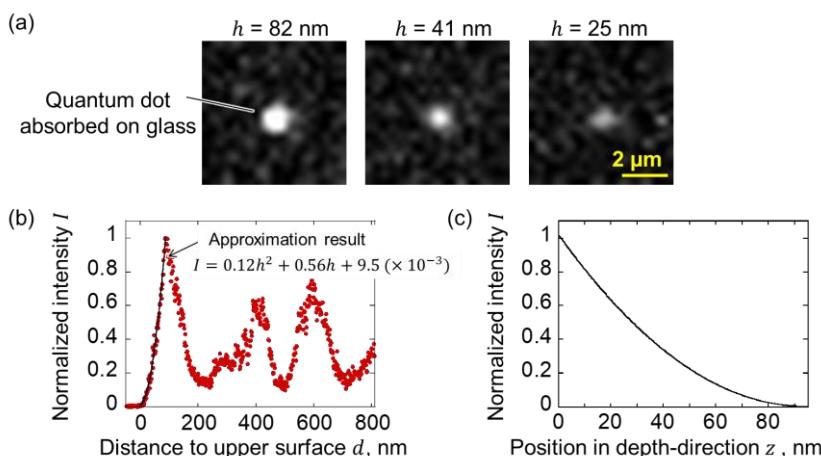


Fig. 2 Experimental results. (a) Fluorescent images of quantum dot absorbed on glass with gap narrowing, (b) Relationship between fluorescent intensity I of quantum dot and its distance from upper substrate (SUS) d , and (c) Relationship between position in depth-direction of quantum dot and its fluorescent intensity in 90-nm-gap.

4. おわりに

本研究では、ナノすきま内の流速分布計測の実現に向けて、ナノすきま内の量子ドットの蛍光干渉を用いた量子ドットの深さ位置特定手法を提案した。すきまと蛍光強度を同時に計測可能な実験装置を用いて、量子ドットの蛍光強度と深さ位置の関係を実験的に取得した結果、平均 5 nm の分解能で深さ位置を特定できる可能性が示された。本研究で提案する深さ位置特定と蛍光追跡による流速測定を組み合わせることで、ナノすきま内の流速分布の定量計測が可能である。流速分布計測と計測の評価は今後の検討課題である。

文献

- 1) S. Itoh, Y. Ohta, K. Fukuzawa, and 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, 210 (2018).
- 2) C. D. F. Honig and W. A. Ducker: Squeeze film lubrication in silicone oil: Experimental test of the no-slip boundary condition at solid-liquid interfaces. *J. Phys. Chem. C* 112, 44 (2008).
- 3) Y. Kazoe, K. Iseki, K. Mawatari, and T. Kitamori: Evanescent Wave-Based Particle Tracking Velocimetry for Nanochannel Flows. *Anal. Chem.* 85, 10780-10786 (2013).
- 4) V. Strubel, S. Simoens, and P. Vergne et al.: Fluorescence Tracking and μ -PIV of Individual Particles and Lubricant Flow in and around Lubricated Point Contacts, *Tribol. Lett.* 65, 3 (2017).
- 5) N. Azuma, H. Ozeki, and K. Miki, S. Itoh, H. Zhang: Quantitative Measurement of Squeeze Flow Distribution in Nanogaps by Particle Image Velocimetry Using Quantum Dots, *Tribol. Lett.* 71, 4 (2023).