

科学研究費助成事業 研究成果報告書

平成 27 年 6 月 17 日現在

機関番号：14301

研究種目：挑戦的萌芽研究

研究期間：2013～2014

課題番号：25630066

研究課題名(和文) 蛍光標識法を用いたマイクロ流路内粘弾性流体流れにおける高分子運動計測

研究課題名(英文) Measurements of Polymer Motions in Microchannel Viscoelastic Fluid Flows using Fluorescent Labeling Method

研究代表者

巽 和也 (Tatsumi, Kazuya)

京都大学・工学(系)研究科(研究院)・准教授

研究者番号：90372854

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 3,100,000円

研究成果の概要(和文)：本研究は、流動中の高分子水溶液内の高分子の分子量、濃度、配向状態の評価を行うために、高分子の蛍光標識を行い、その蛍光特性を観察して高分子状態を測定することを試みた。さらに、同じく高分子状態の計測を行うために高分子水溶液について誘電分光計測を、静止流体用の平行平板電極とマイクロ流路の上下壁に付設したマイクロ電極を用いて測定を行った。蛍光標識では単体の高分子の蛍光観察は可能だったが、流動中では分布を識別するのが困難であり、現在HPamを用いた測定を試みている。また、誘電分光測定では、誘電緩和の周波数で高分子状態を識別できることを示したが、マイクロ流路内の測定では外乱が多いため機器を改善中である。

研究成果の概要(英文)：Fluorescent marking of polymers solved in fluids was conducted to evaluate the polymer conditions in fluids such as molecular weight, concentration and orientation. Further, to measure the same polymer characteristics, dielectrophoretic spectroscopy of the polymer solution was performed using parallel plate type electrodes designed for stationary fluids and micro-electrodes attached to the top and bottom walls of the microchannel. In the fluorescent labeling case, the single polymer molecule was visualized reasonably, however, there was some difficulties in measuring their distributions in fluid flows. We are now trying to apply HPam to solve this problem. On the other hand, the polymer characteristics could be measured based on the frequency the dielectric relaxation occurs. Still, measurement in microchannel flows incurs noticeable noise and we are now improving the experimental apparatus.

研究分野：伝熱工学

キーワード：高分子計測 粘弾性流体流れ 蛍光標識 誘電分光 マイクロ流路 分子量計測 濃度計測

1. 研究開始当初の背景

高分子溶液流れは、化学工学・熱工学・生物工学・医療工学の分野において、工業的に極めて幅広く取り扱われる。この溶液は、粘性と弾性の両方を持つ粘弾性流体に代表されるように、非ニュートン性を示すため、その流動特性は非常に特異で複雑である。流体の粘弾特性は、流れに伴う溶液中の高分子の伸縮(「もつれ」と「伸張」)と配向運動により発生するが、両者の関係と運動機構の解明は従来の測定手法では困難であり、明らかにされていない。そのため、基礎・核心的な情報である流れの中における高分子の状態に関する計測技術の開発が求められている。

2. 研究の目的

本研究は、マイクロ流路内計測技術と蛍光標識技術を応用・改良することで、高分子溶液中の高分子を蛍光標識(可視化)する手法を開発する。さらに、誘電分光法を用いた高分子水溶液の誘電特性計測技術の開発を行う。これらに基づき、マイクロ流路内の高分子溶液(非ニュートン流体・粘弾性流体)流れにおける高分子の状態と、その伸縮および配向運動が測定可能である、新しい計測技術の開発を行うことを目的とする。これらの手法により、流路内の高分子の様子を、はじめてリアルタイムに測定することで、高分子溶液の流動特性と高分子運動に関する詳細な検討と新たな知見の収集を行う。

3. 研究の方法

蛍光標識法では、粘弾性流体(高分子溶液)内の高分子の蛍光標識の技術を確立するために、各溶液における高分子の構造に応じて、それぞれの官能基に結合可能な蛍光分子やモノマーの選択と高分子鎖における結合箇所、そして化学的結合手法(プロセス)の検討を行う。また、蛍光標識された高分子の分離と溶液中の濃度調整の手法を検討する。マイクロ流路における高分子溶液(粘弾性流体:ポリアクリルアミド水溶液)流れにおける高分子の伸縮と配向運動(状態)における蛍光標識の計測では、個々の高分子の蛍光画像撮影が可能な光学計測システムの構築と測定と流体物性測定を行う。

誘電分光計測では、静止流体計測で用いる平行平板電極と流動条件下の計測で用いるマイクロ電極付設流路を製作し、インピーダンスアナライザーを用いて誘電緩和現象を測定する。高分子特性の評価では、高分子濃度と分子量を変化させて計測を行う。

これらにより、流れの中における高分子の状態と、流れ場および流体の持つ粘弾特性との関係を明らかにすることを試みる。

4. 研究成果

4.1 蛍光観察結果

蛍光標識では、オフマン分解を用いてポリ

アクリルアミドのアミド基をカルボキシル基に変換し、そこに蛍光標識を試みた。蛍光標識は可能であったが、標識位置と分子ごと蛍光標識量の情報が不足しており、高分子の状態と蛍光特性との関係および相関を明らかにすることは困難であった。

そこで現在はHPAm(Partially hydrolyzed polyarylamide)を用いて高分子合成と蛍光標識を行う予定である。これにより、各高分子の分子量と蛍光標識量の特性がより容易に出来るだけでなく、単一の高分子の状態も観察可能となり、高分子の伸長と蛍光強度や分布への対応が可能となる。これができるれば、流動場中でも、輝度値分布の時間平均値と変動成分を測定することで高分子特性が測定可能となる。

4.2 誘電分光測定結果

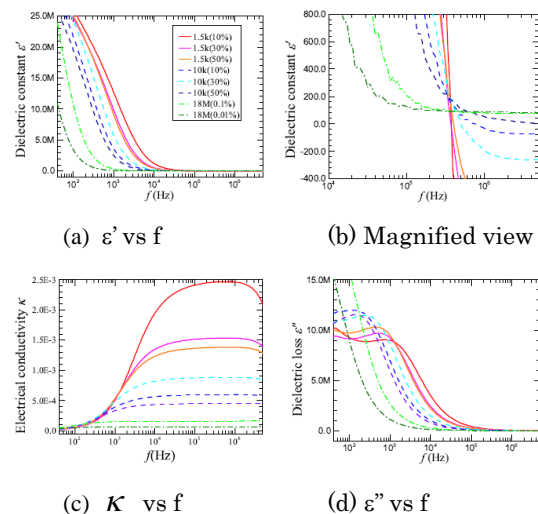


図1: 誘電分光測定での高分子ごとの周波数特性

図1に静止流体測定用セルを用いた場合で、比誘電率 ϵ' , 誘電率 κ , 誘電損失 ϵ'' の周波数分布を示す。図中に示す各条件は、高分子の分子量(1.5k, 10k, 18M)と濃度(0.01%, 0.1%, 10, 30, 50%)の結果をそれぞれ示す。低周波領域では、比誘電率と誘電損失はそれぞれ高い値を示すが、これは電極表面に形成される電気二重層と直流導電性の影響である。全体の測定精度を増加させるためには、これらの影響を低減することが今後の課題の一つである。

一方、ポリアクリルアミド 1.5k(10~50%)と10k(10~50%)の条件においては、図(c)では、それぞれの誘電損失はピークを持つ。このピークが位置する周波数をまとめたものが表1である。

分子量を比較した場合、10kの場合の方が低周波数側で緩和が生じていることが分かる。これは、A型双極子を持つ誘電緩和時間の特性と一致しており、その成分が高分子の誘電特性を示す支配的要因であると言える。

1.5kの場合では、緩和周波数は濃度の増加

に伴い低下している。De-Gennes の動的スクエーリング理論では、A 型双極子による誘電緩和周波数は、濃度の増加に伴い緩和周波数は低下するを示しているが、本測定はその内容と良く一致する。これらのことから、平行平板型電極セルを用いた測定の妥当性を確認できた。

表 1：各高分子水溶液の誘電緩和の周波数

	1.5k(10%)	1.5k(30%)	1.5k(50%)
f_r [Hz]	721	536	429
	10k(10%)	10k(30%)	50k(50%)
f_r [Hz]	122	237	141

次に、マイクロ流路に流体を充填し、静止流体条件下における誘電分光測定を行った場合の結果を図 2 に示す。測定セルを用いた図 1 の場合と同様に、電気二重層および直流導電率の影響により低周波数側での比誘電率と誘電緩和の値が大きい。

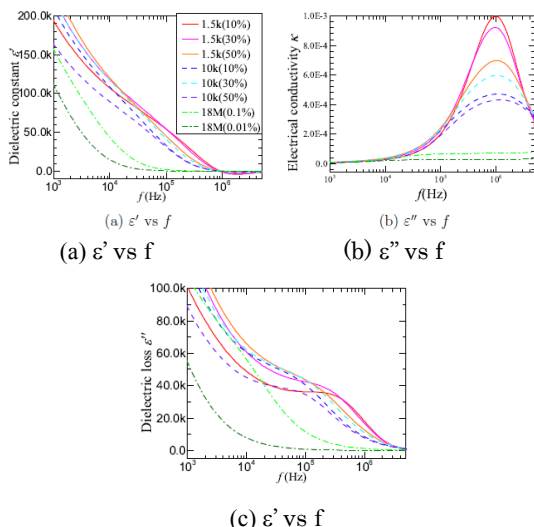


図 2：マイクロ流路を用いた場合の誘電分光計測による高分子水溶液の周波数特性。

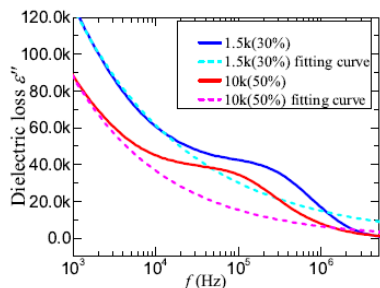


図 2：マイクロ流路を用いた場合の誘電分光計測による高分子水溶液の周波数特性。

一方、図(c)の誘電緩和が生じる周波数を特定するのが難しい。そこで、直流導電成分周波数のべき乗に比例すると仮定して、その成分を差し引いて検討を行った。その結果を図 3 に示す。図 3 では、分子量および濃度の緩和周波数に与える影響は、測定セルの場

合の図 1 と同じであり、電極寸法が減少しても定性的には測定が可能であることが示した。一方、定量的には、図 1 と図 3 の周波数は異なることから、普遍的校正値を求めるには課題が残る。

これらに対して、電極付設マイクロ流路を用いた実験では、明確な誘電緩和現象が観測できなかった。これは、電極のスケールがマイクロスケールとなることで電気二重層の影響がさらに顕著となり、測定感度が低下したためと考えられる。これらの解決方法として、電極表面にナノ構造を設けて表面積を増大させることで、電気二重層の影響を低減させ、想定感度を増加する方法を現在、試みている。

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕(計 2 件)

K. Tatsumi, K. Haizumi, K. Sugimoto, K. Nakabe, Analysis of Lymphocytes Deformation in Microchannel Flows using Compound Drop Model, International Journal Flow, Turbulence and Combustion, 2014 .

K. Tatsumi, Y. Katsumoto, R. Fujiwara, K. Nakabe, Numerical and Experimental Study on Measurements of Red Blood Cell Deformability in Micro-channel Using Electric Sensors, Sensors, Vol. 12, No. 8 (2012) 10566-10583 .

〔学会発表〕(計 4 件)

K. Kawano, K. Tatsumi, H. Shintani and K. Nakabe, Dielectrophoretic Alignment and Sorting of Microparticles in Microchannel Flows Using Ladder-Types Electrodes, Proc. 18th Int. Conference on Miniaturized Systems for Chemistry and Life Sciences (microTAS-2014), (2014), pp. , October 26-30, San Antonio.

K. Tatsumi, W. Nagasaka, K. Kanaiwa and K. Nakabe, Influences of Fluid Properties on Heat Transfer and Pressure Loss Characteristics of Viscoelastic Fluid Flow in Serpentine Channel, 8th World Conference on Experimental Heat Transfer, Fluid Mechanics, and Thermodynamics, (2013), June 16-20, Lisbon.

K. Tatsumi, Measurements of the Deformability of the Red Blood Cells in Microchannel using Electric Sensors, Novel devices applicable to bio/clinical/medical fields, (2012), November 2, Kagawa. 24-27, Sicily.

森秀輔, 巽和也, 中部主敬, 誘電分光法を用いたマイクロ流路内の高分子特性計測, 日本機械学会 関西支部第 90 期定時総会講演会, 2015/3/16.

〔図書〕(計 0件)

〔産業財産権〕

出願状況(計 0件)

取得状況(計 0件)

〔その他〕

該当無し

6. 研究組織

(1) 研究代表者

巽和也 (TATSUMI Kazuya)

京都大学・大学院工学研究科・准教授

研究者番号：90372854

(2) 連携研究者

中部主敬 (NAKABE Kazuyoshi)

京都大学・大学院工学研究科・教授

研究者番号：80164268