

論文の内容の要旨

論文題目 無極性溶媒中での帯電微小液滴の形成
および電界を用いた自己組織的アセンブリ

氏 名 中窪 亨

1. 序論

本研究の目的は、微小液滴を生成、コントロールすることにより、基板上的規定のエリアに自己組織的に分散配置することである。具体的には、無極性溶媒中に分散させた帯電液滴を、静電潜像を形成した基板上的規定のエリア内に電界により集積させるとともに、エリア内では帯電した液滴同士の静電反発により個々の液滴の位置を制御することなく配列させる。

パターンニング方式の概要は次の通りである。まず、二重管構成の内管から供給された液体（分散相）は、内管先端近傍に設けられた電極に印加された電圧により、滴化と同時に帯電する。内管は外管から供給される無極性溶媒（連続相）の流れの中に設置され、帯電液滴化した分散相は、流れに乗って直ちに帯電電極の周囲から連続相のプールに運ばれる。連続相のプールには、液滴を集積させるための基板が置かれており、静電気による帯電パターン（潜像）が予め形成されている。運ばれた帯電液滴は潜像によって規定されたエリア内に配置される。この際、液滴同士は同極性で帯電しているため、お互いに反発しパターン形成後も合一しない。以上のようにして、基板上に分散相液滴からなる分散配置パターンを形成することができる。

本方式の特徴としては、まず、パターン形成部での液滴の集積に遠隔力である静電気力を用いることで、遠くから液滴を運ぶことができる。さらに、帯電した微粒子がお互いに静電気力により反発するため、1液滴ごとに細かな着弾位置を制御しなくても、あるエリア内で液滴の分散配置パターンが得られる。特に、溶媒に無極性溶媒を用いることで、液滴表面の帯電が溶媒中で中和されるのを防ぐことができる。さらに、従来の化学的な電離を用いた帯電方式では無極性溶媒中での電離度が低いため高い帯電量が得られにくいのに対し、帯電電極による物理的な帯電という手段を用いることで、高い帯電量を得ることができる。物理帯電方式は導電性を有する液体全般に適用でき、様々な機能性液体や機能性微粒子を分散させた液体に適用できると考えられる。

2. 帯電液滴の形成

外管の連続相の流れがある中で、内管から突出した液滴に働く力は、重力の影響による浮力

F_g , 表面張力による力 F_T , 流れによる力 F_F , 電界による力 F_E からなる。具体的にこれらの力の大きさを理論計算, シミュレーションにより見積もり, 力のバランスから液滴の大きさを予測した。また, 実際に滴化実験を行った。その結果, 帯電電極に印加する電圧を増加させると液滴が微小化し, その傾向は計算による予測と一致することがわかった。特に, 外管の流れを平滑流に保つことで, 生成した帯電液滴を電極周囲に滞留させることなく, 安定して滴化を継続することができることを示した。また, 内管への液体の供給流量を少なくするほど, 微小な液滴が得られ, ノズル内径よりも小さな液滴を形成できることを示した。さらに, 滴化時に電極に流れる電流から液滴の帯電量を見積もり, 液滴サイズと帯電量の関係をプロットすると, 帯電量がシミュレーションの値とよく一致した。液滴の帯電量は限界値に近い値となっており, 通常の電離によるエマルジョンの帯電量に比べ, 高い帯電量を有する液滴が得られていることを示唆している。

3. 帯電潜像を用いたパターンニング

基板に静電気による潜像を形成しておくことで, 帯電液滴を潜像で規定したエリア内に分散配置することができることを示した。まず, 液滴形成時の分散相流量および潜像形成電圧を変えた場合の液滴の集積密度を (液滴間の平均距離) / (液滴直径) を指標として評価した。その結果, 液滴の集積密度は, 潜像の形成電圧を大きくするほど高くでき, 電界強さと液滴帯電量から予測した集積密度と概ね一致した。得られた液滴サイズ, 集積密度は, イオン液体を用いたガスセンサへの応用を想定した場合に, 従来例と比べ信号強度を落とさずに応答速度を向上できるレベルであった。

潜像の形成方法として, 反転現像を用いると, ライン状の潜像ではライン幅と同程度の距離にまで引力が働いていることがシミュレーションによりわかった。反転現像では, パターン形成後の合なく液滴を集積させることができた。また, 配列させる液滴のサイズが小さくなるほど, パターンの形成に大きな電圧での潜像形成が必要であり, 液滴の集積密度が低くなってしまうことがわかった。一方, 反転現像に加えて, 液滴を集積させたい箇所を帯電させておく正現像を用いると, 液滴は集積しやすくなるが, 集積後の液滴の合一やパターンが広がってしまう現象が見られた。そこで, 液滴を予め, 導体上に絶縁層を有する現像電極上に付着させておき, 現像電極と潜像を形成した基板を対向させる現像電極法を試みた。この方法では, 液滴を潜像近傍に近づけられる利点がある。さらに, 現像電極を用いた場合の潜像周辺の電界の様子をシミュレーションした結果, 現像時に電極に電圧を印加することで電界を制御し, コントラストや全体の電界強さを調整できることがわかった。実験で分散相流量, 現像電極電圧を変化させたところ, 現像電極電圧を変化させると液滴の集積により形成される線幅が変化し, 分散相流量で決まる液滴の大きさに応じて現像電圧の最適値があることがわかった。現像電圧を調整すると, 現像電極がない場合に比べシャープな液滴集積像が得られる上, 低い電圧で微小液滴を集積させられることを示した。また, 現像電極を用いることによって, 液滴を集積させる領域内の液滴の密度を高められ, シミュレーションから見積もった液滴の集積密度に近い集積状態が得られた。

4. 導体配線を用いたパターンニング

液滴を配置させる別の潜像電界の形成方法として, 基板上に配線を形成し電圧を印加することにより, 電極近傍に液滴を集積させることができることを示した。基板にはポリイミド製フレキシブル基板を使用し, 配線のパターンを銅のエッチングにより形成した。パターンニングする基板に対向して, 予め帯電液滴を付着させた現像電極を設置し, 現像電極とパターンニングする基板の電圧を制御することで, 液滴を集積させたいエリア周辺の電界を制御できることをシミュレーションで示した。実験で下地電極の負の電圧を大きく, また, 電界形成用電極の電圧を大きくすると, 電界形成用電極上により多くの液滴を集積できることを確認した。

5. 結論

無極性溶媒中に帯電液滴を分散させ, 静電潜像を用いて静電気力によりエリア内に自己組織的に分散集積する方式が, 液滴の分散配置パターンを形成する方法として有効であることを示した。