

令和 3 年 5 月 13 日現在

機関番号：14301

研究種目：若手研究

研究期間：2018～2020

課題番号：18K13687

研究課題名(和文) ナノ界面に誘起される流れを用いた微粒子の秩序構造形成と選択的粒子輸送法の開発

研究課題名(英文) Pattern formation and selective transport of tiny particles using a flow in a nanoscale interface

研究代表者

辻 徹郎 (Tetsuro, Tsuji)

京都大学・情報学研究科・准教授

研究者番号：00708670

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 3,200,000円

研究成果の概要(和文)：本研究では、マイクロ・ナノ粒子群の運動制御およびその結果として発現する粒子分布のパターン形成や選択的な粒子輸送方法について、マイクロ流体実験やその数理モデルのシミュレーションをおこなった。制御方法としては、流体中の局所的な温度勾配を利用した運動である熱泳動を利用した。熱泳動は、粒子表面近傍の微小スケールにおける熱流動場が一因となって生じる物質輸送現象である。研究成果として、流れ場による抵抗と熱泳動力のつり合いを利用したマイクロ流体デバイス中の粒子分布パターン形成、分岐型マイクロ流路における粒子の選別、熱泳動力と光圧のバランスを利用した粒子選択的な光ピンセットの開発などが得られた。

研究成果の学術的意義や社会的意義

本研究で対象とした微小粒子はその代表的な大きさが100 nm~10 μm程度であり、身近な例ではウイルス、細胞、エアロゾルが挙げられる。これらの微小粒子の運動を精密に制御する方法や、あるいは複数種類の粒子の混合物からターゲットのみを選別する方法は、新しい粒子検出・識別技術の開発に有益である。本研究では、微小系における熱流体力学分野で近年注目されている熱泳動現象を軸とした微小粒子のパターン化や選択的輸送方法を提案した。

研究成果の概要(英文)：In this research, we developed the method of controlling the motion of tiny particles dispersed in a fluid based on microfluidic experiments and numerical modelling. Using this method, we demonstrated the pattern formation of particle distribution and the selective particle transport. The principle of the method lies in a thermophoresis, the motion along the temperature gradient. Main outcomes are the pattern formation using the balance between the thermophoretic and fluid drag forces (Phys. Rev. Appl., 2018), the selective particle transport in a branched microfluidic channel (Micromachines, 2019), and the selective optical trapping using the balance between the optical and thermophoretic forces (Nanoscale, 2019).

研究分野：流体工学

キーワード：分子流体力学 熱泳動 ナノ粒子 光圧 ナノ界面 光渦 光熱効果 分離

様式 C - 19、F - 19 - 1、Z - 19 (共通)

1. 研究開始当初の背景

生体分子や量子ドットは 10~100 nm 程度、コロイド粒子は 10 nm ~10 μm 程度、細胞は 1~10 μm 程度の代表長を持つ。これらのナノ・マイクロ粒子の流体中における挙動解析は数々の先端的应用研究で重要な役割を果たし、その制御手法は基盤技術のひとつである。ナノ・マイクロ粒子の挙動制御に向けて、電気泳動・誘電泳動などの電氣的制御手法や、光ピンセットに代表される光学的制御手法が発展してきた。これらの手法の操作原理に立ち返ると、ターゲット粒子の電荷や誘電率など、バルク的な物性が重要であることが分かる。しかし、粒子サイズが小さくなるにつれ、Brown 運動が顕著になるとともに、ターゲット粒子に働く体積力に比べ表面力が支配的になる。つまり、ナノ・マイクロスケールでの粒子操作手法の展開には、ターゲット粒子に働く表面力の理解とその予測および評価手法の発展が重要と言える。

上記に述べた体積力を利用した操作手法に対し、表面力を利用した粒子操作手法として熱泳動が挙げられる。熱泳動は、流体中の温度勾配に起因する粒子運動であり、近年ナノ・マイクロ粒子の操作手法として注目されている。粒子と溶液の境界である固液界面には厚さ 0(1) nm~0(1) μm 程度の境界層 (e.g. 電気二重層)、すなわちナノ界面が形成され、その特性は粒子表面状態により決まる。ナノ界面の外場 (ここでは温度場) に対する応答の差異に着目することで、新たな制御自由度を有する粒子選択性の高いマニピュレーション技術の開発が期待される。

2. 研究の目的

本研究課題の核心をなす学術的「問い」は、ナノ界面の特性により発現するナノ・マイクロ粒子の挙動がどのような物理メカニズムにより特徴づけられるのか、である。上述した熱泳動のメカニズムのひとつに、ナノ界面の流体が温度勾配に起因する界面エネルギー分布を持つことによって生じるすべり流れとその反作用力である Marangoni 力が提案されている。しかし、その直接的な観察・計測は報告されていないため、ナノ界面と熱泳動特性の関係については未解決の点が多く、散見される種々の実験結果を統一的に説明し応用研究へと活かす素地を作ることが求められている。そこで、本研究の目的を、「ナノ界面に誘起される流れにより発現するマクロな秩序構造の解明と選択的ナノ粒子輸送手法への応用」とし、これに向けて下記 3 つの課題を設定する。

- (1) ナノ界面における流体運動の解明と粒子運動への影響
- (2) ナノ・マイクロ粒子の自己集合化とパターン形成によるマクロ秩序構造の解析
- (3) ナノ・マイクロ粒子の選択的操作手法および輸送法の提案と実践

課題(1)では、ナノ・マイクロ粒子の固液界面における流体挙動の解明に向け、実験観察・計測による検証と定量的評価を目的とする。課題(2)では、表面力に起因する粒子運動の結果として発現する自己集合化およびパターン形成について調べる。課題(3)では、課題(1)で得られる知見を基盤とした、ナノ・マイクロ粒子の新奇な選択的操作・輸送手法を提案する。ここでは、従来主に用いられている電氣的・光学的粒子操作手法とは全く異なる表面力駆動型の手法を構築する。つまり、バルク的な性質が類似した複数種類のナノ・マイクロ粒子の混合物の中から、表面の性状が異なる粒子のみを選択的に選別・収集することを目指す。

3. 研究の方法

本研究では、機能的なナノ・マイクロ流路の作製と、流体中のナノ・マイクロ粒子の顕微鏡観察を軸とした実験的研究を中心に進める。特に、レーザー集光を用いた光圧による粒子トラップ、光圧の散乱力成分に駆動される粒子流れの計測、レーザーが溶媒に吸収されることによる光熱効果など、微小流体系における光学技術を採用する。また、微細加工技術によるマイクロヒーターを利用した局所温度制御技術やマイクロ分岐流路を用い、粒子の選択的輸送方法について検討する。数理モデルを適宜開発しシミュレーション結果を実験結果と比較していくことで、上記 3 課題に多角的に取り組む。

4. 研究成果

本研究で得られた主要な結果に関して下記に紹介する。

(1) T. Tsuji, et al., Thermophoretic manipulation of micro- and nanoparticle flow through a sudden contraction in a microchannel with near-infrared laser irradiation, *Physical Review Applied* 10, 044005 (2018)

水に対する吸収係数が大きい波長 1480 nm の近赤外レーザーを集光することで、マイクロスケールの熱源を流路中に形成する。これにより、1 K/ μm 程度の強い温度勾配が流体中に起こり、その方向にそって粒子に熱泳動力が働く。この研究では、マイクロオリフィスに流入する流れによる抵抗と熱泳動力の拮抗を利用し、課題(2)で設定したナノ・マイクロ粒子の半円状パターン形成を実現することが出来た。また、熱泳動力が粒子種に依存することを利用して、マイクロオリフィスを通過する粒子を選別することに成功し、これは課題(3)においても重要な成果である。

(2) T. Tsuji, et al., Separation of nano- and microparticle flows using thermophoresis in branched microfluidic channels, *Micromachines* 10, 321 (2019)

微細加工技術を用いて作製したマイクロヒーターによる熱泳動力と分岐マイクロ流路を用い

て、マイクロ流路中のナノ粒子流から、ナノ粒子のみを除去する実験を行った。蛍光観察により局所的な粒子濃度の時間発展を計測し、簡易的な数値モデルで実験結果を定性的に説明することが出来た。これは、課題(3)に関する応用的側面を実証できたことに相当する。

(3) T. Tsuji, et al., Flow with nanoparticle clustering controlled by optical forces in quartz glass nanoslits, *Microfluidics and Nanofluidics* 23, 126 (2019)

流路高さがおよそ 600 nm のガラス製ナノ流路を作製した。このナノ流路中に直径が 500 nm の粒子を分散させ、それらを光圧により捕捉する実験を行った。ナノ粒子は光圧によりクラスタ化するが、流路高さの制限のため、クラスタは 2 次元的に成長する。この研究では、クラスタの成長の様子を評価し、さらに、レーザーの On/Off によってナノ流路中のクラスタの輸送を制御できる可能性を示した。ナノ流路作製の歩留まりが悪く、粒子選択性に関する系統的調査には至らなかったが、本研究によって、課題(2)および(3)の研究内容がサブミクロンスケールの流路でも適用できることが分かった。

(4) T. Tsuji, et al., Three-dimensional observations of particle flows in microchannels induced by photothermal effects, *Proceedings of SPIE* 11141, 139-141 (2019)

マイクロ流路中に分散する粒子の光圧によるトラップや運動は広く研究されているが、マイクロ流路の構造上、その様子を 3 次元的に観察することは困難である。この研究では、粒子がクラスタ化したり散乱力で輸送される様子を 3 次元的に観察することを目的とし、2 方向観察システムを構築した。これにより、レーザー入射方向とそれに垂直な方向から現象を観察することが出来た。入射レーザーの集光スポット径サイズやマイクロ流路高さによって、光圧、熱泳動力、熱対流による流体抵抗うち卓越する力が異なることを実験的に示すことができた。これは課題(2)における実験手法開発に相当する。

(5) K. Setoura, T. Tsuji, et al., Opto-thermophoretic separation and trapping of plasmonic nanoparticles, *Nanoscale* 11 21093-21102 (2019)

一般に、粒子サイズが小さいほど粒子に働く光圧は小さい。そのため、小さい粒子と大きい粒子が混合した溶液中において、小さい粒子のみを選択的に光トラップすることは困難である。この研究では、粒子に働く光圧と熱泳動力の大きさが、粒子のサイズや熱伝導率に依存することを利用し、混合ナノ粒子分散液から特定の種類のみを光トラップする手法を提案した。具体的には、サイズの異なるコアシェル型ナノ粒子の混合溶液において、熱泳動力(光圧と逆向き)の大きさが粒子サイズとともに増大することを利用した。これにより、トラップスポットからサイズの大きい粒子を選択的に排除し、小さい粒子のみのトラップを可能とした。本研究により、ナノ粒子の熱伝導率は熱泳動力に影響することが明らかになり、課題(1)(3)に貢献できる成果が得られたと言える。なお、本研究は *Nanoscale* 誌の Inside Front Cover に選出された。

(6) C. Hosokawa, T. Tsuji, et al., Convection dynamics forced by optical trapping with a focused laser beam, *The Journal of Physical Chemistry C* 472 625-635 (2020)

光ピンセットの実験において、集光径よりはるかに長い空間スケールで、集光点への粒子輸送が見られることが知られている。従来、この大規模な粒子輸送は、水がレーザーを吸収し発熱することによる熱対流に起因すると考えられていた。これに対し本研究では、直径 1 μm 程度の粒子分散液について、集光レーザーの散乱力成分により粒子がレーザー伝搬方向に押し出され流体を引きずる効果が支配的であることを、数値計算と実験により示した。ナノ・マイクロ粒子の運動が流体に及ぼす影響は無視されることが多いが、本研究によりその重要性が明らかになった。このような大規模粒子輸送はナノ・マイクロ粒子の自己集合化やパターン形成を加速させるため、課題(2)において進展があったと言える。

(7) T. Tsuji, et al., Effect of hydrodynamic inter-particle interaction on the orbital motion of dielectric nanoparticles driven by an optical vortex, *Nanoscale* 12, 6673-6690 (2020)

通常のガウシアンビームを用いると、集光スポットを中心とした粒子クラスタが形成される。ここでは、ガウシアンビームに位相変調を施したラゲル・ガウシアンビーム(軌道角運動量を有する光渦の一種)により、リング状に粒子を捕捉する。軌道角運動量によりトラップされた粒子は公転運動を行うが、複数の粒子がトラップされている場合、粒子間の流体力学的相互作用のため、粒子数の増加とともに公転速度が増大する。本研究では、このことを実験および数値シミュレーションにより明らかにした。ナノ界面の物理に迫るには至っていないが、ナノ粒子においても流体力学的な相互作用が重要であることを示すことが出来ており、課題(1)について進展があったと言える。なお、本研究は *Nanoscale* 誌の Inside Back Cover に選出された。

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計8件（うち査読付論文 8件/うち国際共著 0件/うちオープンアクセス 5件）

1. 著者名 Tsuji Tetsuro, Matsumoto Yuki, Kugimiya Ryo, Doi Kentaro, Kawano Satoyuki	4. 巻 10
2. 論文標題 Separation of Nano- and Microparticle Flows Using Thermophoresis in Branched Microfluidic Channels	5. 発行年 2019年
3. 雑誌名 Micromachines	6. 最初と最後の頁 321 ~ 321
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.3390/mi10050321	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスとしている (また、その予定である)	国際共著 -
1. 著者名 Setoura Kenji, Tsuji Tetsuro, Ito Syoji, Kawano Satoyuki, Miyasaka Hiroshi	4. 巻 11
2. 論文標題 Opto-thermophoretic separation and trapping of plasmonic nanoparticles	5. 発行年 2019年
3. 雑誌名 Nanoscale	6. 最初と最後の頁 21093 ~ 21102
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1039/C9NR05052C	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 Tsuji Tetsuro, Matsumoto Yuki, Kawano Satoyuki	4. 巻 23
2. 論文標題 Flow with nanoparticle clustering controlled by optical forces in quartz glass nanoslits	5. 発行年 2019年
3. 雑誌名 Microfluidics and Nanofluidics	6. 最初と最後の頁 126 1 ~ 11
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1007/s10404-019-2287-x	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスとしている (また、その予定である)	国際共著 -
1. 著者名 Tsuji Tetsuro, Nakatsuka Ryoji, Nakajima Kichitaro, Doi Kentaro, Kawano Satoyuki	4. 巻 12
2. 論文標題 Effect of hydrodynamic inter-particle interaction on the orbital motion of dielectric nanoparticles driven by an optical vortex	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 Nanoscale	6. 最初と最後の頁 6673 ~ 6690
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1039/C9NR10591C	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスとしている (また、その予定である)	国際共著 -

1. 著者名 Hosokawa Chie, Tsuji Tetsuro, Kishimoto Tatsunori, Okubo Takumi, Kudoh Suguru N., Kawano Satoyuki	4. 巻 124
2. 論文標題 Convection Dynamics Forced by Optical Trapping with a Focused Laser Beam	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 The Journal of Physical Chemistry C	6. 最初と最後の頁 8323 ~ 8333
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1021/acs.jpcc.9b11663	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 T. Tsuji, Y. Sasai, S. Kawano	4. 巻 10
2. 論文標題 Thermophoretic Manipulation of Micro- and Nanoparticle Flow through a Sudden Contraction in a Microchannel with Near-Infrared Laser Irradiation	5. 発行年 2018年
3. 雑誌名 Physical Review Applied	6. 最初と最後の頁 044005 1-18
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1103/PhysRevApplied.10.044005	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスとしている (また、その予定である)	国際共著 -

1. 著者名 T. Tsuji, K. Doi, S. Kawano	4. 巻 未定
2. 論文標題 Modeling of single-particle translocation through a low-aspect-ratio nanopore	5. 発行年 2019年
3. 雑誌名 Journal of Biomechanical Science and Engineering	6. 最初と最後の頁 18-00539 1-10
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1299/jbse.18-00539	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスとしている (また、その予定である)	国際共著 -

1. 著者名 F. Nito, T. Shiozaki, R. Nagura, T. Tsuji, K. Doi, C. Hosokawa, and S. Kawano	4. 巻 122
2. 論文標題 Quantitative Evaluation of Optical Forces by Single Particle Tracking in Slit-like Microfluidic Channels	5. 発行年 2018年
3. 雑誌名 The Journal of Physical Chemistry C	6. 最初と最後の頁 17963-17975
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1021/acs.jpcc.8b02701	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 -

〔学会発表〕 計15件（うち招待講演 1件 / うち国際学会 5件）

1. 発表者名 T. Tsuji, T. Nakamoto, and S. Kawano
2. 発表標題 Three-dimensional observations of particle flows in microchannels induced by photothermal effects
3. 学会等名 The 6th Optical Manipulation and Structured Materials Conference (国際学会)
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 R. Nakatsuka, T. Tsuji, T. Tsujimura, R. Nagura, K. Doi, and S. Kawano
2. 発表標題 In-plane orbital motion of particles in microchannels induced by optical vortices
3. 学会等名 The 6th Optical Manipulation and Structured Materials Conference (国際学会)
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 T. Tsuji and S. Kawano
2. 発表標題 Concentration evaluation of micro- and nanoparticles by laser-induced thermophoresis
3. 学会等名 The International Symposium on Plasmonics and Nanophotonics (国際学会)
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 T. Tsuji and S. Kawano
2. 発表標題 Selective control of particle flows through microchannel contractions by using laser-induced thermophoresis
3. 学会等名 The 72st Annual Meeting of the American Physical Society's Division of Fluid Dynamics (国際学会)
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 辻徹郎, 松本祐貴, 川野聡恭
2. 発表標題 真空紫外光を用いたガラス製ナノスリット流路の作製
3. 学会等名 日本機械学会年次大会
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 辻徹郎, 笹井雄太, 川野聡恭
2. 発表標題 光熱効果によるマイクロ流路内の選択的粒子操作
3. 学会等名 日本流体力学会年会
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 辻徹郎
2. 発表標題 高クヌッセン数流れにおける移動境界および連成問題の数理と応用に関する研究
3. 学会等名 日本機械学会第97期流体工学部門講演会(招待講演)
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 Tetsuro Tsuji, Satoyuki Kawano
2. 発表標題 On-chip microscale thermophoresis using MEMS-fabricated fluidic channel
3. 学会等名 Annual Meeting of the American Physical Society's Division of Fluid Dynamics (国際学会)
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 辻徹郎, 齊田奨, 釘宮諒, 川野聡恭
2. 発表標題 MEMS流体デバイスにおけるマイクロスケール熱泳動の応用
3. 学会等名 日本流体力学会年会2018
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 辻徹郎, 笹井雄太, 川野聡恭
2. 発表標題 レーザー誘起熱泳動を用いたオリフィス近傍でのマイクロ粒子流制御
3. 学会等名 日本機械学会年次大会
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 辻徹郎
2. 発表標題 熱泳動によるマイクロ・ナノ粒子流操作法の検討
3. 学会等名 「ナノ光熱変換」講演会
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 辻徹郎
2. 発表標題 流体中の温度勾配に駆動される微小粒子の運動
3. 学会等名 機能創成若手研究会
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 瀬戸浦健仁, 辻徹郎, 伊都将司, 川野聡恭, 宮坂博
2. 発表標題 光圧と熱泳動によるプラズモニックナノ粒子のマニピュレーション
3. 学会等名 第66回応用物理学会春季学術講演会
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 松本祐貴, 釘宮諒, 辻徹郎, 土井謙太郎, 川野聡恭
2. 発表標題 分岐流路におけるマイクロ熱泳動を用いた粒子流制御
3. 学会等名 第9回マイクロ・ナノ工学シンポジウム
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 大久保匠, 辻徹郎, 土井謙太郎, 川野聡恭
2. 発表標題 レーザー照射によるナノ粒子流制御とベイズ最適化
3. 学会等名 第9回マイクロ・ナノ工学シンポジウム
4. 発表年 2018年

〔図書〕 計0件

〔産業財産権〕

〔その他〕

個人ホームページ https://tetsurotsuji.com/

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
--	---------------------------	-----------------------	----

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
---------	---------