磁性流体のマイクロキャピラリ流れと磁場制御*

Micro Capillary Flow of Magnetic Fluid and Flow Control using Magnetic Field

角 田 憲 隆** 木 倉 宏 成*** 有 富 正 憲*** 平 島 修†
 KAKUTA Noritaka KIKURA Hiroshige ARITOMI Masanori HIRASHIMA Osamu

Abstract This paper reports the experimental research on micro-visualization of the growth process of cluster formation of ferromagnetic nano-particles in a water-based magnetic fluid on micro capillary flow. The purpose of this research is to observe the characteristics of primary clusters in micro capillary flow. The thermal behaviour of ferromagnetic nano-particles in micro capillary flow was observed through micro-visualization using the optical dark-field microscope system and particle tracking velocimetry (PTV) data processing system. Real-time visualization of primary clusters in a water-based magnetic fluid on micro capillary flow was carried out. Furthermore, the effect of magnetic field on the mixing process of using a water-based magnetic fluid in micro capillary flow was investigated.

Keywords: Magnetic Fluid, Microchannel, Ferromagnetic Nano-Particle, Dark Field

1. 緒 言

昨今のマイクロ・ナノ流体や機能性流体に関する技術進歩は著しく、東京大学の濱口ら[1]により磁石に反応する磁性イオン液体が発見されたのは記憶に新しい。イオン液体は数多くの優れた性質を有していることから今後活発な研究開発が展開されると見られている。同じく磁石に反応する流体として、1966 年に東北大学の下飯坂ら[2]により開発された水ベース磁性流体は、安価で希釈・洗浄が容易な扱いやすい機能性流体として着目され多くの研究[3, 4]がなされている。そして、近年、試料の混合・分析・分離の簡略化を目指したマイクロデバイスの開発が行われるようになり、中でも、磁性ビーズを用いたカオス混合[5]が注目を集めている。この様な中、マイクロスケールの供試流体に磁性流体を用いた混合溶液を用いれば、外部磁場による磁場制御と混合・分離に応用できると考えられた。ここで扱う磁性流体とは、直径 10nm 程度の強磁性ナノ微粒子を溶媒

内に安定に懸濁させたコロイド溶液であり、母液の種類によって一次凝集体である一次クラスタを形成し、磁場作用下では磁力線方向に鎖状につらなった二次クラスタが形成される。この一次クラスタの動的存在は中谷[6]によって限外顕微鏡法(暗視野法)を用いてはじめて可視化された。その後 Kikura ら[7]は、中谷が用いた限外顕微鏡法(暗視野法)を応用し、粒子追跡法(Particle Tracking Velocimetry; PTV)を用いて微粒子のブラウン運動解析を行うとともに、Einstein の分散関係式から磁性流体の一次クラスタ平均粒径を 200nm 程度と求めた。しかしながら、流れ場中の強磁性ナノ微粒子挙動およびクラスタ形成については未だ詳細な研究は行われていないため、それらの挙動解明や流れ場計測の確立が望まれている。そこで本研究では磁性流体を用いたナノ微粒子懸濁液の流動特性と混合過程を実験的に解明する事を目的に、暗視野法を用いたマイクロ流動計測技術の確立を目指す。可視化には生物顕微

* 受付日 2005.12.14

** 東京工業大学理工学研究科 〒152-8550 目黒区大岡山 2-12-1-N1-13

TEL: (03)5734-3059 FAX: (03)5734-2959 E-mail:kakuta@2phase.nr.titech.ac.jp

*** 東京工業大学原子炉工学研究所

† (株)理学メカトロニクス

鏡で利用されている暗視野法を用い、画像処理には PTV を用いて微粒子挙動を解析した。実験では矩形直管マイクロキャピラリを用いた流れ場での強磁性ナノ微粒子挙動およびクラスタ形成・分散過程を可視化計測し本手法の有効性を確かめると共に、Y 字型分岐管マイクロチャネルを用いたナノ微粒子混合過程を調べた。

2. 実験

2.1 実験装置および実験方法

実験装置の概略図を Fig.1 に示す。実験装置は、光学顕微鏡、シリンジポンプ、試験流路、恒温装置、電磁石、CCD カメラ、画像処理装置から成り、供試流体は水ベース磁性流体 W-40（タイホー工業）を母液で希釈してそれを用いた。また、3.1 で示す PTV 解析に用いるトレーサ粒子として磁性流体中の一次クラスタの利用以外にポリスチレン粒子（Duke Scientific Co.）の非磁性微粒子を使用した。ここで用いた微粒子の平均粒径は 500nm（分散 5nm）である。試験流路は恒温プレート上（23℃）に設置し、温度を定常状態に保ってから透過型生物顕微鏡（Olympus, BX50）で観察した。対物レンズにはユニバーサルプラン・アポクロマート・レンズ（Olympus, UplanApo 40x Oil Iris）を用いて光学精度を上げ、油浸式暗視野コンデンサレンズ（Olympus U-DCW）を用いた暗視野法によって観察した（Fig.2）[6]。試料の可視化画像は、鏡塔に設置したモノクロハイスピード CCD カメラ（Photron, FASTCAM-NET）から取り込まれ、一次メモリに記録されたビットマップ形式の画像を、パーソナルコンピュータのハードディスクに取り込み、粒子追跡法（PTV）を用いて粒子画像解析を行った。

まず、準備実験として行った直管マイクロ流れにおける計測では、試験流路として流路断面が矩形状である、深さ 20 μm 、幅 200 μm 、のマイクロキャピラリ（Wale apparatus Co.）を使用した。流路はシリコンチューブに接続され 80 $\times$ 26mm² のスライドガラス中心線上にエポキシ系接着剤により固定した。シリコンチューブはマイクロシリンジポンプ（KD Scientific, KDS100）に接続され、 $\pm 0.0001\mu\text{l/h}$ の精度で試料が一定流量を注入している。マイクロ流路は、石英ガラス製の毛細管であるため、空気と石英ガラスの屈折率の違いにより画像のゆがみが生じる。そこで、石英ガラス

Fig. 1 Schematic diagram of experimental apparatus

Fig. 2 Dark-field illumination microscope system

Fig. 3 Test channels and position of electromagnet

と同屈折率 ($n=1.516$, 23℃) のマッチングオイルを充填し、光学精度を高めた。

また、得られた結果を基に本研究では、精製水-水ベース磁性流体の混合を行った。ここでの試験流路には、Y 字型分岐のマイクロチャネル（IMT, ICC-SY05）を用いた。この流路は深さ 40 μm 、幅 100 μm であり、二つの注入口よりそれ

ぞれマイクロシリンジポンプを用いて水ベース磁性流体および蒸留水を一定流量注入した。この時の流量は、各供試流体ともに 30 μ l/h である。供試流体である二流体の合流後、界面が安定し温度が一定となった状態において電磁石を用いて外部磁場を印加し、合流部付近における混合過程を暗視野可視化により行った。また、印加磁場には円筒型誘導電磁石に、先端部が 30 $\times$ 1mm²の矩形形状である直径 30mm の円柱型ポールピースを取り付け、流れ方向に対して垂直に磁場を印加した (Fig. 3) ここで、ポールピース間の距離は 78mm とし、ポールピース間の中心と流路中心位置が一致するように試験流路を設置しており、ポールピース間中心点 (点 O) での磁束密度を持って代表磁場強度 B_0 とした。また、実験では Fig. 3 の一様磁場の他に、ポールピースの S 極のみを用いた非一様磁場を用いて磁場勾配を与えた。なお、誘導電磁石に与えた電流値 I は、一様および非一様磁場ともに $I=5A$ と一定とした。

マイクロチャネル中の二次クラスタ形成での画像処理は、まず撮影画像の平均輝度値と背景画との差分画像を得て、メディアンフィルタで輝度分布正規化処理を行った後、コントラストを落とさずにノイズ除去し二値化する。その後、膨張と収縮処理でクラスタ中の切れ目をつなぎ、水平フィルタ処理を施しクラスタ長さを精度良く求めた。マイクロチャネル流れの速度分布での画像処理は、撮影画像のエッジを強調して粒子判別し、背景ノイズを除去した後に二値化した。流れ場での速度分布計測は粒子のブラウン運動の影響はあるものの速度データの蓄積を基に次時刻の位置を推定し易いため粒子追跡演算を行った。このときの追跡条件は、その探索半径を 3.0 $\sim$ 10.0 Pixel とし、輝点の大きさに関しては 9 $\sim$ 80 Pixel を計測対象範囲とした。本計測では流路全体のクラスタ長さおよび速度分布を得るため、顕微鏡の倍率は 400 倍で行い、計測前の画像処理により計測対象粒子数が次式で得られる値に近くなるような閾値をもって二値化した。

$$N_P = \frac{512 \times 480}{[3(D_B + L)]^2} = \frac{27307}{(D_B + L)} \quad (1)$$

式(1)は撮影画像が 512 $\times$ 480 Pixel であるので、画像中の輝点の平均径 (粒子の平均径ではない) を D_B (Pixel)、1 フレーム間 (1/30sec) の輝点の最

大移動距離 (中心間) を L とすると最適な計測粒子数 N_P である。また、 D_B は撮影条件によって変化し、 L は実験条件によって変化する。この式(1)は、輝点の最大移動距離の 3 倍を 1 辺とする平面が画像中にどれだけ取れるかを考慮したものであり、いま仮に D_B を 6.0 Pixel、 L を 9.0 Pixel とすると、 N_P は約 120 となる。また、計測の段階でその輝点の大きさ (面積) が 9 Pixel 未満のものは追跡継続が困難なものとして排除した。

2.2 計測深度

顕微鏡撮影では通常の撮影とは異なり被写界深度は浅く、また磁性粒子の運動は深度方向 (Fig. 3, z 方向) にもあるため PTV による粒子追跡には被写界深度が重要となる。静止場での実験試料 (5 μ l) で考察すると、スライドガラス上における試料厚さは約 10 μ m となるため、対物レンズの被写界深度は次式で与えられる。

$$N_P = \frac{512 \times 480}{[3(D_B + L)]^2} = \frac{27307}{(D_B + L)} \quad (2)$$

ここで、 n は極微細流部と対物レンズとの間の液体の屈折率、 λ_0 は真空での光の波長、 NA は開口数、 M は光学システムの倍率、 e は撮影系の分解能であり、CCD センサの場合はピクセル間の距離となる。式(2)の右辺第一項は回折による被写界深度、第二項は幾何学的影響によるものである。また、測定深度に関しては光学系の深度だけでなく、散乱光の強度についてもその深度を考慮しなければならない。基本的に光学的に接近が限られている場所や、微小な場所での PTV の実験では、測定部分全体を立体的に照明することが望ましく、測定平面の被写界深度は光学系の性能によって決まることとなるが、本実験においては磁性粒子の大きさ形状を計測することが目的ではないため、式(2)による光学系の被写界深度において、多少その深度から外れても、その粒子の位置が特定されればよい。従って、計測対象である磁性粒子からの散乱光強度による計測深度がより重要になる。この光強度深さは若干光学系の深度とは異なるが、おおよそ同じものとなる。以下にその式を示す[8]。

$$N_P = \frac{512 \times 480}{[3(D_B + L)]^2} = \frac{27307}{(D_B + L)} \quad (3)$$

式(3)の右辺第 2 式は、理想物点からの位置ずれに

よって粒子像の輝度が 1/10 に低下するまでの範囲を被写界深度と定義したもので、第3項は粒子径そのものが被写界深度に含まれることを表している。ここで、 $\lambda_0 = n\lambda$, $NA = n \sin \theta \approx na/f$ (λ : 照射光の波長、 θ : 照射光の入射角、 f : 焦点距離、 a : 光学系を通過する光束の最大半径) を用い、本実験条件下で式(2)を計算して得た、約 $5\mu\text{m}$ を被写界深度とし定めた。

3. 実験結果および検討

3.1 直管型マイクロ流動における磁場制御

矩形マイクロ流路内における水ベース磁性流体 (1w%) の、流路 z 方向中央 x - y 断面の可視化画像を Fig. 4 に示す。磁場は流れ方向に対し垂直に一様印加し、磁場強度 B_0 は三種類 ($B_0=45, 90, 130\text{mT}$) を用いた。このとき、流量は $0.08\mu\text{l}/\text{m}$ で一定とし、得られた流路内の可視化画像は磁場印加後 1 分間経過しており、二次クラスタの形状および位置が安定し、定常状態とした後の画像である。可視化されている微粒子は水ベース磁性流体中の平均粒径約 200nm [6]とみられる一次クラスタとそれらが鎖状形成した二次クラスタであり、他の空間には平均粒径約 10nm の強磁性ナノ微粒子が分散している。Fig. 4 から流れ場中の二次クラスタは磁場強度が増加すると共に磁力線方向のクラスタ長さが増加し、流路幅に限定されて一定の長さまで成長した。また、ポアズイユ流れにも関わらず磁力線方向にほぼ直線に鎖状の二次クラスタを形成し、その形態を維持しながら流動した。一次クラスタを形成しない強磁性ナノ微粒子は目視による可視化は可能であるが現有の CCD では解析に必要な十分な解像度が得られない。そこで、PTV 解析に用いるトレーサ粒子として非磁性微粒子に着目し、これを混入した。ただし、粒径によっては磁場の影響が考えられる。そこで、磁場の影響と流れ場への追従性を調べるため、蒸留水中の三種類 ($500\text{nm}, 350\text{nm}, 200\text{nm}$) の非磁性微粒子を用いて予備計測を行った結果、粒子径の違いにより速度分布に多少のばらつきはあるもののほぼ速度分布は一致し、本実験で使った強度の磁場作用下では粒子への影響がほとんど計測されず、かつ粒子は流れに十分追従していると判断し、比較的明瞭な可視化画像が得られる 500nm の非磁性微粒子をトレーサ粒子として用いる事とした。水ベース磁性流体に非磁性微

Fig. 4 Effect of a magnetic field on cluster formation in a water-based magnetic fluid (W-40, 1w%)

Fig. 5 Cluster formation in a water-based magnetic fluid (W-40, 5w%+500nm, 0.06 $\mu\text{l}/\text{m}$)

Fig. 6 Velocity profiles of a water-based magnetic fluid (W-40, 5w%+500nm, 0.06 $\mu\text{l}/\text{m}$)

粒子 (500nm) を混入した時の撮影画像が Fig. 5 である。Fig. 5(a)は無磁場での場合で、Fig. 5(b)は磁場 ($B_0=130\text{mT}$) を印加した場合での可視化画像である。流れ場に磁場を印加すると、磁性流体の強磁性微粒子が磁力線方向に二次クラスタを形成するとともに、非磁性微粒子の流れとは異なった流速であることが可視化画像から判断された。そこで、鎖状クラスタの形成による流れ場の変化を計測するべく、非磁性微粒子の PTV 解析を行い、得られた平均速度分布を Fig. 6 に示す。ここで、 V_p は非磁性微粒子の平均速度、 V_c は二次クラスタの平均速度であり、このとき、二次クラスタ長さの閾値を $5\mu\text{m}$ 以上と定めた。なお、Fig. 5(b)には Fig. 6 を得る際に計算された二次クラ

Fig. 7 Cluster formation in a water-based magnetic fluid (W-40, 5w%+500nm, 0.06μl/m)

(a) $B_0=45\text{mT}$

(b) $B_0=130\text{mT}$

Fig. 8 Velocity profiles of a water-based magnetic fluid (W-40, 5w%+500nm, 0.06μl/m)

スタの局所速度をベクトル表示している。Fig. 6より非磁性微粒子の平均流速は磁場印加後に増加している。これは二次クラスタの存在により近傍の流れが平坦化され、流量一定条件のため測定深度内のクラスタ近傍の流速が局所的に増加しているためと考えられる。しかしながら、磁場印加前の流れ場を含め、マイクロ流れの理論的な速度分布は必ずしも従来のニュートン流体の理論とは一致しないという報告もあり、かつ、微粒子が混合している場合や、クラスタ形成での流れ場の理論は未だ確立されていないため、被写界深度の低深度化を含め今後更なる検討が必要である。

ところで、磁性流体を用いたマイクロ混合・分離を考える場合、一様磁場よりも非一様磁場を用

Fig. 9 Liquid interface between water-based magnetic fluid and water of Y junction on the microchip

(a) Non-uniform magnetic field (top)

(b) Non-uniform magnetic field (under)

(c) Uniform magnetic field

Fig. 10 Process of mixing in a microchannel

いた磁場勾配による磁気体積力により流体制御を考える事が出来る。そこで電磁石のS極のみのポールピースを用いて流れ場に非一様磁場を作用させ、磁場形態の違いによる流れ場への影響を調べた。その時の可視化画像をFig. 7に示す。Fig. 7(b)(c)におけるベクトル表示は二次クラスタの局

所速度を示している。磁場強度の増加とともに、二次クラスタは磁気体積力により磁極方向に偏る傾向になるが、二次クラスタ速度は抑制される傾向にあることが確認された。これは、磁場強度が増加したことにより二次クラスタの体積が増し、流れに対する抵抗力が増加したことが一因であると考えられる。そこで、PTV 解析により得られた非磁性微粒子と二次クラスタの速度分布を Fig. 8 に示す。磁場を印加した場合、クラスタが存在している範囲内の平均速度は減少した。非一様磁場を印加すると磁気体積力により二次クラスタは移動するが、流れ場に三次元性が現れるため、被写界深度方向に計測可能な三次元計測が今後必要となる。

3.2 Y 字型分岐管内における流体混合

Fig. 9 に分岐管内における流路可視化画像を示す。水ベース磁性流体・精製水の混合において Fig. 9(a) ではチャネルの合流部を、Fig. 9(b) では二流体の混合が開始される Y 字型流路の合流点より主流方向に $x/h=15$ の位置を可視化している。図上部より水ベース磁性流体を、下部より精製水を同流量で注入したところ、二流体の接触界面付近では分子拡散の影響とみられる混合が僅かに見られたものの、ほぼ各流体ごとに分離されている。Fig. 10 は外部磁場印加後のマイクロチャンネル内の可視化画像である。観察部は Fig. 9(b) と同様であり、磁場印加後 30 秒経過している。Fig. 10(a)(b) では、矩形マイクロキャピラリの実験結果を踏まえ、主流方向に対し垂直である磁場を流路片側より印加し、二流体の混合を試みたものである。図上部から片側磁場を印加した Fig. 10(a) では、矩形マイクロキャピラリの実験結果同様に、流路上側に鎖状クラスタが位置し、形状を保ちながら流れ場中に存在した。この結果を踏まえ、混合の促進を行うため、下側より片側磁場を印加した Fig. 10(b) では、鎖状クラスタが流路下側に引き寄せられるものの、十分に形状を成長させる事なく、流れのせん断力により鎖状形状が分断され、効果的な混合効果は得られなかった。そこで Fig. 10(c) では、鎖状形状を十分に成長させ、かつクラスタ位置を二流体の境界面に存在させるべく、両側からの磁場印加を行ったところ、流路中心付近において磁力線方向に鎖上クラスタが形成し、二流体の流れが攪拌されることにより、混合が顕著に促進されたことを確認できた。

4. 結 言

本研究では、マイクロキャピラリ内の強磁性ナノ微粒子の流れ場および二次クラスタ形成・分散過程を、暗視野法を用いて可視化し、流速分布を計測した。矩形流路では、流れ場中でのクラスタ長さを計測して磁場強度の平均クラスタ長さへの影響を調べた。また、二次クラスタが存在する流れ場での PTV 解析を行う際に、トレーサとして非磁性微粒子を混入することにより、流路内におけるマイクロ流れの速度分布計測を行った。更には、磁場勾配による磁気体積力を利用して二次クラスタ形成位置の制御の可能性を調べ、クラスタの空間移動による攪拌効果を利用し、二次クラスタの位置を二流体界面位置に存在させることにより、二流体攪拌の効果が増大した。以上のことから、暗視野法を用いたマイクロ流動計測の基礎技術を確立すると共に、マイクロスケールの供試流体に磁性流体を用いたマイクロ混合・分離装置の応用の可能性を示した。

Nomenclature

V_p :	mean axial velocity of non-magnetic particles	[$\mu\text{m/s}$]
V_c :	mean axial velocity of cluster formation	[$\mu\text{m/s}$]
B_0 :	magnetic field	[mT]

参考文献

- [1] Hayashi, S., et al., Chem. Lett., 33 (2004).
- [2] 下飯坂、粉体および粉末冶金, Vol. 13, 263 (1966).
- [3] R. E. Rosensweig, Ferrohydrodynamics, ambridge University Press (1985).
- [4] Ho, C. M., Micro-electro-mechanical systems (MEMS) and fluid flows, Annual Review of Fluid Mechanics, Vol. 30, 579–612 (1998).
- [5] 鈴木、笠木、Ho、磁性粒子を利用したカオス的マイクロ混合器, 日本機械学会論文集(B 編), Vol. 69(688), 2626–2632 (2003).
- [6] 中谷、水ベース磁性流体におけるコロイド粒子分散の高次構造の観察、磁性流体講演論文集、43–49 (2001).
- [7] Kikura, H., et al., Flow visualization and particle size determination of primary clusters in a water based magnetic fluid, Journal of Magnetism and Magnetic Materials, Vol. 289, 392–395 (2005).
- [8] Santiago, J.G., Wereley, S.T., Meinhart, C.D., Beeber, D.J. and Adrian, R.J., A particle image velocimetry system for microfluidics, Experiments in Fluids, Vol. 25(4), 316–319 (1998).