

## 科学研究費助成事業 研究成果報告書

令和 5 年 6 月 4 日現在

機関番号：17102

研究種目：基盤研究(B) (一般)

研究期間：2020～2022

課題番号：20H01873

研究課題名(和文) 顕微イメージングを用いた非平衡ソフトマター不均一系の局所力学応答測定

研究課題名(英文) Local dynamical response of inhomogeneous non-equilibrium soft matter systems studied by micro-imaging methods.

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) 13,900,000円

研究成果の概要(和文)：本研究では光学顕微鏡で得られた実空間画像から新たな解析法を用いて非平衡ソフトマター系のメソスコピックスケールの構造やダイナミクスに関する情報を得ることを目指した。具体的には、コヒーレント照明のもとでの粒子のホログラム像から複数粒子の3次元同時追跡が可能なホログラフィック顕微鏡法を用いて局所応答の空間変化測定を実現した。また、顕微鏡画像の時間相関から広い時間スケール・空間スケールでの局所情報を得る差分動的顕微鏡法を用いて、ソフトマター系の揺らぎダイナミクスの空間変化測定を実現した。さらに、これらを用いてアクティブ流体やアクティブ粒子分散系のダイナミクスに関して新たな知見を得ることに成功した。

研究成果の学術的意義や社会的意義

顕微鏡画像を用いてソフトマター複雑流体の局所力学物性やその空間分布に関する情報を得る新規手法の開発を行い、通常、高価かつ特殊な測定装置を用いて得られる情報と同等の情報を得ることに成功した。また、実空間測定の利点を生かして、力学物性の空間分布に関する情報を得られた点で学術的な意義がある。また、ヤヌス粒子や液晶液滴等の特徴あるコロイド分散系を電場や光を用いて駆動することでアクティブ粒子系を実験的に実現し、局所力学駆動された複雑流体を作成した点でも意義がある。本研究で得られた知見は、今後これらを用いたデバイスや機能性材料設計の指針を与えるとともに、制御可能なモデル非平衡平衡系を実現した意義がある。

研究成果の概要(英文)：In this study, we obtained spatio-temporal information of nonequilibrium soft matter at the mesoscopic scale using a new analytical method of microscopic images. By holographic microscopy, which enables simultaneous three-dimensional tracking of multiple particles from holographic images of the particles under coherent light, we realized a measurement of spatial variation of the local response. We also measured mesoscopic fluctuation dynamics of soft matter using differential dynamic microscopy, which obtains local information on a wide range of time and spatial scales from time correlations of microscopic images. We also succeeded in obtaining new knowledge on the dynamics of active fluids and dispersion of active particles using these techniques.

研究分野：物性物理学

キーワード：マイクロレオロジー ホログラフィック顕微鏡 差分動的顕微鏡 アクティブ流体 アクティブ粒子

## 1. 研究開始当初の背景

細胞をはじめとするソフトマター複雑系の特徴であり、かつその解明を困難にしている点として、構造の階層性を含めた不均一性が挙げられる。例えば、ソフトマター複雑系である細胞は個々の構成要素を見ればソフトマターからなる複合体であり、従来の物性物理学の対象である金属や半導体等の固体系と同様にその巨視的応答や物性を容易に理解できることが期待できる。しかしながら、その構成要素の刺激に対する応答のソフトさ(しなやかさ)のために、自らの構造を変えつつ応答するインテリジェントな応答をする点で、構成要素のレベルでも固体系とは大きく異なる。さらに、顕著な相分離的な構成要素の分布の不均一性と機能との関連が注目されている。このように、ソフトマター複雑系の特徴的な巨視的物性を理解するためには、構成要素の局所的な応答とそれを生み出す構造との間の相関を理解することが必要となる。

## 2. 研究の目的

ソフトマター複雑系のメソスコピックレベルでの構造やダイナミクスを解明する手法として専用の測定器を用いた散乱実験等が行われてきた。これに対して本研究ではメソスケールでの汎用な観測装置である光学顕微鏡を用い、得られる画像情報から種々の新たな解析法を用いてソフトマター複雑系の時空間ダイナミクスに関する有用な情報を得ることを目指す。さらに、生体系を模倣したモデル非平衡ソフトマター系を構築し、その物性解明を行うことで生体系の理解を深めることも目指す。具体的には、コヒーレント照明下で観測した分散粒子のホログラム像から、個々の粒子の3次元同時追跡を行うホログラフィック顕微鏡法を構築し、ソフトマター流体の局所揺らぎや外場に対する局所応答の空間分布を測定する研究を行なう。次に、顕微鏡画像の時間相関から広い時空間スケールでの局所的ダイナミクスの情報の取得が可能な差分動的顕微鏡法を構築し、外場により局所駆動された非平衡ソフトマター系の情報を得る研究を進める。

## 3. 研究の方法

本研究ではソフトマター複雑流体の局所構造およびダイナミクスに関する情報を取得するために、[1]ホログラフィック顕微鏡を用いた多粒子3次元同時追跡法の開発、[2]差分動的顕微鏡法を用いた局所粘弾性測定法の開発を行う。さらにこれらを典型的な非平衡ソフトマター系である液晶電気対流系と外場駆動アクティブコロイド系に適用し、その有用性を明らかにする。

### [1]ホログラフィック顕微鏡を用いた多粒子3次元同時追跡

媒質中に分散させた粒子の軌跡を解析することで、その周囲の媒質の力学物性や粒子サイズ等の情報を得る研究は長い歴史を持っている。近年では光散乱等を用いた専用の測定器が市販され、広く研究に用いられている。一方、ビデオ画像解析により、光学分解能を超えた精度での粒子位置の2次元追跡がすでに実現されている。しかし、粒子は溶媒との密度の不一致により沈降あるいは浮上するため、その運動の多くは3次元であり、3次元追跡を実現することは重要な課題である。本研究では、レーザー等のコヒーレント光で物体を照明し、その回折光(あるいは散乱光)と照明光との干渉像であるホログラムから3次元光場を再構成するホログラフィック顕微鏡法を用いて粒子の3次元追跡を実現する。開発された方法を用いて、外場下で3次元運動するコロイド粒子の運動測定や2次元粒子像が重なっている場合の粒子追跡の実現を目指した。

### [2]動的画像相関解析を用いた広い空間・時間スケールでのマイクロレオロジー測定

光散乱をはじめとする揺らぎ測定はソフトマター系の広帯域でのダイナミクス測定法として広く用いられている。一方、顕微鏡像の強度揺らぎの時間相関から系のダイナミクスに関する情報を得る方法は相分離系や液晶系で用いられてきた。これらに対して、光学分解能より小さな粒子を媒質に分散させた系の差分画像の時間発展からプローブ粒子のダイナミクスに関する情報を得る差分動的顕微鏡法が近年、さまざまな系の揺らぎのダイナミクス測定に利用され始めている。局所ダイナミクス測定には、従来、個々の粒子の運動を追跡するビデオマイクロレオロジー法が用いられてきた。これに対し、本測定法では個々の粒子を追跡する必要がないために、解析が極めて簡便になるが、不均一系への適用に関しては十分に研究が進んでいない。本研究では、ダイナミクスの局所情報が取得可能である本測定法を動的不均一性観測のための新規方法として研究を進めた。

## 4. 研究成果

### [1]ホログラフィック顕微鏡を用いた多粒子3次元同時追跡法の開発

ホログラフィック顕微鏡を用いたコロイド粒子の3次元追跡法の開発を行った。本研究では顕微鏡の白色光による照明をLED照明へと変更し、入射光と粒子による散乱光との干渉で生じるホログラム画像を得て、以下の2つの解析法を用いて粒子位置の3次元位置推定を行った。まず、1枚のホログラムから任意の高さでのホログラムをRayleigh-Sommerfeld(RS)の回折理論を用いて数値的に逆算することで図1のような3次元光場を再構成し、その閾値以上の強度を持つ領域の強度重心を粒子位置とした。Lorenz-Mie(LM)散乱理論に基づき計算される球状粒子の理論ホログラムにRS法を適用し、その妥当性を定量的に評価した。その結果、

LEDのような波長分散のある光源を用いた場合でも、コヒーレンス長（実験のLEDでは18ミクロン）程度の範囲では、設定した高さで推定された高さには線形関係が得られ、位置推定法の妥当性が確認された。さらに、2粒子が鉛直方向に並んだ配置の理論ホログラムを用いて、RS法での鉛直方向の位置分解精度を検証したところ、両者がほぼ接触するような近距離では、ホログラムの見た目からは2粒子の識別が困難であるが、RS法を用いて2粒子位置の推定が可能であることがわかった。次に、実験光学系の構築と単一サイズコロイド分散系およびそれをゲルで固定した系にRS法とホログラムに直接LM理論式ではめるLM法の2つの方法を適用した。その結果、コヒーレンス長程度までの範囲で正確な変位測定が可能であることが確認された。LM法では粒子の重心位置に加え、粒子の半径および屈折率も同時に求められ、重心位置の時間変化から得られた流体力学的半径とLM法で得られる半径を同時に得ることに成功した。

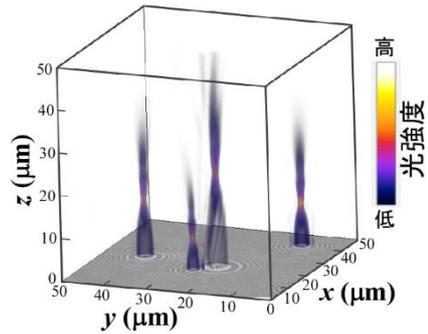


図1. RS法によりホログラムから再構築された複数粒子による光場。

[2] 動的画像相関解析を用いた広い空間・時間スケールでのマイクロロジー測定

顕微鏡観察で得られた時間差分画像の2次元フーリエスペクトルから、空間平均された中間相関関数  $f(q, dt)$  を得ることが可能な差分動的顕微鏡法 (DDM) の開発を行った。開発された解析系を用いて、単純流体として単分散のコロイド水溶液、粘弾性流体としてコロイド粒子を分散した高分子準希薄系 (ポリエチレンオキシド水溶液) および界面活性剤系 (塩化セチルピリジニウム+サリチル酸ナトリウム水溶液) に対して中間相関関数を求めた (図2上)。次に、測定波数が粒子サイズの逆数より十分に小さいことを用いて、得られた中間相関関数からプローブ粒子の平均2乗変位を算出した。さらに拡張されたストークス・アインシュタインの関係式を用いることで、粘弾性スペクトル (図2下) を得るマイクロロジー解析法の開発を行った。また、明視野画像を用いる従来の明視野DDMに加えて、濃厚系でプローブ粒子の運動のみを選択的に観測可能にするために、蛍光粒子を用いた蛍光DDMを開発し、希薄コロイド分散系で両者が同等の情報を与えることを明らかにした。

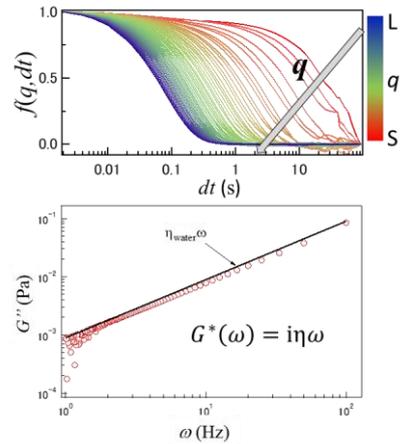


図2. DDM で得られたコロイド水溶液の中間相関関数と粘弾性スペクトルの虚部。

[3] DDMを用いたアクティブ流体のダイナミクスの研究

開発されたDDMを電場により駆動された液晶電気対流の乱流状態 (ソフトモード乱流) で観測される時空間パターンへ適用した。この際にはプローブ粒子を用いずに観察されるパターンにDDMを適用した。その結果、液晶乱流中での揺らぎの中間相関関数が図3に示すように、短時間ではべき関数で、長時間では指数関数で与えられる2重緩和を示すことがわかった。また、印加する交流電場の周波数を変化させて、乱流の向きが揃っているノーマルロールとパッチ構造を形成しているオブリークロールでの測定を行った結果、いずれの場合も中間相関関数が2重緩和を示し、その緩和時間の波数依存性が一致することを見出した。この結果から、両者の局所揺らぎは同一であることを明らかにした。

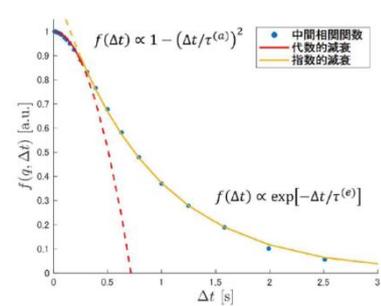


図3. DDM で得られたソフトモード乱流の中間散乱関数に現れる2重緩和。

[4] 新規アクティブ粒子系の開拓と運動制御

ミクロンスケールで局所的に非平衡状態に駆動した種々の非平衡ソフトマター流体を実現し、そのダイナミクスに関する研究を進めた。まず、空間光変調器を用いて円偏光多点光ピンセットを開発し、これを用いた3次元トラップしたミクロンスケールの液晶液滴の回転駆動系を実現した。さらに、これを局所力源として単純流体および粘弾性流体を局所駆動する新しい非平衡流体を実現した。ネマチック液晶液滴を用いた場合には、円偏光の向きにより液滴の回転方向が制御可能なこと、コレステリック液晶液滴の場合には、その回転方向が液滴のキラリティーで決まることを見出した。また、複数粒子を空間配置した系を実現し、局所循環流や局所シア流の実現に成功した (図4)。

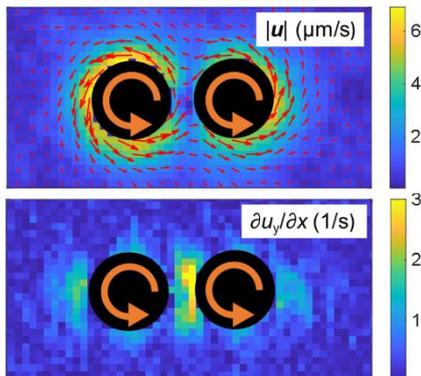


図4. 光回転粒子で誘起される流動場。

次に、並進運動する局所力減として、電場駆動する金属・絶縁体ヤヌス粒子を作成し、単純流体および粘弾性流体に

分散し、交流電場により誘起電荷電気泳動により駆動した非平衡流体を実現し、その粒子運動を調べた。

以上のようにソフトマター複雑流体の局所力学物性やその空間分布に関して、顕微鏡画像を用いた新規の方法を用いて研究を実施し、新規の情報を得ることに成功した。また、特徴あるコロイド粒子分散系を電場あるいは光を用いて非平衡駆動するアクティブ粒子系を実験的に実現し、局所力学駆動を行い、その物性に関する知見を得ることに成功した。これらの知見は今後、これらを用いたデバイスや機能性材料設計のための指針を与えるとともに、制御可能なマイクロスケールの平衡系として基礎的にも意義ある成果と考えている。

## 5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計5件（うち査読付論文 4件 / うち国際共著 0件 / うちオープンアクセス 2件）

1. 著者名 木村康之	4. 巻 24
2. 論文標題 ネマチックコロイド	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 液晶	6. 最初と最後の頁 88-96
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 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 -
1. 著者名 Keita Saito and Yasuyuki Kimura	4. 巻 12479
2. 論文標題 Optically driven liquid crystal rotator	5. 発行年 2022年
3. 雑誌名 Proc. of SPIE proceeding	6. 最初と最後の頁 1247908-1--2
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1117/12.2658782	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 and Yasuyuki Kimura	4. 巻 12
2. 論文標題 Optically driven liquid crystal rotator	5. 発行年 2022年
3. 雑誌名 Scientific Reports	6. 最初と最後の頁 16623-1--8
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1038/s41598-022-21146-y	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 Sota Inoue, Yasuyuki Kimura, and Yuki Uematsu	4. 巻 157
2. 論文標題 Ostwald ripening of aqueous microbubble solutions	5. 発行年 2022年
3. 雑誌名 The Journal of Chemical Physics	6. 最初と最後の頁 244704-1---9
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1063/5.0128696	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28件 (うち招待講演 3件 / うち国際学会 1件)

1. 発表者名 Keita Saito*, Yasuyuki Kimura
2. 発表標題 Optically driven liquid crystal rotator
3. 学会等名 Optical Manipulation Conference (OMC22) (国際学会)
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 齋藤圭太、木村康之
2. 発表標題 液晶液滴を用いた光駆動回転子系の構築
3. 学会等名 化学とマイクロ・ナノシステム
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 津田健吾、木村康之
2. 発表標題 水中で自走するコレステリック液晶液滴の運動
3. 学会等名 2022年西日本非線形研究会
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 齊藤圭太、木村康之
2. 発表標題 円偏光により駆動された回転液晶液滴
3. 学会等名 日本物理学会2022年秋季大会
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 田中健太郎、木村康之
2. 発表標題 液晶乱流系の時空間構造と非平衡輸送
3. 学会等名 日本物理学会2022年秋季大会
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 津田健吾、木村康之
2. 発表標題 水中で自走するコレステリック液晶液滴の運動
3. 学会等名 日本物理学会2022年秋季大会
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 齊藤圭太、木村康之
2. 発表標題 光駆動液晶液滴の回転運動
3. 学会等名 第74回コロイドおよび界面化学討論会
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 木村康之
2. 発表標題 電気泳動光散乱の基礎
3. 学会等名 第34回 散乱研究会（招待講演）
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 田中健太郎、木村康之
2. 発表標題 液晶乱流系の時空間構造と非平衡輸送
3. 学会等名 第10回ソフトマター研究会
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 齋藤圭太、木村康之
2. 発表標題 回転液晶液滴の流体相互作用
3. 学会等名 第10回ソフトマター研究会
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 津田健吾、木村康之
2. 発表標題 水中で自走するコレステリック液晶液滴の運動
3. 学会等名 第10回ソフトマター研究会
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 津田健吾、木村康之
2. 発表標題 水中で自走するコレステリック液晶液滴の運動
3. 学会等名 第127回日本物理学会九州支部例会
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 橋本明伸、齋藤圭太、小林史明、木村康之
2. 発表標題 金属絶縁体ヤヌス粒子の電場応答
3. 学会等名 第127回日本物理学会九州支部例会
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 井出健一郎、齋藤圭太、小林史明、木村康之
2. 発表標題 アクティブコロイド粒子の集団運
3. 学会等名 第127回日本物理学会九州支部例会
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 河野龍之助、齋藤圭太、小林史明、木村康之
2. 発表標題 複雑流体中での電場駆動ヤヌス粒子の運動
3. 学会等名 第127回日本物理学会九州支部例会
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 橋本明伸、齋藤圭太、小林史明、岩下靖孝、木村康之
2. 発表標題 金属-誘電体ヤヌス粒子の電場応答
3. 学会等名 日本物理学会第77会年次大会
4. 発表年 2023年

1. 発表者名 齋藤圭太、河野龍之助、小林史明、岩下靖孝、木村康之
2. 発表標題 複雑流体中での電場駆動ヤヌス粒子の運動
3. 学会等名 日本物理学会第77会年次大会
4. 発表年 2023年

1. 発表者名 満生明輝, 木村康之
2. 発表標題 ホログラフィック顕微鏡法を用いたコロイド粒子の3次元追跡
3. 学会等名 第72回界面コロイドおよび界面化学討論会
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 野見山直弥, 田畑栄太, 木村康之
2. 発表標題 差分動的顕微鏡法による複雑液体のマイクレオロジー測定
3. 学会等名 第72回界面コロイドおよび界面化学討論会
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 田中健太郎, 木村康之
2. 発表標題 液晶乱流系の時空間ダイナミクス
3. 学会等名 第127回日本物理学会九州支部例会
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 野見山直弥, 植松祐輝, 木村康之
2. 発表標題 差分動的顕微鏡法を用いたソフトマターのダイナミクス
3. 学会等名 第127回日本物理学会九州支部例会
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 野見山直弥, 植松祐輝, 木村康之
2. 発表標題 画像相関を用いたソフトマターのダイナミクス測定
3. 学会等名 日本物理学会第77会年次大会
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 田中健太郎, 木村康之
2. 発表標題 液晶乱流系の時空間ダイナミクス
3. 学会等名 日本物理学会第77会年次大会
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 木村康之
2. 発表標題 液晶マイクロスイマー
3. 学会等名 日本液晶学会ソフトマターフォーラム講演会（招待講演）
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 満生明輝, 植松祐輝, 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次元解析
3. 学会等名 第126回日本物理学会九州支部例会
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 林和気, 植松祐輝, 木村康之
2. 発表標題 液晶マイクロスクイマーの運動
3. 学会等名 第126回日本物理学会九州支部例会
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 木村康之
2. 発表標題 光渦で駆動された流体相互作用する粒子系が示すリズム運動
3. 学会等名 研究会「光の軌道角運動量の発生機構と物質相互作用の理解」（招待講演）
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 満生明輝, 木村康之
2. 発表標題 ホログラフィック顕微鏡法を用いたコロイド粒子の3次元追跡
3. 学会等名 第72回界面コロイドおよび界面化学討論会
4. 発表年 2021年

〔図書〕 計0件

〔産業財産権〕

〔その他〕

複雑物性基礎研究室 <a href="http://sm.phys.kyushu-u.ac.jp/~kimuralab/Research.html">http://sm.phys.kyushu-u.ac.jp/~kimuralab/Research.html</a> 光で回る液晶液滴 <a href="https://www.sci.kyushu-u.ac.jp/koho/qrinews/qrinews_230124.html">https://www.sci.kyushu-u.ac.jp/koho/qrinews/qrinews_230124.html</a> 個々のマイクロバブルが従うサイズ変化の法則を解明 <a href="https://www.sci.kyushu-u.ac.jp/koho/topics/topics_230105.html">https://www.sci.kyushu-u.ac.jp/koho/topics/topics_230105.html</a> The OMC Best Student Award <a href="https://www.sci.kyushu-u.ac.jp/koho/topics/topics_220511.html">https://www.sci.kyushu-u.ac.jp/koho/topics/topics_220511.html</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
連携研究者	岩下 靖孝  (Iwashita Yasutaka)  (50552494)	京都産業大学・理学部・准教授    (34304)	

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