

ニオイ情報通信技術の確立に資する多次元ガスセンシング手法の開発

代表研究者 柴 弘太 □ 物質・材料研究機構 機能性材料研究拠点 主任研究員

1 概要

流体の粘度を測定することはその特性を判定する点で非常に重要であり、例えば流体が何であるかを同定するためにも使用できる。気体と液体の一方の粘度を測定するための技術は多数存在するが、気体と液体とは通常、その性質に著しい差があり、それゆえに両者の粘度の値には大幅な差異が存在する。こうした理由から、単一の方法で気体と液体の両方の粘度を測定するのは非常に困難である。本稿では、我々が開発した、気体・液体に関わらず任意の流体の粘度を測定するための簡便な手法について紹介する。本手法では、任意の流体を柔軟な材料で作製した微小な流路（マイクロ流路）に導入する。この際、流体を導入するために印加する圧力によりマイクロ流路壁面がわずかに変形し、この変形が流体の粘度に依存することを見出した。この流れが誘起する変形は、ひずみゲージをマイクロ流路の直上に、流路に直交する形で包埋することにより、ひずみとして測定した。出力されるひずみは流れ誘起の変形の二乗に比例するため、単に変形を測定するより流体粘度を鋭敏に反映する。これにより、気体および液体を各々の粘度に基づき、同一の手法によって精密に識別することが可能となった。

2 緒言

日常生活やその他の面で最もありふれた流体の特性は粘性である。例えば我々は、水は粘度が比較的小さく、はちみつは粘度がかなり大きいことを経験的に知っている。気体も粘性を有するが、その値は液体のものよりもはるかに低い。したがって、我々は異なる気体の間の粘度の違いを、水とはちみつのように簡単に識別することはおろか、その粘度を認識することすらできない。具体的な粘度の値は、気体については $10^{-6} \sim 10^{-5} \text{ Pa}\cdot\text{s}$ 、液体については $10^{-4} \sim 10^8 \text{ Pa}\cdot\text{s}$ という極めて広い範囲で変化する。^{1, 2} その結果、粘度の値を求めるためには多数の異なる解析技法が使用されている。例えば、液体の粘度測定には回転式粘度計が標準的な測定法として採用されており、これを使用して試料を攪拌することで粘度の値を得ることができる。この測定装置は $10^{-3} \sim 10^6 \text{ Pa}\cdot\text{s}$ という広い粘度範囲をカバーすることができ、したがって多くの異なる液体に適用できる。これとは対照的に、気体粘度の測定には回転式粘度計のような標準手法は無く、多くの異なる方法が使用されている。このような方法としては、毛細管中の圧力の差分を測定すること、³⁻⁸ 落下する物体の粘性抵抗を測定すること、⁹ 円盤の振動の減衰を測定すること、¹⁰⁻¹⁴ 光の散乱を測定すること、¹⁵ 回転する浮遊円盤の速度の変化を測定すること、¹⁶ 光の吸収を測定すること、¹⁷ 水晶振動子や微小カンチレバーのような振動する物体の共振周波数のシフトを測定すること、¹⁸ 管に流体を流すことでその粘性により管の内壁に印加される流れ方向の力やこの力による管の伸びを測定すること^{19, 20} などがある。しかしながら、同じ装置を使用して気体と液体の両方の粘度を測定するために適用できる手法はわずかしかない。両方のタイプの流体の粘度を測定した一つの例は、微小カンチレバーを使用してこれを波動伝搬解析と組み合わせることである。²¹ それでもなお、気体測定のためにはナノスケールの厚さの微小カンチレバー、また液体測定のためにはマイクロメートルスケールの厚さの微小カンチレバーという、寸法の大きく異なる複数の微小カンチレバーが必要とされる。その結果、液体用と気体用とに別々の装置を使用しなければならない。他の例は、ガラス毛細管を使用して異なる相の水（すなわち液体および蒸気）の粘度を観測するというものがある。²² これらの測定は数 10 MPa という高い最大圧力に加え、数 100 kPa から始まる広い圧力範囲をも必要とするので、高圧ポンプおよび高性能の圧力トランスデューサを使用することが必須となる。気泡流、スラグ流、また環状流のような気体および液体という 2 つの相を含む流れは、粘度測定のための標準的な技術を使用して解析することができるが、これらの流れの性質は流れ中の連続相によって支配され、流れ全体の粘度は液体の粘度の方に類似したものとなる。非常に挑戦的なことは、上述のようにきわめて広範囲に分布する粘度の両極端を、単一の装置を使用して測定することである。気体は、回転式粘度計のような液体粘度を測定するための既存の技術で測定するには拡散性が大きすぎる。他方、液体は気体用に用いられている既存の手法によ

て粘性依存のパラメータの変化の大きさを測定することは困難である。なぜなら、気体用に設計された構成を大きく変更したり複雑化したりすること無しには、通常は液体の粘度が大きすぎるのである。気体と液体の両方の粘度を測定できる単一の装置は、非常に小さな気体粘度からそれらよりも大幅に大きな液体の粘度までの広大な範囲の粘度を調べることができなければならない。既に述べたようにこれは大変難しいことなのだが、このような装置があれば、気体、液体またこれらの混合物等のいかなる流体の測定が、構成の変更無しで可能となり、これにより例えば粘度に基づいた任意の流体の同定を実現することができる。

本稿では、著者らが開発することに成功した、単一の装置のみで広いダイナミックレンジにわたって粘度を測定可能な手法について述べる。この手法は、例えばポリジメチルシロキサン (PDMS) などの柔軟な材料で設計されたマイクロ流路を用いて、任意の流体が上記流路内を通過する際に生じる流路壁の機械的変形を測定することにより実現される。ここで当該変形は流体流れを駆動するための圧力に比例するが、この圧力は流体の粘度に比例する。したがって、流路変形を測定することにより粘度を見積もることが可能となる。本研究では、マイクロ流路の直上に、流路を横切る形でひずみゲージを埋め込むことで、流れによって引き起こされる流路壁のひずみを流路の変形として測定した。実証実験には、気体として二酸化炭素 (CO₂)、窒素、空気、ヘリウム (He) およびアルゴン (Ar)、液体としてメタノール (MeOH)、水、イソプロピルアルコール (IPA) および 4 通りの異なる濃度のメタノール水溶液を用いた。

3 コンセプト

流体の粘度を測定するための一つの標準的な方法は、流体を既知の形状の剛直な流路を通して流すために必要となる圧力降下 p を測定することである。この際、流体の粘度 μ は圧力降下 p に比例することが知られている (つまり、 $p \propto \mu$)。この方法は流路が変形可能である場合にも適用可能である。ただし、上記関係は非線形、すなわち $p \propto \mu^n$ ($n = 0.25$ 以下)²³⁻²⁵ となる。ここで、流路が剛直な場合と比べて n の値が小さいので、粘度 μ の微妙な変化が圧力降下 p に与える影響はあまり大きくない。すなわち、この方法では粘度の違いに対する感度は限定されたものとなる。

そこで、本研究ではこれとは別の測定原理を採用した。具体的には、前述のように PDMS 製の変形可能な流路を使用するのだが、圧力降下 p ではなく流路内の流体の圧力による流路の変形それ自体を測定する。この流路の変形を求めるには、例えば流路の内壁に生じるひずみを、ひずみゲージ等を用いて測定すればよい。この測定の具体例を示す図 1 では、断面が矩形の PDMS 製流路を使用し、この流路のすぐ上にあって流路に交差する形で埋め込まれたひずみゲージを使用して、流れにより引き起こされる流路の変形 Δh を測定している。ここで、ひずみゲージと流路の間には薄い PDMS の層が存在し、これによりひずみゲージは流体から分離されていることに注意されたい (当該 PDMS 層が非常に薄いため、図 1 では示していない)。後で詳述するように、ひずみ ε (ここではひずみゲージ中の検知部の長さの変化、すなわち図 1 (c) の上半分にあるループ状の線路の上下方向の伸び) は Δh^2 に比例し、変形 Δh は流量にかかわらず圧力降下 p に比例する。これにより、気体から液体までの非常に広い範囲にわたって、高精度で流体の粘度を測定することができる。

4 結果と考察

4-1 気体の測定

まず、上記マイクロ流路を用いて、いくつかの気体 (具体的には CO₂、N₂、空気、He および Ar) を、流量 10 mL/min で測定した結果を図 2 に示す。ひずみゲージの出力電圧は、図 2 (a) に示すように、流れの有無および気体の種類に依存する。各気体についての出力はそのピーク電圧により特徴付けられる (図 2 (b) に示すグラフではピーク電圧を出力電圧 e_{out} としてプロット)。このピーク電圧は下式に示すようにひずみ ε に比例する：

$$e_{out} = \frac{e_b K_s}{4} \cdot \varepsilon \quad (1)$$

ここで e_b はブリッジ電圧 (2.5 V)、また K_s はひずみゲージのゲージ率 (2.11) である。測定されたひずみは、

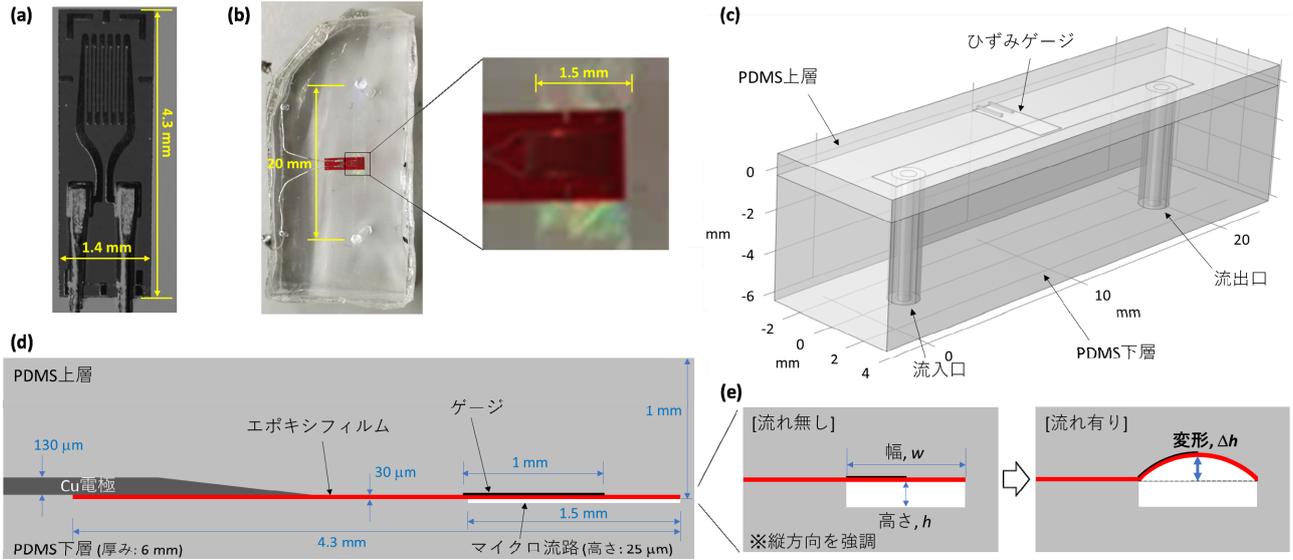


図1 (a) 本研究で用いたひずみゲージの光学顕微鏡像。(b) PDMS で作製したマイクロ流路の写真、およびその部分拡大写真。右側部分に示す部分拡大写真は、流路直上に埋め込まれたひずみゲージを示している。(c) マイクロ流路((b)に示すものと同寸法)の3D 構造図。(d, e) マイクロ流路の直上にあつて流路に交差する形で配置されたひずみゲージの断面構造図。(e) に示す部分拡大断面構造図は、流れが無い場合(左側)および流れが有る場合(右側)のマイクロ流路の様子を示している。

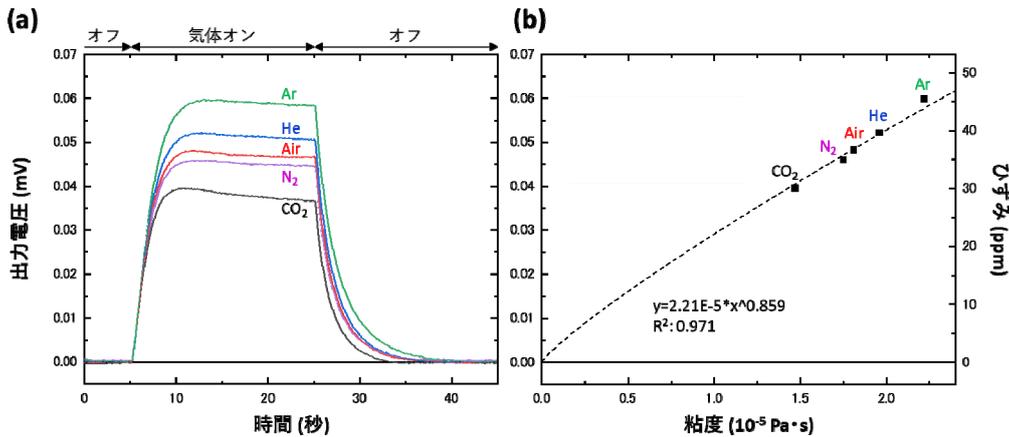


図2 (a) 5種類の気体(すなわちCO₂、N₂、空気、HeおよびAr)を流量10 mL/minにて断続的に流した場合に、マイクロ流路直上に埋め込んだひずみゲージから得られる出力電圧の時間変化を示す図。(b) (a)に示す出力電圧を、各々の気体の粘度の関数としてプロットした図。この図においては、その右側縦軸に出力電圧に対応するひずみの大きさも示す(出力電圧とひずみとは比例関係にある)。また、これら5つのデータ点をべき乗則関数でフィッティングして図中に破線で示す。フィッティング結果の式は図中の左下寄り領域中に示す。

図2 (b) に示すように、粘度 μ に比例する。このデータはべき乗則関数 $e_{out} \propto \mu^m$ (ここで $m = 0.859$ 、図2 (b) のグラフ中の左下寄りの領域に記載されたフィッティング結果の式を参照) で良好に記述される。したがって、この変形可能なマイクロ流路は気体粘度の高感度な測定を実現する。

上記の詳細なメカニズムを調べるため、図1に示すマイクロ流路を対象とした有限要素解析(Finite Element Analysis; FEA)を行った。この解析により、各種気体流れがひずみゲージの変形にどのように影響するかを詳細に調べることができる。ここで、気体の流量は実験と同じ10 mL/minに設定し、粘度のみを変更してマイクロ流路の変形およびその結果としての流路内壁の変形量である流路内壁(ここでは矩形の流路

断面の上側の長辺に対応する内壁)の上方(この内壁の表面に垂直な方向)への変位 Δh を調べた。FEAを行うにあたっては、実際の測定に使用した5種類の気体に加えて、他の一般的な気体であるプロパン(C_3H_8)、エタン(C_2H_6)、水素(H_2)、メタン(CH_4)および二酸化硫黄(SO_2)に相当する粘度も追加した。これらの気体も含めることにより、一般的な気体の大部分に相当する広い範囲の粘度をカバーすることができる。FEAシミュレーションの結果、マイクロ流路の変形の程度は、図3(a)から分かるように、気体の粘度に依存する。したがって、変形 Δh を測定することにより、気体の粘度を判定することができる。この依存性は、図3(b)に示すように、べき乗則 $\Delta h \propto \mu^n$ (ここで $n = 0.434$)によって良好に記述される。

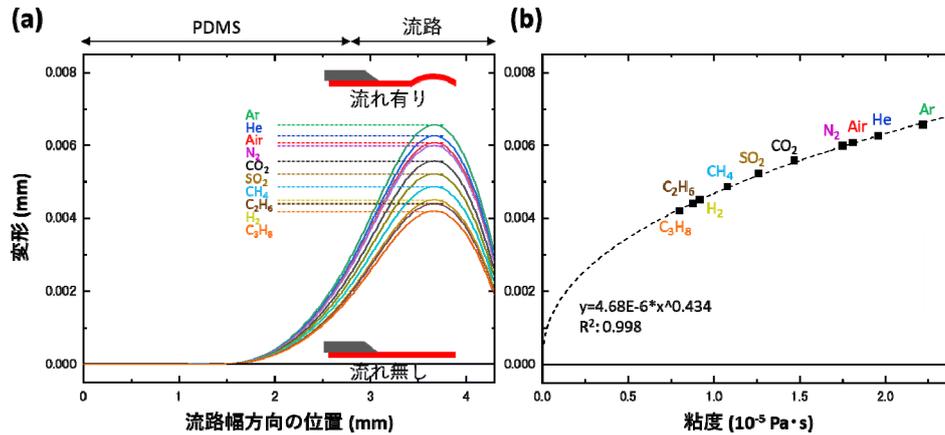


図3 (a) 粘度が互いに異なる10種類の気体(すなわち C_3H_8 、 H_2 、 C_2H_6 、 CH_4 、 SO_2 、 CO_2 、 N_2 、空気、HeおよびAr)を流量10 mL/minにて流した場合における、マイクロ流路直上に埋め込まれたひずみゲージの断面プロファイルについてのFEA結果を示す図。ひずみゲージの変形はマイクロ流路の幅に沿った位置の関数としてプロットされている。淡灰色で網掛けした2.8 mm~4.3 mmの位置は、ひずみゲージの1 μ m下にマイクロ流路が存在している領域である。図には比較のため、気体を流していない状態での断面プロファイル(変形の大きさが0.000 mmの直線)も示している。(b) 上記10種類の気体について、変形を粘度の関数としてプロットした図。これら10個のデータ点をべき乗則関数でフィッティングした結果を破線として示す。また、フィッティング結果の式を図中の左下寄り領域中に示す。

上記FEAの結果を実際の測定結果と比較するため、シミュレートされたマイクロ流路の変形に伴ってひずみゲージから得られるであろう出力電圧を見積もる。このひずみゲージ中でひずみの検出部、すなわち図1(a)中に示されたループ状の線路、は図1に概略的に示すようにマイクロ流路上でその幅 w のほぼ半分まで伸びている。もちろん、ひずみの検出部が覆う範囲はこれに限定されるものでなく、必要に応じて適宜定めることができる。以下では、この検出部が流路幅 w のちょうど1/2の長さであるとして解析を進める。流路幅に比べて内壁の変位が小さい場合、すなわち $\Delta h \ll w$ が成立する場合には、テイラー展開を使用してひずみゲージ上のひずみ ε を下式のように表すことができる。

$$\varepsilon \sim \frac{2}{w^2} \cdot \Delta h^2 \quad (2)$$

式(2)の導出の詳細は図4に示す。 $\Delta h \propto \mu^n$ であるので、出力電圧も粘度への依存性を示す。すなわち、 $e_{out} \propto \mu^{2n}$ となり、したがって $m = 2n$ となる。この関係を用いることで、図5に示すように、シミュレートした結果が測定データと非常によく一致することが分かり、両者は指数 $m = 0.859$ である、粘度についてのべき乗則を示す。

ここで、本研究で得られた実験データを同じ温度(20 $^{\circ}$ C)で得られたものとして先行文献で報告されているデータと比較したグラフを図6に示す。同図において、Igarashiら、Meijerら、およびZhangらはそれぞれ参考文献7、8および15である。マイクロ流路を利用した本手法で求めた粘度は既知の粘度の値とよく一致している。他方、上記文献で報告された粘度の値は場合により多少のずれが見られる。これにより本手法の信頼性が示唆される。

$\Delta h \ll w$ であれば、

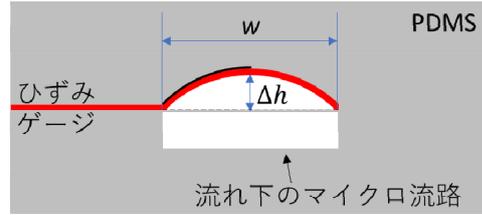


$$l^2 = l_0^2 + \Delta h^2$$

$$= l_0^2 \left(1 + \frac{\Delta h^2}{l_0^2} \right)$$

$$l = l_0 \left(1 + \frac{\Delta h^2}{l_0^2} \right)^{1/2}$$

$$\frac{l}{l_0} \sim 1 + \frac{1}{2} \cdot \frac{\Delta h^2}{l_0^2} \quad \dots(S1)$$



また、ひずみは以下で定義される。

$$\varepsilon = \frac{l - l_0}{l_0} = \frac{l}{l_0} - 1 \quad \dots(S2)$$

したがって、式(S1)および(S2)より、

$$\varepsilon \sim 1 + \frac{1}{2} \cdot \frac{\Delta h^2}{l_0^2} - 1 = \frac{2}{w^2} \cdot \Delta h^2$$

図4 ひずみゲージ上のひずみ（流路壁の壁面に沿った方向のひずみ） ε を Δh と関連付けるための概念図。

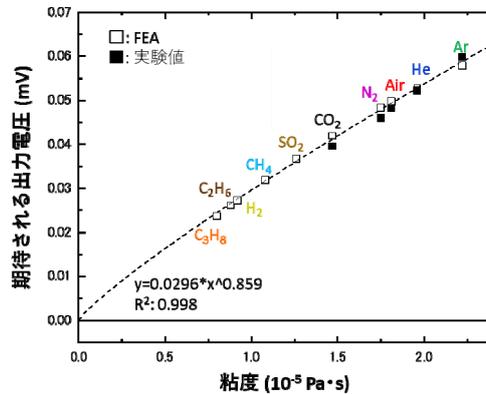


図5 10種類の気体（すなわち C_3H_8 、 H_2 、 C_2H_6 、 CH_4 、 SO_2 、 CO_2 、 N_2 、空気、He および Ar）を流量 10 mL/min で流すとして FEA を行い、これにより得られた出力電圧を粘度の関数として中抜き正方形でプロットした図。これらのデータ点をべき乗則関数を用いてフィッティングしたものを破線で示し、このフィッティング結果の式を図中の左下寄りの領域に示す。さらに、5種類の気体（すなわち CO_2 、 N_2 、空気、He および Ar）についての実験結果の実測データを黒塗りの正方形で示す（これらは図2 (b) に示したデータと同じもの）。

既に述べたような変形と粘度の関係性が成立する範囲を調べるため、流量を 0.1 mL/min から 150 mL/min まで広く変化させて FEA シミュレーションを行った。その結果、図7に示すように、すべての場合で、変形と粘度との間にべき乗則関係が見られた。しかしながら、興味深いことに、この関係における指数部は流量に依存して変化する。具体的には、図8に示すように、最小流量 (0.1 mL/min) においては $n \simeq 1$ であり、流量を増加させると n は単調に減少し、約 60 mL/min 以降、 $n = 0.25$ に漸近する。流量が非常に少ない場合には、マイクロ流路はごくわずかしかな変形しないはずであり、その結果 $n \simeq 1$ となる。流量が大きい場合の n の漸近的な値は約 0.25 であり、この値は先行文献にて報告された値とほぼ一致する。この文献は、PDMS 製のマイクロ流路の底面がガラス基板に接着されていて、流れのもとでその上面（接着されている面（底面）

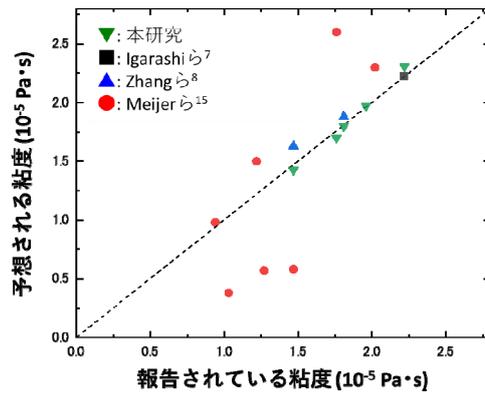


図6 粘度が既知の各種の気体について、本研究の手法により求めた粘度を既知の粘度の関数として示す図。この図には、比較対照として先行研究に示された同様なデータもプロットしてある。

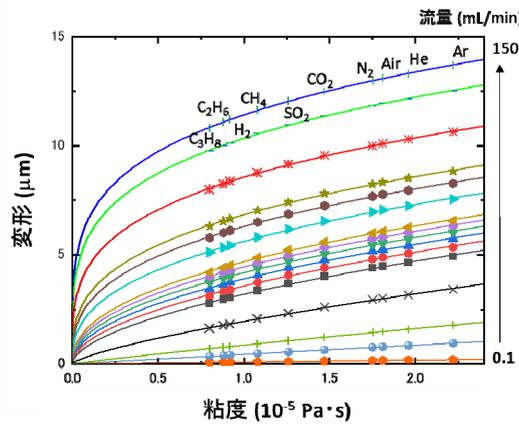


図7 流量0.1 mL/min~150 mL/minの範囲における10種類の気体（すなわちC₃H₈、H₂、C₂H₆、CH₄、SO₂、CO₂、N₂、空気、HeおよびAr）についてのFEAによる変形を粘度の関数として示す図。図中のプロットは、下から上の順で流量0.1、0.5、1.0、2.5、5、6、7、8、9、10、15、20、25、50、100および150 mL/minにそれぞれ対応する。すべてのデータ点を流量毎にべき乗則にフィッティングし、その結果を図中の破線で示す。

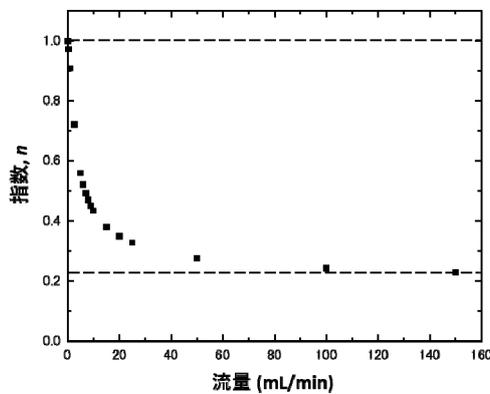


図8 流量の関数としての指数部 n を示す図。 n の値は、図7に示す $\Delta h-\mu$ のプロットに対してべき乗則フィッティングを行うことで得たものである。

の反対側の面) だけが変形する状況において流体を流した場合の、解析的な計算の結果を報告している。²³⁻²⁶ このようなマイクロ流路の構成は全体がPDMS からの本研究のそれと少々異なるが、FEA シミュレーションの結果は流れによって引き起こされるひずみが、主にその上面側で起こることを示唆している。これは、図 9 に示すようにマイクロ流路の底面が相対的にかなり深い位置にあるからである。すべての場合において、流体圧変化による流路断面の変形に伴って上側内壁面が引き伸ばされる長さ(長さの変化分 $l - l_0$) を、元の長さ l_0 で割った値として定義されるひずみ(図 4 における式 (S2) 参照) は変形の二乗に比例し、したがって出力電圧も指数部が $2n$ である粘度のべき乗則依存性を示す。

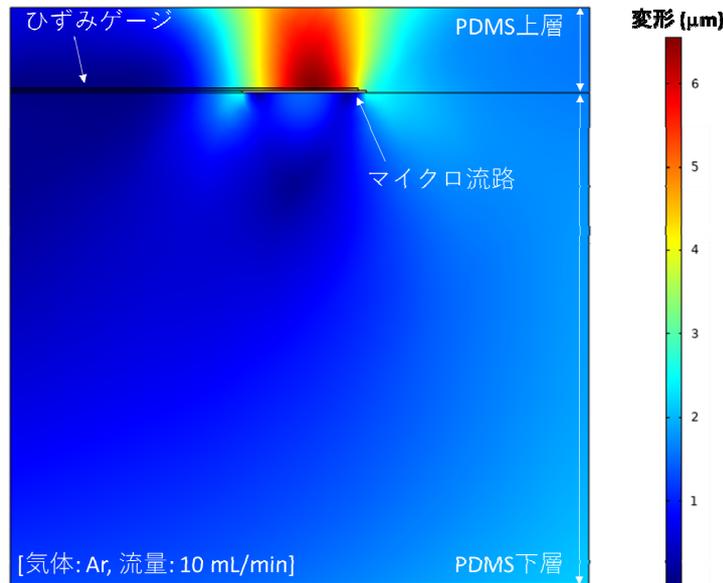


図 9 流量が 10 mL/min で Ar を流した場合のマイクロ流路の変形の分布を示すカラーマップ。

FEA によって予測される挙動を実験結果と比較するため、5 種類の気体の流量を 6 mL/min から 9 mL/min の間で変化させた場合のひずみゲージの出力電圧を測定した。その結果を図 10 に示す。ここで、指数部は流量に強く依存した。この実験の形態では、流量変化のきざみが 1 mL/min という小さいものであるにもかかわらず、出力電圧の粘度依存性は、図 11 に示すように、異なるものとなった。それにもかかわらず、各々の気体についての結果は互いに明確に区別できる。図 11 に示すように、各々の場合、データはべき乗則依存性により良好に記述され、また測定結果から得られた指数部(上述のひずみゲージの出力電圧 e_{out} がしたがうべき乗則関数 $e_{out} \propto \mu^m$ の指数部 m) は FEA シミュレーションによって予測されたもの(流路の変形の量 Δh がしたがうべき乗則関数 $\Delta h \propto \mu^n$ の指数部 n) の 2 倍となる。

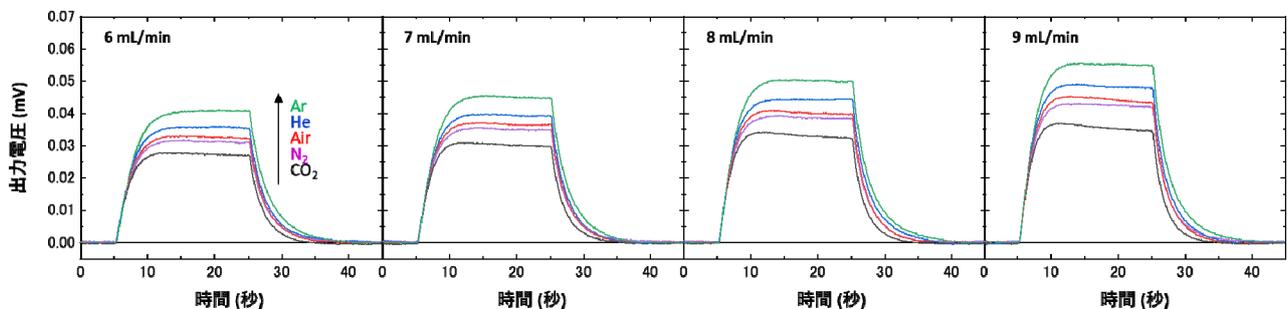


図 10 流量が左から右へ向かってそれぞれ 6、7、8 および 9 mL/min の場合の 5 種類の気体(すなわち CO_2 、 N_2 、空気、He および Ar) について、マイクロ流路直上に埋め込まれたひずみゲージにより測定された出力電圧の時間関数を示す図。

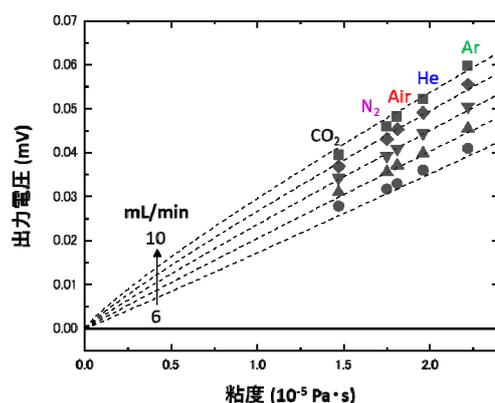


図 11 流量が 6、7、8、9 および 10 mL/min の 5 種類の気体（すなわち CO₂、N₂、空気、He および Ar）の粘度の関数として、マイクロ流路直上に埋め込まれたひずみゲージの出力電圧を示す図。破線は、上記条件において FEA により得たものである。黒塗りのデータ点は、実験により得たものである。流量 10 mL/min の場合のデータ点は、図 2 (b) に示すものと同じである。

ここで、流量が 6 mL/min の場合に得られた応答では、出力電圧は試料気体の注入開始後数秒以内に最大値に到達し、その後は時間が経過しても変化しなかった。これに対して、流量を 10 mL/min とした場合には出力電圧の時間波形にはややオーバーシュートが見られ、上記のような短時間での飽和特性は見られなかった。この事実は、粘度測定対象流体の流路への導入の際の流量等の測定条件を適宜設定することにより、粘度の実時間での測定や流路を流れている流体の変化を、実時間でまた連続的に検出することが可能となることを示している。

また、ここでの測定は窒素と空気を区別できるほど精密である。空気の大部分は窒素が占めることから想像されるように、両者の粘度の違いはわずか $0.05 \times 10^{-5} \text{ Pa}\cdot\text{s}$ である。測定のノイズレベルは $1 \mu\text{V}$ 未満であるので、粘度の違いがわずかに $0.01 \times 10^{-5} \text{ Pa}\cdot\text{s}$ 程度である n-ブタンとイソブタン（粘度はそれぞれ $7.39 \times 10^{-6} \text{ Pa}\cdot\text{s}$ および $7.48 \times 10^{-6} \text{ Pa}\cdot\text{s}$ ）のような構造異性体同士でさえも識別することができる測定精度を有する。しかしながら、指数部 n は流量の関数として変化するので、本発明の測定装置は使用前に較正を行う必要がある。

4-2 液体の測定

気体の粘度は概ね $10^{-6} \text{ Pa}\cdot\text{s} \sim 10^{-5} \text{ Pa}\cdot\text{s}$ の範囲で変化する。他方、液体の粘度はほぼ $10^{-3} \text{ Pa}\cdot\text{s}$ から、多くの場合これよりも非常に大きな値まで変化する。それにもかかわらず、本研究におけるマイクロ流路を用いた手法では、マイクロ流路を流れる液体に対して気体と同じような態様で応答し、したがって液体の粘性を測定するためにも使用できる。

これを示すために、MeOH、水および IPA などのいくつかの液体について測定を行った。これらの液体の 20 °C における粘度はそれぞれ $0.60 \times 10^{-3} \text{ Pa}\cdot\text{s}$ 、 $1.0 \times 10^{-3} \text{ Pa}\cdot\text{s}$ および $2.4 \times 10^{-3} \text{ Pa}\cdot\text{s}$ である。^{27, 28} 各測定における流量は 0.25 mL/min に設定した。各々の液体について、その流れをオン/オフした時のそれぞれの時間依存性のひずみゲージ出力電圧を測定し、図 12 に示す結果を得た。これから分かるように、信号出力と粘度との間に明確な相関性がある。図 13 (a) に示すように、これらのデータは $m (= 2n) = 0.820$ としたべき乗則によく一致する。粘度の範囲を更に広げるため、MeOH 濃度を 20、40、60 および 80vol% に設定した MeOH 水溶液についても測定を行った。アルコール-水二元系の粘度は混合比に対して単純な線形依存性を示さず、その代わりに単調ではない態様で変化する。²⁷ アルコール分子と水分子との間の水素結合が当該混合物の粘度を決めるにあたって重要な役割を果たし、その効果は特定の比率で最大となる。これにより、そこで粘度が最大となる。²⁹ それにもかかわらず、本研究で得た測定データは、図 13 (a) に示すように、べき乗則に直接的にしたがう。さらには、 $e_{out}^{1/m}$ を MeOH 体積割合の関数としてプロットすることにより、図 13 (b) に示すように、報告された粘度値によく一致する単調でない傾向が得られる。ここで用いた液体の粘度は前項で述べた気体の粘度よりもほぼ 50 倍大きい、液体についての流量は気体の場合のほぼ 1/40 であり、粘度

と流量との積の値が同じ態様での測定ということになる。しかしながら、液体について得られた m の値は気体についての FEA シミュレーションから予測された値と直接的に比較することはできない。したがって、マイクロ流路は事前に気体と液体とで別個に較正する必要がある。それにもかかわらず、本装置は気体と液体の両者を含む任意の流体の粘度を定めるために使用することができる。

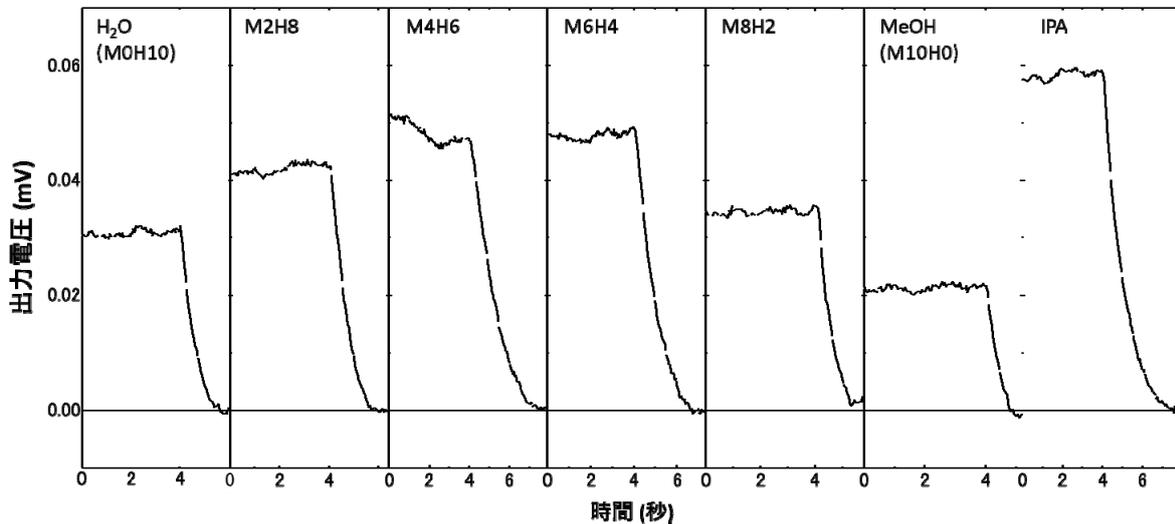


図 12 マイクロ流路直上に埋め込まれたひずみゲージからの出力電圧の時間変化を、7 種類の液体（すなわち左から右へそれぞれ水、MeOH 水溶液（MeOH 濃度がそれぞれ 20、40、60 および 80vol%）、メタノールおよび IPA）について示す図。ここで、各液体は流量 0.25 mL/min で約 4 秒間流した後、その流れを止めた。

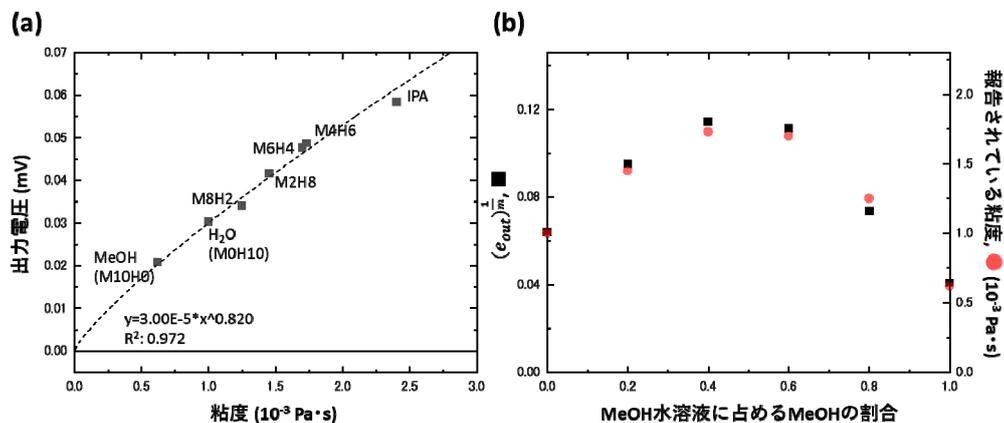


図 13 (a) 流量 0.25 mL/min で 7 種類の液体（すなわち MeOH、水、IPA および 4 通りの異なる濃度の MeOH 水溶液）を流した際の、マイクロ流路直上に埋め込まれたひずみゲージからの出力電圧を粘度の関数として示す図。(b) MeOH 水溶液における MeOH の体積割合に対する $e_{out}^{-1/m}$ の変化 (■) および報告されている粘度の値 (●) をプロットした図。両者はよく一致していることが分かる。

5 結論

Polydimethylsiloxane 製のマイクロ流路を作製し、この変形可能な流路にニュートン流体を流すことで、

当該流体の粘度を測定した。ここで、マイクロ流路の変形は流れを引き起こすために必要な圧力に依存するし、この圧力は流体の粘度に依存する。したがって、上記変形を測定することにより粘度を見積もることが可能である。変形を測定するために、本研究ではひずみゲージを用いた。ひずみゲージはマイクロ流路の直上に、流路と交差する形で埋め込んだ。この構成により、流れによって引き起こされる変形を効率的に測定して、この変形をひずみに変換することができるようになる。このひずみは変形の二乗に比例するため、変形を直接測定するより、高い感度で粘度を見積もることができる。また、この手法は、単一のマイクロ流路を使用して気体と液体の何れの粘度でも測定することができる。これにより、粘度だけでいくつかの気体を精密に識別するに十分な分解能を達成しており、ここでの当該粘度の範囲は $1.47 \times 10^{-5} \text{ Pa}\cdot\text{s}$ から $2.22 \times 10^{-5} \text{ Pa}\cdot\text{s}$ までである。液体については、メタノール、水、イソプロピルアルコールおよび4種類の異なるアルコール濃度を有するメタノール水溶液を測定した。これらの液体の粘度は $0.60 \times 10^{-3} \text{ Pa}\cdot\text{s}$ から $2.4 \times 10^{-3} \text{ Pa}\cdot\text{s}$ の範囲にあり、上述の気体に比べてほぼ2桁大きな粘度になっている。持ち運び可能、ポイントオブケア検査ができる、ウェアラブル、さらにはオンサイト利用などの特長・性能を備えた装置への要求が高まりつつある現状では、³⁰ 非常に広いダイナミックレンジや、作製の容易さおよび高い精度を有する本手法は、例えば検体間の差異を判別するために粘度を用いることのできる多くの応用に役立つであろう。

6 実験方法

6-1 PDMS マイクロ流路の作製

以下では本研究で使用したPDMS装置の作製手順を具体的に説明する。ネガフォトレジストSU-8 3035を清浄な3インチ片面研磨済みシリコンウエハー上にスピニング(3000 rpmで30秒間)して、25 μm 厚のフォトレジスト層を形成した。95 $^{\circ}\text{C}$ で15分間ベーキングした後、フォトレジスト層をフォトマスクで覆い、紫外線で露光した。このあと、フォトマスクをウエハーから除去し、ウエハーを再度ベーキングした。このベーキングは65 $^{\circ}\text{C}$ で1分間、次いで95 $^{\circ}\text{C}$ で5分間行った。硬化していないレジストをpropylene glycol methyl ether acetate (PGMEA)で8分間洗い流すことにより、マイクロ流路構造が形成されたマスター型を得た。

次に上述のマスター型を鋳型として用いてマイクロ流路を作製した。主剤と硬化剤(重量比10:1, Sylgard 182)とからなる液体PDMS混合物をSU-8マスター型に注ぎ、次いで減圧することにより気泡を除去した。65 $^{\circ}\text{C}$ で数時間硬化させた後、PDMSをマスター型から剥離させた。生検パンチを使用して、流入口および流出口用の貫通孔を形成した。このPDMSブロックを、ひずみゲージが埋め込まれた1 mm厚の別個のPDMS薄層に不可逆的に接着した。この際、安定した接着を形成するため、70 Wで20秒間のプラズマ処理を行った。95 $^{\circ}\text{C}$ で数10分間加熱して接着強度を高めることで、PDMSマイクロ流路の製造が完了した。このPDMマイクロ流路の写真を図1 (b) に示す。

6-2 PDMS マイクロ流路を用いた気体/液体の測定

このPDMSマイクロ流路を使用して、各種の気体および液体の流れにより引き起こされるひずみを測定した。すべての測定において、株式会社東京測器研究所(Tokyo Measuring instruments Laboratory Co., Ltd.)から購入したひずみゲージ(ゲージパターン: FLKB-1-11、長さ: 4.3 mm、幅: 1.4 mm、厚さ: 30 μm 、ゲージ率: 2.11、ゲージ抵抗: 120 Ω)を使用した。このひずみゲージの正確な寸法を示す顕微鏡像を図1 (a) に示す。ひずみゲージからの全ての出力電圧はNI 9237 simultaneous bridge module (National Instruments Corporation)を使用して、ブリッジ電圧2.5 Vを印加して測定し、サンプリングレート20 Hzで記録した。データ収集用のプログラムはLabVIEW (National Instruments Corporation)を使用して設計した。気体流れはマスフローコントローラ(MFC; 株式会社堀場製作所 SEC-N112MGM)を使って調節した。この流れは流入口から流量10 mL/minで20秒間注入し、次いで20秒間の気体流れのない時間間隔を設けた。同様のサイクルは流量6、7、8および9 mL/minでも行った。気体の漏れがないことを確認するため、体積流量計(volumetric flow meter) (ProFLOW 6000 Electronic Flowmeter, Restek Corporation)を使って流出口で流量を測定した。実験にはCO₂、N₂、空気、HeおよびArを使用した。

液体流れの測定では、シリンジポンプ(PHD 2000 Dual Syringe Pump, Harvard Apparatus)を使用して、流量を0.25 mL/minに設定した。MeOH、水、IPAおよび4通りの異なる濃度のMeOH水溶液を使用した。MeOH

水溶液については、濃度を 20、40、60 および 80vol%に設定した。これらの水溶液試料を、図中ではそれぞれ M2H8、M4H6、M6H4 および M8H2 の記号で示す。また、同様な記法として、水を MOH10、また MeOH を M10H0 という記号で示すこともある。

6-3 FEA シミュレーション

FEA シミュレーション用構造力学モジュール (Structural Mechanics Module for the FEA simulation) を備えた COMSOL Multiphysics 5.6 を使用した。図 1 (c) に示す寸法を有する PDMS マイクロ流路をモデル化した。シミュレーションに使用したすべてのパラメーターを表 1 に示す。この装置の構造全体を約 60000 個の要素のメッシュに分割した。実験に使用した CO₂、N₂、空気、He および Ar に加えて、5 種類の気体、すなわち C₃H₈、H₂、C₂H₆、CH₄ および SO₂ もシミュレートして、それぞれのフィッティングカーブをできるだけ正確に求めた。

表 1 FEA において設定したパラメーターの一覧

パラメーター	値
PDMS上層の厚み	1 mm
PDMS下層の厚み	6 mm
PDMSのヤング率	1.1 MPa ^[25]
マイクロ流路の高さ	27 μm
マイクロ流路の幅	1.5 mm
マイクロ流路の長さ	20 mm
マイクロ流路とひずみゲージ間の距離	1 μm
ひずみゲージの厚み	30 μm
ひずみゲージの幅	1.4 mm
ひずみゲージの長さ	4.3 mm
エポキシ樹脂のヤング率	2.5 GPa ^[31]
流入口の内径	0.75 mm
流入口の外径	1.5 mm
流出口の内径	0.75 mm
流出口の外径	1.5 mm

【参考文献】

1. *Handbook of Chemistry and Physics*, CRC Press, 2014-2015 edn., 2014.
2. R. Edgeworth, B. J. Dalton and T. Parnell, *Eur. J. Phys.*, 1984, **5**, 198-200.
3. S. Chakrabarti, *Eur. J. Phys.*, 2015, **36**, 065046.
4. K. Hellgardt, A. Al-Musa, I. W. Cumming, G. Mason and B. A. Buffham, *AIChE J.*, 2000, **46**, 1449-1453.
5. D. P. Johns, J. J. Pretto and J. A. Streeton, *J. Appl. Physiol.*, 1982, **53**, 290-293.
6. F. Benton, *Phys. Rev.*, 1919, **14**, 403-408.
7. K. Igarashi, K. Kawashima and T. Kagawa, *Sens. Actuator A-Phys.*, 2007, **140**, 1-7.
8. J. T. Zhang, H. Lin and J. Che, *Metrologia*, 2013, **50**, 377-384.
9. L. J. Lassalle, *Phys. Rev.*, 1921, **17**, 354-366.
10. J. Kestin and J. H. Whitelaw, *Physica*, 1963, **29**, 335-356.
11. J. Kestin and W. Leidenfrost, *Physica*, 1959, **25**, 1033-1062.
12. Vanitterbeek, O. Vanpaemel and J. Vanlierde, *Physica*, 1947, **13**, 88-96.
13. Van Itterbeek and O. Van Paemel, *Physica*, 1940, **7**, 273-283.

