

## 科学研究費助成事業 研究成果報告書

令和 4 年 6 月 17 日現在

機関番号：32660

研究種目：挑戦的研究（萌芽）

研究期間：2019～2021

課題番号：19K21936

研究課題名（和文）光照射による微小液滴内微粒子のアクティブ集積

研究課題名（英文）Photo-induced active accumulation of particles in droplet

研究代表者

元祐 昌廣（Motosuke, Masahiro）

東京理科大学・工学部機械工学科・教授

研究者番号：80434033

交付決定額（研究期間全体）：（直接経費） 5,000,000円

研究成果の概要（和文）：液滴状態のコロイド分散液の乾燥過程において、レーザー光を用いて局所加熱を行うことで、液中に懸濁した微粒子が自発的に液滴周辺部に堆積する「コーヒーリング効果」を抑制し、任意位置へ粒子を集積させることができる技術を開発した。乾燥中の微小液滴内部の流動の制御が鍵となることを明らかに、物理モデルを構築してそのメカニズムを解明した。

研究成果の学術的意義や社会的意義

液滴の乾燥は、印刷、半導体、DNA/RNA分析やコーティングなど様々な分野で頻繁に見られる現象であり、その制御が強く求められている。本研究の成果は、自発的に形成されるコーヒーリング効果の抑制の中でも、均一集積ではなく、任意位置への能動的な集積を実現するものであり、極微細プリンテッドエレクトロニクスや生化学分析などの応用が期待される。

研究成果の概要（英文）：In the drying process of colloidal dispersion in a droplet, a novel technique to suppress the "coffee ring effect," in which suspended particles spontaneously accumulate at the edge of the droplet, by local heating using a laser beam, and to accumulate particles at an arbitrary position. The control of the flow inside the droplet during drying was found to be the key, and a physical model was constructed to elucidate the mechanism.

研究分野：マイクロ・ナノ熱流体工学

キーワード：微粒子 コーヒーリング効果 アクティブ粒子集積 界面

科研費による研究は、研究者の自覚と責任において実施するものです。そのため、研究の実施や研究成果の公表等については、国の要請等に基づくものではなく、その研究成果に関する見解や責任は、研究者個人に帰属します。

### 1. 研究開始当初の背景

印刷、半導体、DNA/RNA 分析やコーティングなど様々な産業分野において、液滴の乾燥に伴う懸濁粒子の自発的パターン形成は随所に見られ、固気液 3 相境界近傍での高速な蒸発と液滴の内部流動による粒子の輸送によって特徴付けられる現象である。微細加工などで動的濡れが制御可能となったことで現象の理解は急激に進み、2010 年代には抑制・制御する手法が見出されるようになってきたが、未だ研究の余地が多い。これまでの報告例である、異性質粒子の混入による接触線での粒子捕捉の阻害、気液界面の流れ利用、では、ほとんどが均一な集積パターン形成を目的としている。今後の極微細プリントエレクトロニクスや超高感度な非増殖生化学アッセイのためには、インクジェットで生成された pL オーダーの液滴内のコロイド微粒子の均一集積では空間分解能を 10  $\mu\text{m}$  程度までしか小さくできず、さらなる高精細化にはより局所的な任意形状への集積が必須である。

### 2. 研究の目的

液滴状態のコロイド分散液の乾燥過程では、液中に懸濁した微粒子が自発的に液滴周辺部に堆積する「コーヒーリング効果」が起きることが知られている。この現象は、固体・液滴接触線のピンギングと蒸発による移流が複雑に関与しており、近年、界面操作や異質粒子の混入などによる制御が試みられているが、堆積粒子パターンの均一化を目標としたものがほとんどであり、本研究では、より局所的かつアクティブな粒子集積を実現するべく、液滴表面の気液界面流動と蒸発流束を光照射によってコントロールすることで、より能動的にコロイド粒子の集積パターンを制御する、新たなアクティブ粒子集積技術を開発することを目的とする。

### 3. 研究の方法

- (1) pL~nL 液滴の乾燥過程の実験評価システムの構築
- (2) 乾燥過程における流動現象の可視化計測
- (3) 流動のモデル化および集積メカニズムの解明

### 4. 研究成果

(1) まず、コロイド粒子を加えた pL~nL サイズの液滴の乾燥過程を計測するための実験システムの構築を行った。倒立顕微鏡上に設置された滴下ステージ上で液滴を生成し、レーザ集光を行って液滴温度分布を変化させる。粒子を含まない液滴の乾燥過程における 3 相境界の挙動を、顕微観察により精密に評価した後に、10nm~10  $\mu\text{m}$  サイズのポリスチレン微粒子を添加した液滴の乾燥過程での粒子集積ダイナミクスを計測した。乾燥後の堆積粒子は電子顕微鏡を用いて評価した。ポリスチレン微粒子を含んだ液滴に光吸収剤を添加して、レーザ集光による局所加熱を行ったところ、乾燥中の微粒子パターンが加熱なしの場合と比べて全く異なることがわかった。条件を最適化することでコーヒーリングがほぼ消失して中央に集中するような粒子集積パターンが形成されることを見出した(図 1)。また、さらにシステムを拡張して、光変調素子を用いて点形状以外の集光パターンでの光照射を行うことができる光学システムの構築を行った。これによって、多点やその他形状への集積も可能となった。

(2) 直径 30nm のポリスチレン微粒子を含んだコロイド溶液に、流動可視化用に直径 500 nm の蛍光粒子を極微量添加して、レーザ光を中心に照射して、乾燥過程の、特に固体基板直上の流動を倒立顕微鏡によって可視化したところ、液滴の中央部へとナノ粒子が集積される中で、円形のだよみ領域を境として、中央部へと向かう内向きの流れと外縁部へと向う外向きの流れが存在することを明らかにした。また、混入させるナノ粒子について、直径を 30, 50, 100nm と変化させたところ、粒子径と集積パターンの相関は見られないことがわかった。

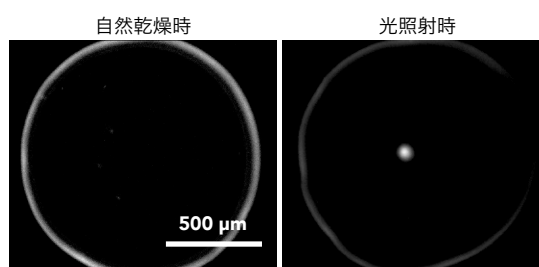


図 1 微粒子集積パターンの制御

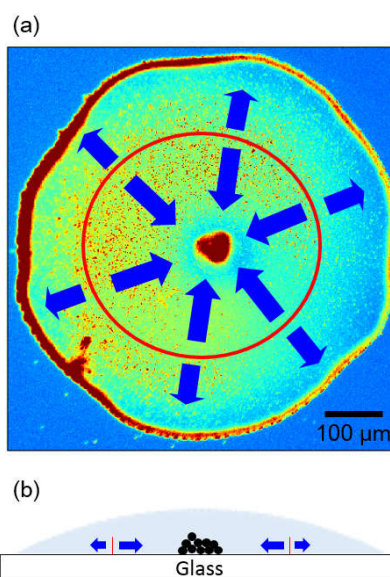


図 2 液滴内部における流れ場。  
(a) 底面からの可視化 (b) 模式図

(3) 上述した集積現象の物理モデルを考えるために、レーザ光照射に伴う局所的な蒸発の影響を考察した。ここでは、レーザ光照射下での液滴の乾燥過程のよどみ領域の変化に着目し、表面張力勾配に起因するマランゴニ対流よりは蒸発部分への連続体としての流入が支配的になっていることを、数理モデルを構築して簡易数値計算を実施することにより確認した。そして、コロイド粒子の集積について、光照射部分にのみ粒子を堆積でき、直径 2mm の液滴中のほとんどの粒子を 0.1mm 領域に集めるようなコントロールが可能であることを示した。

## 5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計7件（うち査読付論文 7件/うち国際共著 1件/うちオープンアクセス 1件）

1. 著者名 Yoshiyasu Ichikawa, Ryota Kikuchi, Ken Yamamoto, Masahiro Motosuke	4. 巻 60
2. 論文標題 Determining particle depth positions and evaluating dispersion using astigmatism PTV with a neural network	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 Applied Optics	6. 最初と最後の頁 6538-6546
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1364/AO.427571	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 Koki Okada, Kento Kodama, Ken Yamamoto, Masahiro Motosuke	4. 巻 23
2. 論文標題 Accumulation mechanism of nanoparticles around photothermally generated surface bubbles	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 Journal of Nanoparticle Research	6. 最初と最後の頁 188
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1007/s11051-021-05305-2	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 Puneet Jain, Takuya Aida, Masahiro Motosuke	4. 巻 12
2. 論文標題 Fluorescence anisotropy as a temperature sensing molecular probe using fluorescein	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 Micromachines	6. 最初と最後の頁 1109
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.3390/mi12091109	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 Fujimura Shunsuke, Yamamoto Ken, Motosuke Masahiro, Tsukahara Takahiro	4. 巻 51
2. 論文標題 Numerical study of thermocapillary-driven flow of a micro bubble on locally heated wall	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 Heat Transfer Research	6. 最初と最後の頁 1087 ~ 1104
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1615/HeatTransRes.2020032916	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 Ken Yamamoto, Ryosuke Sakurai, Masahiro Motosuke	4. 巻 14
2. 論文標題 Fully-automatic blood-typing chip exploiting bubbles for quick dilution and detection	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 Biomicrofluidics	6. 最初と最後の頁 24111
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1063/5.0006264	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 Ryosuke Sakurai, Ken Yamamoto, Masahiro Motosuke	4. 巻 144
2. 論文標題 Concentration-adjustable micromixer using droplet injection into a microchannel	5. 発行年 2019年
3. 雑誌名 Analyst	6. 最初と最後の頁 2780-2787
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1039/C8AN02310G	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 Lizhong Mu, Harunori N. Yoshikawa, Farzam Zoueshtiagh, Tetsuya Ogawa, Masahiro Motosuke, Ichiro Ueno	4. 巻 35
2. 論文標題 Quick liquid propagation on a linear array of micro-pillars	5. 発行年 2019年
3. 雑誌名 Langmuir	6. 最初と最後の頁 9139-9145
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1021/acs.langmuir.9b00882	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 該当する

〔学会発表〕 計40件 (うち招待講演 7件 / うち国際学会 15件)

1. 発表者名 Masahiro Motosuke
2. 発表標題 Microfluidic-based biosensing for sustainable human health
3. 学会等名 INTERFINISH (招待講演) (国際学会)
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 Koki Okada, Yoshiyasu Ichikawa, Masahiro Motosuke
2. 発表標題 Nanoparticle assembly by photothermal microbubble
3. 学会等名 INTERFINISH (国際学会)
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 Puneet Jain, Yoshiyasu Ichikawa, Masahiro Motosuke
2. 発表標題 Fluorescence anisotropy studies on BODIPY (pyromethene 546) dye as a novel thermal probe
3. 学会等名 2nd Asian Conference on Thermal Sciences (ACTS) (国際学会)
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 岡田 皓輝, 小玉 健人, 山本 憲, 市川 義康, 元祐 昌廣
2. 発表標題 金ナノ構造体の光熱変換によって生成するマイクロバブルによる粒子集積メカニズムの解明
3. 学会等名 第49回可視化情報シンポジウム
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 高木 森平, 山本 憲, 市川 賀康, 元祐 昌廣
2. 発表標題 液膜上エレクトロウェットティング(EWOLF)における液滴内部流動の可視化
3. 学会等名 第49回可視化情報シンポジウム
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 市川 賀康, 菊池 亮太, 山本 憲, 元祐 昌廣
2. 発表標題 非点収差PTVにおける機械学習を用いた粒子奥行位置の校正とその有効性
3. 学会等名 日本流体力学会 年会2021
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 山口 玲輔, Puneet Jain, 市川賀康, 元祐昌廣
2. 発表標題 蛍光異方性を用いた液体温度測定における粘性率の影響
3. 学会等名 第42回日本熱物性シンポジウム
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 市川 賀康, 元祐 昌廣
2. 発表標題 オイルフィルム内部の流動に基づいた摩擦力計測
3. 学会等名 日本流体力学会 年会2021
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 Puneet JAİN, 山口 玲輔, 市川 賀康, 元祐 昌廣
2. 発表標題 各種有機溶剤中における蛍光色素BODIPY (pyromethane 597) の温度依存性
3. 学会等名 第12回マイクロ・ナノ工学シンポジウム
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 千葉 大智, 小玉 健人, 岡田 皓輝, 市川 賀康, 元祐 昌廣
2. 発表標題 金ナノ構造体間の電場増強および光熱変換におけるギャップ効果
3. 学会等名 第12回マイクロ・ナノ工学シンポジウム
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 小玉 健人, 岡田 皓輝, 山本 憲, 市川 賀康, 元祐 昌廣
2. 発表標題 ホログラフィックプラズモン光ピンセットによるナノ粒子の操作
3. 学会等名 第31回MRS-J年次大会
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 元祐 昌廣
2. 発表標題 先端的流量評価のためのフレキシブル流れセンサー
3. 学会等名 第31回MRS-J年次大会
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 向優作, 山本憲, 元祐昌廣
2. 発表標題 疎水表面上に存在する極微細気泡の光学的観察
3. 学会等名 第57回日本伝熱シンポジウム
4. 発表年 2020年



1. 発表者名 小玉建人, 岡田皓輝, 山本憲, 元祐昌廣
2. 発表標題 金ナノ粒子のプラズモン加熱下でのナノ粒子の輸送現象
3. 学会等名 第57回日本伝熱シンポジウム
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 岡田 皓輝, 小玉 健人, 山本 憲, 元祐 昌廣
2. 発表標題 プラズモニックバブルによるコロイド粒子の集積
3. 学会等名 第48回可視化情報シンポジウム
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 向 優作, 山本 憲, 元祐昌廣
2. 発表標題 固液界面における極微細気泡の可視化と特性評価
3. 学会等名 第48回可視化情報シンポジウム
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 藤村 俊介, 山本 憲, 元祐 昌廣, 塚原 隆裕
2. 発表標題 局所加熱条件下マイクロスケールバブルにおける温度差マランゴニ対流の3次元数値解析
3. 学会等名 熱工学コンファレンス2020
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 元祐 昌廣
2. 発表標題 バイオアッセイのためのマイクロ流体技術
3. 学会等名 第30回日本MRS年次大会（招待講演）
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 Masahiro Motosuke, Reiya Ono, Kosuke, Shigeta, Ken Yamamoto
2. 発表標題 All-PDMS cytometer chip with embedded fiber waveguide and optimized 3D hydrodynamics focusing
3. 学会等名 The 32nd IEEE International Conference on Micro Electro Mechanical Systems (MEMS 2019) (国際学会)
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 Masahiro Motosuke, Sakie Takeda, Ken Yamamoto
2. 発表標題 Microfluidic thermometry based on fluorescent polarization analysis
3. 学会等名 Gordon Research Conference on Physics and Chemistry of Microfluidics (国際学会)
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 Masahiro Motosuke, Ken Yamamoto, Kensuke Fujita, Masumi Serita, Keisuke Kurita
2. 発表標題 Microfluidic handling and evaluation of nanoparticles in water
3. 学会等名 International Workshop on Environmental Engineering 2019 (IWEE2019) (国際学会)
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 Ken Yamamoto, Ryosuke Sakurai, Masahiro Motosuke
2. 発表標題 Droplet-actuated microchannel mixer
3. 学会等名 Droplets 2019 (国際学会)
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 Ken Yamamoto, Ryosuke Sakurai, Masahiro Motosuke
2. 発表標題 Blood-typing test with bubbles: multiphase systems is complicated, yet simple
3. 学会等名 Special Mini-Symposium on Dynamic Fluid Interfaces (招待講演) (国際学会)
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 Masahiro Motosuke
2. 発表標題 Electrokinetic microfluidic modulation of interfacial flow and reaction
3. 学会等名 Special Mini-Symposium on Dynamic Fluid Interfaces (招待講演) (国際学会)
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 Ken Yamamoto, Ryosuke Sakurai, Masahiro Motosuke
2. 発表標題 Fully-automated sensitive blood-typing chip
3. 学会等名 23rd International Conference on Miniaturized Systems for Chemistry and Life Science (micro-TAS) (国際学会)
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 Yuto Sasaki, Mio Mizoguchi, Ken Yamamoto, Masahiro Motosuke
2. 発表標題 Dielectrophoretic cancer-type sorting chip as advanced liquid biopsy
3. 学会等名 23rd International Conference on Miniaturized Systems for Chemistry and Life Science (micro-TAS) (国際学会)
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 Yuta Takase, Hayate Nakamura, Masahiro Motosuke, Harunori N. Yoshikawa, Farzam Zoueshtiagh, Lizhong Mu, Ichiro Ueno
2. 発表標題 Successive acceleration of macroscopic contact line of droplet induced by interaction with multiple pillars
3. 学会等名 Microfluidics 2019 (国際学会)
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 Masahiro Motosuke
2. 発表標題 Cell assay for evaluation of initial action of cell-cell adhesion using microfluidic platform
3. 学会等名 SelectBIO Microfluidics & Organ-on-a-Chip Asia 2019 (招待講演) (国際学会)
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 Shingo Ota, Ken Yamamoto, Masahiro Motosuke
2. 発表標題 Measurement of pressure field in microchannel flow from velocity data obtained from micro-PIV
3. 学会等名 72nd Annual Meeting of the American Physical Society 's Division of Fluid Dynamics (APS-DFD) (国際学会)
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 Sakie Takeda, Ken Yamamoto, Masahiro Motosuke
2. 発表標題 Characterization of liquid film temperature distribution based on fluorescent anisotropy
3. 学会等名 2nd Pacific Rim Thermal Engineering Conference (PRTEC) (国際学会)
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 栗田 啓佑, 藤田 健介, 山本 憲, 元祐 昌廣
2. 発表標題 金ナノ粒子濃縮デバイスの開発
3. 学会等名 化学とマイクロ・ナノシステム学会 第39回研究会
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 武田 咲希恵, 山本 憲, 元祐 昌廣
2. 発表標題 固体接合面間の液膜厚さ分布測定に関する検討
3. 学会等名 第56回日本伝熱シンポジウム
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 元祐 昌廣
2. 発表標題 マイクロ流体プラットフォームによる高度ナノバイオアッセイ
3. 学会等名 グリーンインキュベーションコンソーシアム 2019年度 第62回研究セミナー (招待講演)
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 山本 憲, 櫻井 亮介, 元祐 昌廣
2. 発表標題 液滴挙動による物質移動促進の可視化および物理学的考察
3. 学会等名 第47回可視化情報シンポジウム
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 山本憲, 元祐昌廣
2. 発表標題 ライデンフロスト現象における蒸気ポケットの観察
3. 学会等名 混相流シンポジウム2019
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 元祐 昌廣
2. 発表標題 光加熱される金ナノ粒子周りの物質輸送現象
3. 学会等名 第2回先進的ながれ研究会
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 市川 拓哉, フォン チュンリ, 山本 憲, 元祐 昌廣
2. 発表標題 接着分子結合量が白血球ローリングに与える影響の解明
3. 学会等名 日本機械学会2019年度年次大会
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 太田 慎吾, 山本 憲, 元祐 昌廣
2. 発表標題 マイクロ流れにおける速度場から圧力場を求める手法に関する検討
3. 学会等名 日本流体力学会 年会2019
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 佐々木勇斗, 溝口美生, 山本憲, 元祐昌廣
2. 発表標題 異種血中循環がん細胞分離回収デバイスの開発
3. 学会等名 化学とマイクロ・ナノシステム学会 第40回研究会
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 元祐 昌廣
2. 発表標題 微粒子挙動とせん断応力場の3次元評価
3. 学会等名 第29回日本MRS年次大会(招待講演)
4. 発表年 2019年

〔図書〕 計1件

1. 著者名 マイクロ・ナノ熱工学の進展編集委員会	4. 発行年 2021年
2. 出版社 エヌ・ティー・エス	5. 総ページ数 808
3. 書名 マイクロ・ナノ熱工学の進展(担当:第5編 計測, 第1章 光計測)	

〔産業財産権〕

〔その他〕

研究室webページ(日本語)  
<https://www.rs.tus.ac.jp/motlab/jp/index.html>  
研究室webページ(英語)  
<https://www.rs.tus.ac.jp/motlab/en/index.html>

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