

令和 4 年 6 月 6 日現在

機関番号：17102

研究種目：基盤研究(B) (一般)

研究期間：2017～2019

課題番号：17H02944

研究課題名(和文) 時空間変化する非平衡ソフトマターの局所力学物性の解明

研究課題名(英文) Study on local mechanical properties of non-equilibrium soft matter undergoing spatio-temporal variation

研究代表者

木村 康之(Kimura, Yasuyuki)

九州大学・理学研究院・教授

研究者番号：00225070

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 15,100,000円

研究成果の概要(和文)：ミクロンサイズ粒子をプローブとしてメソスケールでソフトマター複雑液体のダイナミクスを測定する、以下のような新規測定法の開発を行った。(1)交流電場下で光トラップした荷電粒子の電気的応答(交流電気泳動スペクトル測定法)から、プローブ粒子の電気物性測定、マイクロ流路中の3次元流れ場の周波数応答測定、高分子溶液の広帯域複素粘弾性スペクトル測定に成功した。(2)LED光源下でのコロイド粒子のホログラム像からレイリー・ゾンマーフェルト回折理論を用いて、3次元光場を数値的に再構築し、3次元粒子位置を推定するホログラフィック顕微鏡法を開発し、複数粒子系の3次元同時運動解析を行うことに成功した。

研究成果の学術的意義や社会的意義

本研究で開発したメソスケールでの交流応答測定法によりソフトマター中の3次元かつ局所的物性測定をナノメートルスケールの分解能で実現することが可能となった。今後、ホログラフィック顕微鏡法を発展させることで試料内を走査することなく動的構造の不均一性の可視化が実現できる。また、交流電気泳動法では、入力として多周波数正弦波電場の重ね合わせ信号を用いることで、ゲル化など時間的に不可逆に構造形成が進行する系に適用し、周波数スペクトルの時間分解測定が実現される。いずれの方法も細胞をはじめとするソフトマター複雑系ソフトマター系のミクロな構造や物性に関して、これまでにない新しい独自の情報を提供するものと期待できる。

研究成果の概要(英文)：We have developed a novel measurement method to measure the dynamics of soft matter complex fluids at the mesoscale using micron-scale particles as probes. (1) From the electrical response of optically trapped charged particles under an AC electric field (AC electrophoresis spectroscopy), we succeeded in measuring the electrical properties of the probe particles, the frequency response of a three-dimensional (3D) flow field in a microchannel, and the broadband complex viscoelastic spectra of polymer solutions. (2) We have developed a holographic microscopy method to estimate 3D particle positions from holographic image of colloidal particles under an LED light source. 3D optical field is reconstructed numerically using Rayleigh-Sommerfeld diffraction theory. By this method, we succeeded in measuring local velocity of a single particle and evaluating electrophoretic mobility of individual particles simultaneously.

研究分野：物性物理学

キーワード：マイクロレオロジー ソフトマター 電気泳動移動度 多周波同時測定 ホログラフィック顕微鏡

## 様式 C - 19、F - 19 - 1、Z - 19 (共通)

### 1. 研究開始当初の背景

高分子・液晶などの弱い相互作用で結びついた分子性物質からなるソフトマターの大きな特色は、その内部に特徴的な形態を有するナノからマイクロスケールにわたるメソスコピックサイズの構造体が階層的に存在する点にある。このため、その物性の理解のためには、メソスケールでのソフトマターの構造や動的物性(ダイナミクス)と、ソフトマター中での物質輸送をはじめとした局所力学物性との関係を解明することが不可欠となる。しかし、従来のレオメーター等による巨視的な力学測定法を用いて得られる粘弾性などの物性量は、あくまで巨視的なスケールにわたる平均値であり、個々の内部構造に対応した情報を分離して検出することは本質的に困難である。しかし、ソフトマターのメソスケールでの構造やダイナミクスを理解する上で、各構造に対応したさまざまな時空間スケールにおいて力学物性測定を行い、それらに関する知見を得ることは必要不可欠である。このような問題意識のもと、本研究では、レーザートラップしたコロイド粒子を交流電場で駆動した際の変位から周囲の媒質の局所的な粘弾性測定を可能とする能動的マイクロレオロジー測定法の開発を行うことを想起した。また、複数粒子のホログラム像からその3次元運動を観測する多粒子能動的マイクロレオロジー測定法の開発を行い、典型的なソフトマター系に適用することでその有用性を示すことを想起した。

### 2. 研究の目的

本研究では、メソスコピックサイズの複雑な内部構造を持つソフトマター中にプローブとしてコロイド粒子を分散させ、これをレーザートラップしつつ、試料の各点において局所力学測定を行なうマイクロレオロジー測定法を用いてソフトマターの時間分解局所力学物性測定を実現する。このために以下の新規手法の開発を行なうことを目指す。

(1) 複数の周波数の正弦波を重ね合わせた信号(刺激)に対する複素変位を計測することで、広帯域複素力学応答スペクトルの高速測定を実現し、これを用いてソフトマター系における広帯域の時間分解力学応答測定の実現を目指す。

(2) ホログラフィーの手法を用い、LEDを光源とするインラインホログラフィック顕微鏡を開発し、複数粒子位置の高精度3次元測定を実現することで、試料の3次元動的構造の高速測定を実現することを目指す。

### 3. 研究の方法

本研究では以下のような新規の測定系の開発を行い、研究を遂行した。

#### (1) 光トラップ交流電気泳動測定法の開発

図1に示すような収束レーザー光により3次元トラップされたコロイド粒子に交流電場を印加し、その変位を粒子の回折像を4分割フォトダイオードで電気信号として高精度検出(レーザー・インターフェロメトリー法)する光学系を開発した。印加電場と測定される複素変位の比から複素電気泳動移動度スペクトル測定が実現される。この際、電場と変位の間に比例関係が成立している線形応答領域では、印加電場として複数の正弦波電場を重ね合わせた信号を用いることで、周波数スペクトルの高速測定が可能となった。

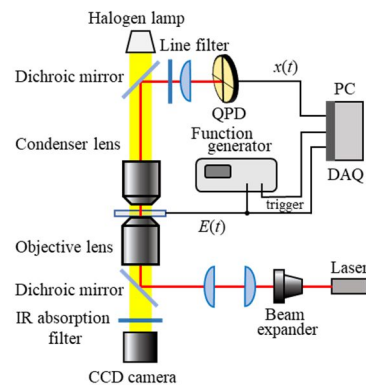


図1. 光トラップ交流電気泳動測定系。

#### (2) ホログラフィック顕微鏡を用いた粒子の3次元追跡とコロイドの物性評価

顕微鏡観察を用いた粒子追跡はその3次元変位の2次元射影により議論されており、3次元情報を得ることは困難である。例えば、顕微鏡焦点付近での粒子像のサイズ測定や強度測定からその位置情報が得られるが、広い高さ範囲での追跡は困難である。また、焦点高さを変化させて追跡を行う方法もあるが、高速度での位置測定は困難である。

本研究では顕微鏡の光源として単一波長の光源を用い、そのコヒーレンス範囲内で、入射光と散乱光との干渉により形成されるホログラム像の時間変化を観測し、その2次元像から3次元位置推定を行うホログラフィック顕微鏡の開発を行った(図2)。従来、ホログラム像から3次元位置を推定する方法としては、球状粒子に対する理論解である Lorenz-Mie 理論式を当てはめる方法が主に用いられてきた。この方法では、粒子位置以外に粒子サイズと粒子の屈折率の同時

測定が可能な点で、粒子特性評価法として有用性が注目されてきた。しかし、本研究では、Rayleigh- Sommerfeldの回折理論を用いて、得られた2次元像から任意の高さでの光場を再構築することで、三次元光場を数値的に再現し、その高光強度領域の重心として粒子位置を推定する方法を用いる。この方法では、複数の粒子の像が重なっていても、3次元光場ではそれらを分離可能な点に注目し、複数粒子の同時追跡を行える大きな利点がある。

#### 4. 研究成果

##### (1) 交流電気泳動スペクトル測定による粒子表面およびセル界面のゼータ電位の同時測定

開発された光トラップ交流電気泳動測定系を用いて測定された、直径1ミクロンのシリカ球状粒子の交流電気泳動移動度スペクトルの壁面からの高さ依存性を図3に示す。セルの中央部付近 ( $y=0$ ) での移動度スペクトルは低周波および高周波数では一定値に漸近するが、kHzの周波数帯域で緩和現象を示すことが明らかとなった。一方、セル表面近傍では低周波で移動度の符号逆転が観測された。さらに、Stokes近似を用いたNavier-Stokes方程式を用いて、セル界面電荷に起因する電気浸透流効果およびセルが閉じられていることにより誘起された逆方向の流れ、および粒子自身の電気泳動効果を考慮して計算される理論スペクトルが、図3の実線に示すように実験結果をよく再現することが明らかとなった。特にさまざまな高さのスペクトルを、共通の粒子のゼータ電位とセル表面のゼータ電位とを用いて統一的に説明することに成功した。

##### (2) アクティブマイクロレオロジーとしての応用

次に、現在用いている周波数域では粒子のゼータ電位に顕著な周波数依存性を示さないことを用いて、溶媒を水溶性高分子(ポリエチレンオキッド: PEO)水溶液に換えることで、高分子溶液の粘弾性スペクトルの定量的評価に応用した。その結果、図4に示すように、高分子分散系では得られる周波数スペクトルが周波数に対して単調に増加し、粘性(移動度の実部)に顕著な周波数依存性が表れることが確認された。そこで、水溶液中の移動度から推定される粒子の電荷量を用いてその広帯域複素粘弾性スペクトル(図4の内挿図)の測定に成功した。

さらに、本研究では得られるスペクトルの周波数分散が広い周波数帯域に及び、全スペクトル測定に時間を要する欠点を補うために、対数スケールの周波数軸で離散的な周波数を持つ正弦波電場の重ね合わせ信号を入力として用いることで、高速のスペクトル測定が可能であることを確認した。

##### (3) ホログラフィック顕微鏡を用いた粒子の3次元追跡とコロイドの物性評価

ホログラフィック顕微鏡では多くの場合、照明としてレーザー光が用いられるが、そのコヒーレンス性が極めて高く、バックグラウンドノイズの原因となるため、本研究では波長幅が狭いLEDを光源として用いた。この場合、光源のコヒーレンス長(本研究では20mm程度)の範囲で高精度の3次元位置測定を実現した。図2に実験系の様子および得られた多粒子のホログラムを示す。開発された方法を用いて、(a)水溶液中を沈降しつつブラウン運動するコロイド粒子、(b)界面活性剤水溶液中を自己駆動する液晶液滴、(c)交流電場を重力と垂直あるいは水平方向に印加した荷電コロイド粒子系に適用して、その3次元追跡から以下のような知見を得た。

(a) 沈降するコロイド粒子からは粒子位置の平均2乗変位の時間変化の測定を行い、沈降速度および3次元拡散定数の同時測定を行った。

(b) 粒子内に複屈折を有する液晶液滴に対しても粒子追跡に成功し、液滴が直進しながら回転するらせん運動を示すことを直接観察することができた。

(c) 沈降する1粒子を追跡することで、様々な高さでの1粒子電気泳動移動度測定が可能となり、その高さ依存性から粒

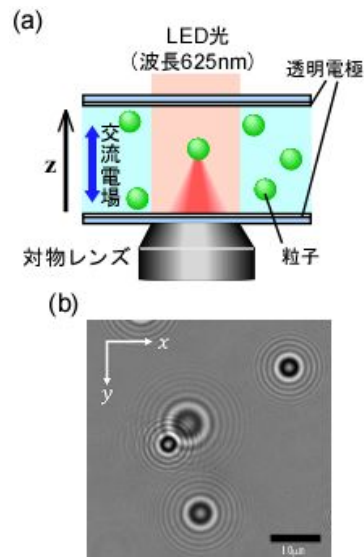


図2. (a)ホログラフィック顕微鏡の光学系 (b)多粒子ホログラム像。

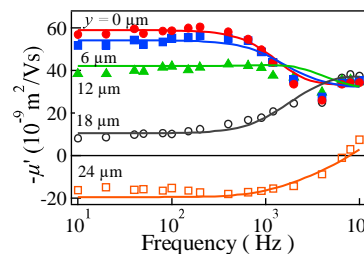


図3. 荷電コロイド粒子の電気泳動スペクトルの高さ  $y$  依存性。

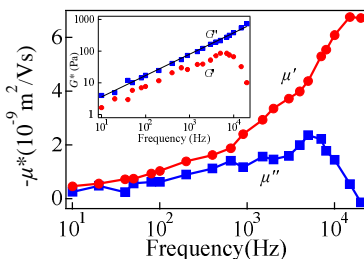


図4. PEO水溶液中での荷電コロイド粒子の電気泳動移動度スペクトルと粘弾性スペクトル(内挿図)。

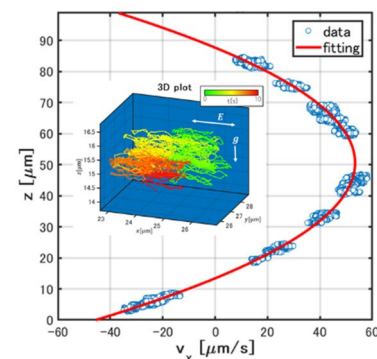


図5. 荷電コロイド単一粒子の電気泳動速度の高さ依存性。

子の電気泳動移動度と界面の移動度の同時測定に成功した（図5）。また、電場を鉛直方向に印加することで、壁面の効果を最小化してかつ広い周波数帯域での移動度測定が可能な方法を提案し、市販の装置で得られた平均移動度と一致する結果を得るとともに、その分散の同時測定に成功した。

## 5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計6件（うち査読付論文 5件/うち国際共著 0件/うちオープンアクセス 0件）

1. 著者名 Mariko Suga, Saori Suda, Masatoshi Ichikawa and Yasuyuki Kimura	4. 巻 97
2. 論文標題 Self-propelled motion switching in nematic liquid crystal droplets in aqueous surfactant solutions	5. 発行年 2018年
3. 雑誌名 Physical Review E	6. 最初と最後の頁 062703-1~-8
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1103/PhysRevE.97.062703	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -
1. 著者名 Keita Saito, Shogo Ookubo and Yasuyuki Kimura	4. 巻 14
2. 論文標題 Change in collective motion of colloidal particles driven by optical vortex with driving force and spatial confinement	5. 発行年 2018年
3. 雑誌名 Soft Matter	6. 最初と最後の頁 6037-6042
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1039/C8SM00582F	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -
1. 著者名 Toyokazu Ikeda, Haruka Eitoku and Yasuyuki Kimura	4. 巻 114
2. 論文標題 AC electrophoretic mobility of individual microscale colloidal particles measured using holographic video microscopy	5. 発行年 2019年
3. 雑誌名 Applied Physics Letters	6. 最初と最後の頁 153703-1~-4
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1063/1.5088723	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -
1. 著者名 Yasuyuki Kimura	4. 巻 86
2. 論文標題 Hydrodynamically induced collective motion of optically driven colloidal particles on a circular path	5. 発行年 2017年
3. 雑誌名 Journal of Physical Society of Japan	6. 最初と最後の頁 101003-1~-7
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.7566/JPSJ.86.101003	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 Kohei Iki and Yasuyuki Kimura	4. 巻 11141
2. 論文標題 AC electrophoretic mobility of an optically trapped colloidal particle	5. 発行年 2019年
3. 雑誌名 Proceedings of SPIE	6. 最初と最後の頁 77-1~2
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) なし	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 木村康之	4. 巻 2020年10月号
2. 論文標題 電気泳動光散乱法の基礎と展開	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 ソフトマター	6. 最初と最後の頁 10-13
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) なし	査読の有無 無
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

〔学会発表〕 計20件 (うち招待講演 3件 / うち国際学会 5件)

1. 発表者名 M. Suga, S. Kobayashi, M. Ichikawa and Y. Kimura
2. 発表標題 Switching of Self-propelling Modes for Liquid Crystal Droplets in Surfactant Solution
3. 学会等名 International Liquid Crystal Conference 2018 (国際学会)
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 池田豊和、木村康之
2. 発表標題 外場下でのコロイド粒子の3次元運動追跡
3. 学会等名 日本物理学会2018年秋季大会
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 池田豊和、木村康之
2. 発表標題 ホログラフィック顕微鏡を用いた外場下でのコロイド粒子の3次元追跡
3. 学会等名 第69回コロイドおよび界面化学討論会
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 壹岐晃平、木村康之
2. 発表標題 交流電気泳動スペクトル測定法によるコロイド分散系の物性測定
3. 学会等名 第69回コロイドおよび界面化学討論会
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 壹岐晃平、木村康之
2. 発表標題 光トラップ交流電気泳動スペクトル測定法の開発
3. 学会等名 第69回コロイドおよび界面化学討論会
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 壹岐晃平、木村康之
2. 発表標題 光トラップ交流電気泳動測定法によるコロイド分散系の物性測定
3. 学会等名 第8回ソフトマター研究会
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 池田豊和、木村康之
2. 発表標題 ホログラフィック顕微鏡を用いたコロイド単粒子の交流易動度測定
3. 学会等名 第8回ソフトマター研究会
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 村上幸輝・壹岐晃平、木村康之
2. 発表標題 光トラップを用いたコロイド粒子の交流電気応答測定
3. 学会等名 日本物理学会九州支部例会
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 壹岐晃平、木村康之
2. 発表標題 AC electrophoretic mobility of an optically trapped colloidal particle
3. 学会等名 Soft Matter Physics: from the perspective of the essential heterogeneity (国際学会)
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 池田豊和、木村康之
2. 発表標題 AC electrophoretic mobility of a single colloidal particle studied by holographic video microscopy
3. 学会等名 Soft Matter Physics: from the perspective of the essential heterogeneity (国際学会)
4. 発表年 2018年



1. 発表者名 壹岐晃平、村上幸輝、木村康之
2. 発表標題 光トラップされたコロイド粒子の交流電場応答
3. 学会等名 日本物理学会第74回年次大会
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 池田豊和、木村康之
2. 発表標題 ホログラフィック顕微鏡を用いた希薄コロイド分散系の3次元物性測定
3. 学会等名 第68回コロイドおよび界面化学討論会
4. 発表年 2017年

1. 発表者名 木村康之
2. 発表標題 Non-equilibrium fluctuation and self-organized structure in driven colloidal systems
3. 学会等名 International Symposium on Fluctuation and Structure out of Equilibrium 2017 (招待講演) (国際学会)
4. 発表年 2017年

1. 発表者名 池田豊和、木村康之
2. 発表標題 3-dimensional tracking of colloidal particles by holographic microscopy
3. 学会等名 International Symposium on Fluctuation and Structure out of Equilibrium 2017 (国際学会)
4. 発表年 2017年

1. 発表者名 斎藤圭太、壺岐晃平、木村康之
2. 発表標題 荷電コロイド粒子の動的電気応答測定
3. 学会等名 第113回日本物理学会九州支部例会
4. 発表年 2017年

1. 発表者名 壺岐晃平、斎藤圭太、木村康之
2. 発表標題 複雑液体の局所力学測定
3. 学会等名 第113回日本物理学会九州支部例会
4. 発表年 2017年

1. 発表者名 木村康之
2. 発表標題 光を用いたソフトマターのマイクロ物性測定と制御
3. 学会等名 量子エレクトロニクス研究会（招待講演）
4. 発表年 2017年

1. 発表者名 池田豊和、木村康之
2. 発表標題 ホログラフィック顕微鏡を用いたコロイド分散系の3次元ダイナミクス
3. 学会等名 日本物理学会第73回年次大会
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 満生明輝、池田豊和、木村康之
2. 発表標題 ホログラフィック顕微鏡を用いた多粒子3次元追跡
3. 学会等名 第125回日本物理学会九州支部例会
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 木村康之
2. 発表標題 電気泳動光散乱法の基礎
3. 学会等名 第31回散乱研究会(招待講演)
4. 発表年 2019年

〔図書〕 計0件

〔産業財産権〕

〔その他〕

九州大学物理学科複雑物性基礎研究室HP <a href="http://sm.kyushu-u.ac.jp/~kimuralab/">http://sm.kyushu-u.ac.jp/~kimuralab/</a> 九大理学研究院広報 <a href="https://www.sci.kyushu-u.ac.jp/koho/topics/topics_181127_2.html">https://www.sci.kyushu-u.ac.jp/koho/topics/topics_181127_2.html</a> 九州大学理学研究院物理学部門複雑物性基礎研究室HP <a href="https://sm.phys.kyushu-u.ac.jp/~kimuralab/">https://sm.phys.kyushu-u.ac.jp/~kimuralab/</a>
--

6. 研究組織

	氏名 (ローマ字氏名) (研究者番号)	所属研究機関・部局・職 (機関番号)	備考
研究協力者	齋藤 圭太  (Saito Keta)	九州大学・大学院理学府・大学院修士課程学生	

6. 研究組織（つづき）

	氏名 (ローマ字氏名) (研究者番号)	所属研究機関・部局・職 (機関番号)	備考
研究協力者	壹岐 晃平  (Iki Kohei)	九州大学・大学院理学院・大学院修士課程学生	
研究協力者	池田 豊和  (Ikeda Toyokazu)	九州大学・大学院理学院・大学院修士課程学生	

7. 科研費を使用して開催した国際研究集会

〔国際研究集会〕 計0件

8. 本研究に関連して実施した国際共同研究の実施状況

共同研究相手国	相手方研究機関