

令和 3 年 6 月 4 日現在

機関番号：12501

研究種目：若手研究

研究期間：2019～2020

課題番号：19K14675

研究課題名（和文）マイクロデバイスで直接観察する多体ソフト粒子流のマイクロ構造とマクロレオロジー

研究課題名（英文）Microscopic structure and macroscopic flow properties of soft-particle dispersion observed under microfluidic platforms

研究代表者

伊藤 弘明 (Ito, Hiroaki)

千葉大学・大学院理学研究院・助教

研究者番号：10783186

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、マイクロ流体デバイスを用いた実験的手法により、界面活性剤により界面が安定化された油中水滴系について流動の時空間構造を理解することを目指した。マイクロ流体実験系を用いて、特に液滴密度に応じて現れる流れの時空間構造の解析を行うことで、密度の増加にしたがって集団的な流動の様相が質的に遷移することが確認された。また、このマイクロ流体デバイスによる液滴形成機構を用いて、2種の溶液を混合した際のゲル化をともなう液滴の形状制御も試み、液滴サイズに依存して主流の方向に対して前方から選択的にゲル化を開始させ異方的な形状の液滴が形成できることを示した。

研究成果の学術的意義や社会的意義

ミクロな粒子の懸濁液の流動現象は自然界から産業界にわたる様々な局面に現れる。本研究では、マイクロ流体デバイスを活用した実験により、粒子形状の効果や個々の粒子スケールのミクロなふるまいと懸濁液スケールのマクロなふるまいの関係を探り、その特徴の一端を明らかにした。これらの結果は、混相流の特異なふるまいの理解や制御を行う際の指針となる可能性が期待される。

研究成果の概要（英文）：In this study, we tried to understand the spatio-temporal flow structure of surfactant-stabilized aqueous microdroplets dispersed in an organic phase by experimental methods with microfluidic techniques. Through the analyses of the spatio-temporal flow structure observed by light microscopy, density-dependent qualitative transition of the collective flow behavior was confirmed. Using the mechanism with this microfluidic droplet generator, we also tried to control the anisotropic gelation of the microdroplet when the polymer aqueous solution is fused with ions in another aqueous solution. We found that the microdroplets with an anisotropic shape are generated depending on the droplet size through the gelation at the front of the flowing microdroplet under the flow in a microchannel.

研究分野：ソフトマター物理学

キーワード：マイクロ流路 油中水滴 流体相互作用

1. 研究開始当初の背景

多数のやわらかい粒子が液体中に分散した系は、自然界から産業界にわたり普遍的に現れる。そのような混相系に流動が生じるとき、分散粒子は溶媒液体に押し流されるとともに、粒子間で流体相互作用をしながら時々刻々と配置を変える。このとき、たとえ分散溶液全体のマクロなスケールで見た流れが定常であっても、分散粒子スケールのミクロな構造は変動し続けており、そのような時空間構造はマクロなスケールに現れるレオロジー特性にまで影響を与える。このような粒子分散溶液系の流動現象の原理を理解し、流動性を制御することは、基礎科学から産業応用にわたる大きな目標である。このような事情から粒子分散溶液系の流動性は盛んに研究が行われている[1]一方で、流動現象が駆動と散逸を含む非平衡過程であること、分散粒子が長距離相互作用する系であること、さらに粒子がやわらかく変形する場合には変形粒子と流体の連成問題になることなどの難しさがあり、その理解は不十分であった。

近年、非平衡条件下における多体粒子系の現象を捉える実験系の一つとして、擬2次元空間で流動する油中水滴多体系の研究が進み、流体力学的な長距離相互作用に由来する衝撃波伝搬[2]、異方的な速度ゆらぎ[3]、hyperuniformity と呼ばれる特徴的な空間構造[4]などが報告されている。このような系の解析では、流れ場として粒子遠方での解が近似的に採用されており、粒子の変形が顕著な場合や粒子密度が高い場合にはそれに加えて粒子の変形特性を考慮する必要がある。

2. 研究の目的

上記の背景から、本研究では擬2次元空間の定常流れの下で変形粒子が示す時空間構造やその性質を実験的に明らかにすることを目的とした。また、異方的な形状の液滴粒子の作製を目的に、同様のマイクロ流体デバイスによる液滴形成機構を利用してゲル化による液滴の変形形状制御も試みた。

3. 研究の方法

本研究では、界面活性剤により界面が安定化された油中水滴系をマイクロ流体デバイスにより均一かつ大量に作製し、それらの流動を観察・解析した。マイクロチャネルの主流部は観察領域の平面サイズや液滴サイズに比べ高さが非常に小さく、流れが観察面の擬2次元と見做せる形状で作製した。このとき、液滴はチャネルの上面と下面に挟まれて押しつぶされた形状になっており、せん断等が働いていない場合は表面張力により観察面内で円形状をとっている。マイクロチャネルの油相、水相の inlet の圧力を調整することにより液滴密度を制御し、密度に応じて現れる流れの時空間構造の解析を行った。

また、異方的な形状の液滴粒子を作製するため、アルギン酸ナトリウムとカルシウムイオンの結合によるゲル化に注目した。マイクロ流路による液滴形成機構 (droplet generator) において、油相と水相が合流する際にせん断応力や表面張力により水相がちぎれ、液滴が形成される。本研究では、油相に塩化カルシウム水溶液の微小な液滴 (エマルジョン) を分散させておき、アルギン酸ナトリウム水溶液の液滴が形成される際に、塩化カルシウム水溶液の微小液滴を融合させ、ゲル化を生じさせることを試みた。

4. 研究成果

図1に多体液滴系の擬2次元流れとして典型的に得られる位相差画像を示す。白く映る液滴の縁は、液滴の表面から内側の領域を示している。左から右へ向かう流れの下で、液滴は押し流される。液滴が押し流され運動しているとき、液滴は流路の上面と下面による抵抗を受けた状態にあり、油相は液滴周囲を過ぎる (追い越す) 流れとなっている。このとき、液滴周囲の流れ場は運動する液滴に乗った座標系において、吸い込みと湧き出しが流れの上流側と下流側にそれぞれ配置された双極子 (source dipole) 型となっていることが知られている [3]。本研究で観察した流れのレイノルズ数は

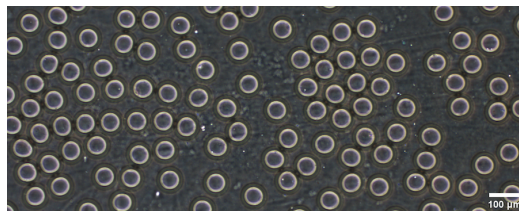


図1. 多体液滴系の擬2次元流れ。画像左から右へ向かう流れを撮影したもの。スケールバーは100 μm 。

1より十分に小さく、実現する流れ場は線形の Stokes 方程式にしたがう。したがって、ある液滴の位置に生じる流れ場は他の液滴が作る双極子型の流れ場の和で表され、系全体として個々の液滴は時々刻々と配置を変えながら運動することになる。マクロに見ると平均的には左から右に流れ時間的に変動しない流れであるものの、ミクロに見た液滴粒子の運動は時間的な変動が見られ、特に主流と垂直な方向への粒子の輸送が生じている。

図2は主流と垂直方向に関する個々の液滴位置の時間変化から、平均自乗変位 (mean square displacement; MSD) を算出した例である。各データ線は一定条件の下で得られた個々の液滴の運動を示している。ここでは、MSDが時間のべきで表されると仮定し、べき指数 α に着目して解析を行った。図3はべき指数 α を決定するために、時間幅をスライドさせ、各時間幅におけるべき指数の変化をプロットした例である。およそ $\Delta t < 1$ sに現れる短時間の領域ではballisticな運動に対応する $\alpha \sim 2$ に近い値を示した。時間幅の増加に応じて α は減少し、時間幅 $\Delta t > 1$ sのより長時間領域においては、 $\alpha \sim 1.1$ の定常値を示している。これは、液滴間に働く流体相互作用に由来する(一見)乱雑な運動が定常に達していることを示している。定常に達した後のべき指数 α を様々な密度に対してプロットしたものを図4に示す。擬2次元流れの密度としては、見かけの面積分率 ϕ を採用した。 ϕ が小さい場合、定常に達した後の運動はballisticな運動に近いが相互作用のために完全に直線的な運動にはならず $\alpha < 2$ となる。 ϕ の増加にしたがって α は減少し、 $\phi \sim 0.35$ ではランダムウォークに運動に対応する $\alpha \sim 1$ に近づく。 $\phi < 0.35$ の密度領域において $1 < \alpha < 2$ の異常拡散が生じており、この ϕ 依存性は長距離の流体相互作用する多体系の統計的なふるまいを反映したものである。今後、さらに実験データを増やすとともに、その詳細なメカニズムについて考察したい。

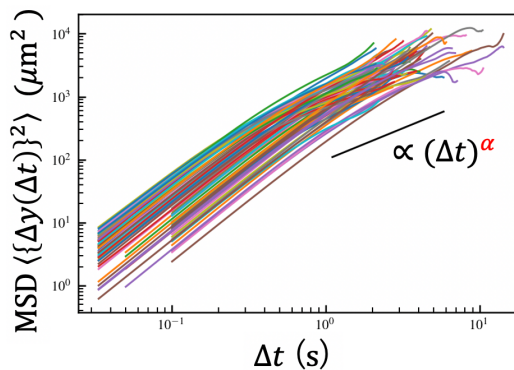


図2. 主流と垂直方向に関する個々の液滴の平均自乗変位。各色のデータ線は一定条件の下で得られた個々の液滴に対応する。本研究では、長時間領域のふるまいに現れるべき指数 α を評価した。

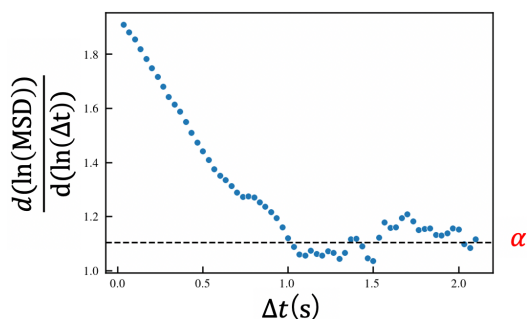


図3. 長時間領域におけるべき指数の決定。

アルギン酸ナトリウムとカルシウムイオンのゲル化による異形状液滴の作製については、マイクロ流体デバイスを設計し実験を行った。アルギン酸ナトリウム液滴と塩化カルシウム微小液滴が融合する際に、それぞれの液滴サイズに依存して融合が生じるかどうか、また融合する液滴の接触方向が異なることがわかった。特に、塩化カルシウム微小液滴の半径がアルギン酸ナトリウム液滴の半径の0.3–0.7倍程度のあるときに、主流の方向に対してアルギン酸ナトリウム液滴の前方から選択的に塩化カルシウム微小液滴が融合しゲル化が開始することがわかった。このとき、液滴の前方のみがゲル化した涙滴型の液滴が形成されることが示された。今後、より効率的な融合周波数の制御や溶液粘性の調整によるゲル化スピードの制御を行い、自在な異形状の液滴形成技術へと発展させていきたい。

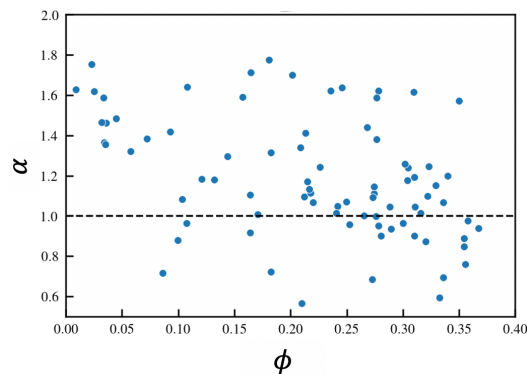


図4. べき指数と面積分率の関係。

<引用文献>

- [1] J. Mewis and N. J. Wagner, "Colloidal Suspension Rheology", Cambridge University Press (2011).
- [2] T. Beatus, T. Tlusty and R. Bar-Ziv, Physical Review Letters, 103, 114502 (2009).
- [3] I. Shani, T. Beatus, R. H. Bar-Ziv and T. Tlusty, Nature Physics, 10, 140 (2014).
- [4] J. H. Weijs, R. Jeanneret, R. Dreyfus and D. Bartolo, Physical Review Letters, 115, 108301 (2015).

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計8件（うち査読付論文 7件/うち国際共著 0件/うちオープンアクセス 4件）

1. 著者名 Hiroyuki Harada, Makoto Kaneko, Hiroaki Ito	4. 巻 14
2. 論文標題 Rotational manipulation of a microscopic object inside a microfluidic channel	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 Biomicrofluidics	6. 最初と最後の頁 054106 ~ 054106
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1063/5.0013309	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 伊藤弘明	4. 巻 44
2. 論文標題 深層学習を利用した赤血球細胞集団の流れ解析	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 Colloid & Interface Communications	6. 最初と最後の頁 5 ~ 6
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 -
1. 著者名 Taro Toyota, Hironori Sugiyama, Soichiro Hiroi, Hiroaki Ito, Hiroyuki Kitahata	4. 巻 49
2. 論文標題 Chemically artificial rovers based on self-propelled droplets in micrometer-scale environment	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 Current Opinion in Colloid & Interface Science	6. 最初と最後の頁 60 ~ 68
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1016/j.cocis.2020.04.003	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 Hiroaki Ito, Taisuke Itasaka, Nana Takeda, Hiroyuki Kitahata	4. 巻 129
2. 論文標題 Experimental study on the bifurcation of a density oscillator depending on density difference	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 EPL (Europhysics Letters)	6. 最初と最後の頁 18001
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1209/0295-5075/129/18001	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 Junichi Saito, Utako Yokoyama, Toshio Takayama, Hiroaki Ito, Tomomi Tadokoro, Yoshinobu Sugo, Kentaro Kurasawa, Miyuki Ogawa, Etsuko Miyagi, Hideki Taniguchi, Makoto Kaneko, Yoshihiro Ishikawa	4. 巻 -
2. 論文標題 Fabrication of implantable human arterial graft by periodic hydrostatic pressure	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 Molecular Mechanism of Congenital Heart Disease and Pulmonary Hypertension, Chap46	6. 最初と最後の頁 289 ~ 291
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1007/978-981-15-1185-1_46	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 Nana Takeda, Naoko Kurata, Hiroaki Ito, Hiroyuki Kitahata	4. 巻 101
2. 論文標題 Bifurcation analysis of a density oscillator using two-dimensional hydrodynamic simulation	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 Physical Review E	6. 最初と最後の頁 42216
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1103/PhysRevE.101.042216	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 Masahide Okada, Yutaka Sumino, Hiroaki Ito, Hiroyuki Kitahata	4. 巻 102
2. 論文標題 Spontaneous deformation and fission of oil droplets on an aqueous surfactant solution	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 Physical Review E	6. 最初と最後の頁 42603
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1103/PhysRevE.102.042603	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 Hiroaki Ito, Makoto Kaneko	4. 巻 7
2. 論文標題 On-chip cell manipulation and applications to deformability measurements	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 ROBOMECH Journal	6. 最初と最後の頁 3
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1186/s40648-020-0154-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 -

〔学会発表〕 計7件（うち招待講演 0件 / うち国際学会 1件）

1. 発表者名 李東奎, 伊藤弘明, 北畑裕之
2. 発表標題 マイクロ流路を流れる液滴表面の異方的ゲル化のダイナミクス
3. 学会等名 日本物理学会第76回年次大会
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 伊藤弘明、下川直史、樋口裕次
2. 発表標題 直流電場に駆動される荷電脂質ベシクルの相分離ドメイン
3. 学会等名 日本物理学会第76回年会
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 Hiroaki Ito, Kohei Fujimoto, Makoto Kaneko
2. 発表標題 On-chip deformability measurement of eukaryotic cells: Comparison to anucleate cells
3. 学会等名 The 23rd International Conference on Miniaturized Systems for Chemistry and Life Sciences (MicroTAS2019) (国際学会)
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 伊藤弘明
2. 発表標題 赤血球の多体2次元流れにおける密度依存的な構造
3. 学会等名 第13回自己組織化討論会
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 伊藤弘明、赤井孝行、金子真、北畑裕之
2. 発表標題 細胞密度に依存する多体二次元流れ
3. 学会等名 日本物理学会2019年秋季大会
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 伊藤弘明、赤井孝行、金子真、北畑裕之
2. 発表標題 マイクロ流路で観察する二次元の細胞集団流れ
3. 学会等名 非線形反応と協同現象研究会
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 伊藤弘明、板坂泰亮、竹田なな、北畑裕之
2. 発表標題 密度差振動子の分岐構造：実験によるアプローチ
3. 学会等名 日本物理学会第75回年次大会
4. 発表年 2020年

〔図書〕 計0件

〔産業財産権〕

〔その他〕

Hiroaki Ito http://nonlinear.s.chiba-u.jp/~ito/ ResearchGate https://www.researchgate.net/profile/Hiroaki_Ito3

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