

## 科学研究費助成事業 研究成果報告書

平成 26 年 5 月 22 日現在

機関番号：17102

研究種目：基盤研究(B)

研究期間：2011～2013

課題番号：23340123

研究課題名(和文)マルチビーム3次元マイクロレオロジー顕微鏡の開発とそのソフトマターへの応用

研究課題名(英文)Development of 3D-microrheology microscope and its application to soft matter

研究代表者

木村 康之(KIMURA, YASUYUKI)

九州大学・理学(系)研究科(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) 15,500,000円、(間接経費) 4,650,000円

研究成果の概要(和文)：本研究では、メゾサイズのプロブ粒子をソフトマター複雑流体中に分散し、これらを新たに開発したマルチビームレーザーピンセットにより3次元的に同時捕捉して、その熱ゆらぎ及び局所相互作用に対する粒子の応答を、高精度で測定するマルチビーム3次元マイクロレオロジー測定システムを開発した。さらにこれを用いて、(1)流体相互作用する粒子系の示すリズム的な集団運動、(2)液晶中でのコロイド粒子間相互作用、(3)有限サイズ2次元結晶の融解過程、等に適用し、さまざまな新たな知見を得ることに成功した。

研究成果の概要(英文)：In this research, the probe particles with mesoscopic size dispersed in complex fluids of soft matter are trapped in three dimensions by the newly developed multi-beam laser tweezers. We developed the multi-beam three-dimensional microrheology system which is highly precise and can measure the response of the particles to the thermal fluctuation and a local interaction. By utilizing this system, we studied (1) the rhythmic collective motion in the system composed of hydrodynamically coupled particles, (2) the interaction between colloids dispersed in liquid crystal and (3) the melting of a finite-sized two-dimensional colloidal crystal, and succeeded in acquiring various new knowledge.

研究分野：数物系科学

科研費の分科・細目：物理学・生物物理・化学物理

キーワード：ソフトマターの物理 レオロジー 非平衡 光ピンセット

### 1. 研究開始当初の背景

近年、ミクロンサイズの粒子をゲルや細胞中に分散して、その時間的な揺らぎを顕微鏡あるいは光散乱を用いて測定することにより、その周囲の力学物性を測定する「マイクロレオロジー測定法」(例えば研究代表者が書いた総説: Journal of Physical Society of Japan, **78**, pp. 041005 (2009).) と総称される手法や原子間力顕微鏡 (AFM) を用いて表面の局所的な力学物性の測定が行われている。しかし、AFM 以外の測定法を用いたソフトマターの局所力学物性の日本における研究者は欧米に比べて極めて少ない。AFM ではその位置分解能は高いが、得られる情報が表面に限定され、3 次元的な情報が得られないこと、および力学的応答の測定可能周波数範囲が探針の力学的性質に依存する、等の欠点がある。このため、サブミクロンスケールの空間分解能を有し、ソフトマター複合系の構造および力学的特性を非破壊かつ 3 次元でその場測定可能な簡便な方法は存在せず、かつそのような手法の開発を目指す研究者は日本では少ないのが現状である。

### 2. 研究の目的

生体系をはじめとして、ソフトマターからなる複雑流体の巨視的物性 (構造とダイナミクス) を理解するためには、その空間的・時間的不均一構造に関する知見を得ることが必要である。しかし、従来、メソスケールの空間分解能で、その力学的特性を非破壊的かつ 3 次元にその場測定できる方法は存在しない。本研究では、メソサイズのプローブ粒子をソフトマター複雑流体中に分散し、これらをマルチビームレーザーピンセットにより同時捕捉して、その熱ゆらぎ (あるいはブラウン運動) および局所相互作用に対する粒子の変位を、高精度で測定するマルチビーム 3 次元マイクロレオロジー顕微鏡システムを開発し、これを用いてソフトマターの内部構造および局所力学物性 (マイクロレオロジー) を 3 次元かつメソスケールの分解能で明らかにすることを目指す。

### 3. 研究の方法

多数のコロイド粒子を 3 次元に特定のパターンでトラップ可能なマルチビームレーザーピンセットを作成する。これを用いてソフトマター中に分散した複数粒子の外力に対する応答や熱揺らぎを直接測定することで、その力学物性 (レオロジー) をメソスケールで 3 次元に測定可能なマルチビーム 3 次元マイクロレオロジー測定システムを開発する。マルチビームトラップは空間光変調器により単一のレーザー光の波面を位

相変調するデジタル位相ホログラムのシステムを作成することで実現する。

### 4. 研究成果

#### (1) 空間位相変調器 (SLM) を用いた 3 次元マルチレーザーピンセットの開発およびコロイドの 3 次元操作の実現

従来の光ピンセット法で多点のレーザートラップを行うためには、複数のレーザー光を導入することが必要であり、トラップ数に比例して必要となる光学素子の数が増加し、光学系が複雑なものとなる。これに対して、1 本のレーザービームの波面を空間位相変調器により位相変調することで、顕微鏡の対物レンズの焦点面に複雑な光強度分布を持ったトラップポテンシャルを作成する方法が「ホログラフィック光ピンセット (HOT)」である。本研究では波長 1064nm の赤外固体レーザー光を SLM に導入し、その反射光を高倍率の対物レンズで集光することで HOT を作成した。本研究で作成した HOT は、コンピュータ上で作成した位相画像を SLM に表示する方式であり、その利点として以下の点が挙げられる。①複雑なトラップポテンシャルもコンピュータ上で対応する位相画像を作成することで容易に実現できること、②SLM に表示する画像を切り替えることで複数のパターンを瞬時に変更できること、③3 次元なトラップポテンシャルの作成が可能なこと、などが挙げられる。その例として図 1 に、高さの異なる位置に複数の粒子を配置したもの (図 1 a) と複数のコロイド粒子を円周上に等間隔に配置したもの (図 1 b) を示す。

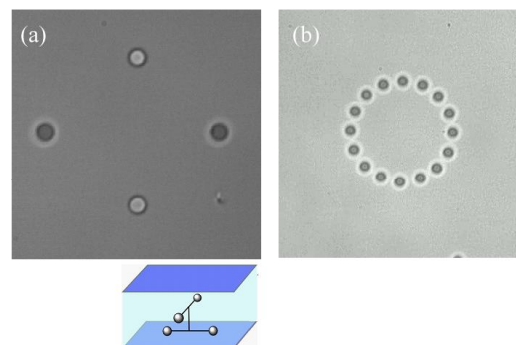


図 1. ホログラフィック光ピンセットによる粒子操作. (a) 3 次元配置. (b) 円周上に等間隔で粒子を配置.

#### (2) 光渦の作成とこれを用いた流体力学相互作用する粒子系の集団運動の研究

開発された HOT を用いると波面がらせん状に変調されたラゲール・ガウシアン光 (光渦) を作成することができる。これを粒子に照射すると粒子は軌道角運動量を受けて、回転運動する。さらに、粒子を円周上に 2 次元トラップすることにより、一定の角速度で円運動

する粒子系を実現した。近年、アクティブマターとして自己推進する粒子系が流体相互作用によりさまざまな動的なパターン（集団運動）を示すことが実験、理論により明らかにされている。本研究では、上述の系で、粒子の回転速度、粒子数、粒子サイズを変化させて、粒子間の流体相互作用が生み出す集団運動を研究した。その結果、同一の粒径の粒子に同一の推進力を与えた系で非自明な運動モードを見出した。例えば、2粒子を初期状態が180度の間隔で配置しても、円周上で光強度の不均一や熱揺らぎにより、時間が経過すると2粒子がペアを作って安定し、単独の場合より速い速度で運動する様子が観察された。さらに、3粒子の場合は3粒子からなるクラスターは不安定で、常にペア+単独粒子の配置が安定になり、ペアが単独粒子に追いついて、ペアの組換えを起こすという運動が繰り返され（図2）、リミットサイクル的なリズム運動を示すことが明らかとなった。粒子数がさらに増えるとさまざまな運動モードが出現することを発見した。これらの結果は、粒子間にオセーン近似で表される流体力学相互作用を仮定し、半径方向に光トラップポテンシャルによる調和振動的な束縛力を仮定したシミュレーションの結果とよく一致することもわかった。

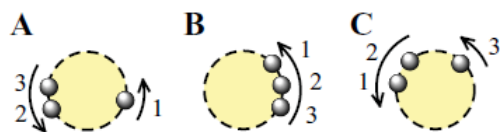


図2. 円周上を一定の駆動力を受けて回転運動する3粒子の示す集団運動。

### (3) ネマチック液晶中のコロイド粒子間相互作用の測定

液晶の方向弾性に起因したネマチック液晶中に分散したミクロンサイズのコロイド粒子間に働く特徴的な粒子間力測定は従来、粒子を自由に運動させ、その相対速度の粒子間距離依存性から粒子間力を測定する free release 法が広く用いられてきた。本研究では、2ビームレーザートラップ法と free release 法の双方を用いて粒子間力を測定し、その結果を比較した。free release 法の解析の際に、オセーンテンソルを用いて粒子間の流体力学的相互作用を評価し、これを考慮して求めた粒子間力が2ビームトラップ法による結果とよく一致することを見出した。

### (4) 有限サイズ2次元コロイド結晶の融解過程の研究

無限系2次元コロイド結晶の濃度変化による融解過程の研究は広く行われているが、有限サイズの結晶の非平衡融解過程の研究はほとんど行われて来なかった。我々は光ピンセットによる急激な温度勾配による熱泳

動効果を有限サイズの結晶を作成し、その融解過程を調べた。その結果、結晶内部では密度が一定値を示しつつ、時間とともにその値が減少してゆくが、6回対称性を反映した方向秩序変数は、結晶の中心から外側に向かって緩やかに変化していることなどの新たな知見を得た。これらの結果を理解するために、ソフトな短距離斥力相互作用のある系のブラウンダイナミクス・シミュレーションを行い、実験結果を再現することに成功した。

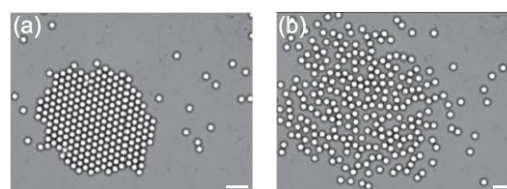


図3. 熱勾配により作成した有限サイズ2次元結晶(a)とその融解後(b)。

### 5. 主な発表論文等

(研究代表者、研究分担者及び連携研究者には下線)

[雑誌論文] (計8件)

- ① Sayuri Tanaka, Yuma Oki and Yasuyuki Kimura, Melting process of a single finite-sized two-dimensional colloidal crystal, *Physical Review E*, 査読有, **89**, 2014, 052305-1~9. DOI: 10.1103/PhysRevE.89.052305
- ② Kuniyoshi Izaki and Yasuyuki Kimura, Hydrodynamic effects in the measurement of interparticle forces in nematic colloids, *Physical Review E*, 査読有, **88**, 2013, 054501-1~5. DOI: 10.1103/PhysRevE.88.054501
- ③ Yasutaka Iwashita and Yasuyuki Kimura, Stable cluster phase of Janus particles in two dimensions, *Soft Matter*, 査読有, **9**, 2013, 10694~10698. DOI: 10.1039/c3sm52146j
- ④ Kuniyoshi Izaki and Yasuyuki Kimura, Interparticle force between different types of nematic colloids, *Physical Review E*, 査読有, **87**, 2013, 062507-1~7. DOI: 10.1103/PhysRevE.87.062507
- ⑤ Yasuyuki Kimura, Takahiro Kishita, Kosuke Kita and Noboru Kondo, Nematic colloids - interaction between particles in anisotropic liquids, *Journal of Physical Society of Japan*, 査読有, **81**, 2012, SA007-1-8. DOI:10.1143/JPSJS.81SA.SA007
- ⑥ Yuriko Sassa, Shuhei Shibata, Yasutaka Iwashita and Yasuyuki Kimura, Hydrodynamically induced rhythmic

motion of optically driven colloidal particles on a ring, Physical Review E, 査読有, **85**, 2012, 061402-1~8.

DOI: 10.1103/PhysRevE.85.061402

- ⑦ Takahiro Kishita, Noboru Kondo, Kenji Takahashi, Masatoshi Ichikawa, Jun-ichi Fukuda and Yasuyuki Kimura, Interparticle force in nematic colloids - comparison between experiment and theory, Physical Review E, 査読有, **84**, 2011, 021704-1-9.

DOI:10.1103/PhysRevE.84.021704

- ⑧ Noboru Kondo, Yasutaka Iwashita and Yasuyuki Kimura, Temperature and confinement effect on interparticle force in nematic colloids, Molecular Crystals and Liquid Crystals, 査読有, **545**, 2011, 115-122.

DOI: 10.1080/15421406.2011.568880

[学会発表] (計 42 件)

- ① 大久保、岩下、木村他、流体相互作用する光駆動粒子系の示すリズム運動、日本物理学会第 69 回年次大会、2014 年 3 月 30 日、東海大学
- ② 祐下、岩下、木村他、光ピンセットにより一軸変形された相分離リポソーム、日本物理学会第 69 回年次大会、2014 年 3 月 30 日、東海大学
- ③ 高橋、岩下、木村、液晶電気対流中に分散したコロイド粒子系の輸送と拡散、日本物理学会第 69 回年次大会、2014 年 3 月 28 日、東海大学
- ④ Y. kimura (招待講演)、Microrheology of equilibrium and non-equilibrium complex fluids、Workshop on Non-Equilibrium Complex Fluids、2014 年 3 月 6 日、首都大学東京
- ⑤ 井崎、岩下、木村、ネマチックコロイド間相互作用の測定法比較とその応用、第 3 回ソフトマター研究会、2013 年 12 月 14 日、首都大学東京
- ⑥ 大久保、岩下、木村、円環上を光駆動されたコロイド系の示すリズム運動、第 3 回ソフトマター研究会、2013 年 12 月 14 日、首都大学東京
- ⑦ 田中、岩下、木村、有限サイズの 2 次元コロイド凝集体の融解の研究、第 3 回ソフトマター研究会、2013 年 12 月 14 日、首都大学東京
- ⑧ 祐下、岩下、木村他、一軸伸長された相分離リポソームの変形、第 3 回ソフトマター研究会、2013 年 12 月 14 日、首都大学東京
- ⑨ 木村康之 (招待講演)、電気泳動光散乱法の基礎、第 25 回散乱研究会、2013 年 11 月 15 日、HULIC HALL
- ⑩ 田中、岩下、木村、有限サイズの 2 次元コロイド結晶の消滅過程、日本物理学会

2013 年秋季大会、2013 年 9 月 25 日、徳島大学

- ⑪ 祐下、岩下、木村他、外力下でのリポソームの相分離と変形、日本物理学会 2013 年秋季大会、2013 年 9 月 28 日、徳島大学
- ⑫ 高橋、岩下、木村、液晶電気対流中のコロイド粒子系のダイナミクス、日本物理学会 2013 年秋季大会、2013 年 9 月 28 日、徳島大学
- ⑬ 大久保、岩下、木村、光駆動コロイド系のダイナミクス、日本物理学会 2013 年秋季大会、2013 年 9 月 28 日、徳島大学
- ⑭ Y. kimura、Interparticle force between nematic colloids、12th European Conference on Liquid Crystals、2013 年 9 月 26 日、ロードス島
- ⑮ K. Izaki, Y. Iwashita, Y. kimura、Interaction between nematic colloids with different types of defects、12th European Conference on Liquid Crystals、2013 年 9 月 26 日、ロードス島
- ⑯ Y. kimura 他、Hydrodynamically induced collective motion of optically driven colloidal particles on a ring、International Soft Matter Conference 2013、2013 年 9 月 16 日、ローマ大学
- ⑰ S. Tanaka, Y. kimura 他、Melting of a finite-sized two-dimensional colloidal crystal、International Soft Matter Conference 2013、2013 年 9 月 16 日、ローマ大学
- ⑱ 井崎、岩下、木村、ネマチックコロイドの異方的相互作用、日本物理学会第 68 回年次大会、2013 年 3 月 29 日、広島大学
- ⑲ 田中、岩下、木村、有限サイズのコロイド凝集体の融解・昇華、日本物理学会第 68 回年次大会、2013 年 3 月 29 日、広島大学
- ⑳ 木村康之 (招待講演)、ネマチックコロイドの相互作用と構造形成、東北大学物性コロキウム、2012 年 12 月 18 日、東北大学
- ㉑ 井崎、岩下、木村、異種欠陥を伴うネマチックコロイドの粒子間相互作用、第 2 回ソフトマター研究会、2012 年 9 月 25 日、九州大学
- ㉒ 木村他、円環上を運動する粒子系が示すリズム運動、第 2 回ソフトマター研究会、2012 年 9 月 25 日、九州大学
- ㉓ 柴田、岩下、木村、流体力学的に結合した光駆動コロイド粒子の集団運動、第 2 回ソフトマター研究会、2012 年 9 月 25 日、九州大学
- ㉔ 田中、岩下、木村、孤立した 2 次元コロイド凝集体の融解、第 2 回ソフトマター研究会、2012 年 9 月 24 日、九州大学
- ㉕ 田中、岩下、木村、有限サイズの 2 次元コロイド凝集体の融解、日本物理学会 2012 年秋季大会、2012 年 9 月 20 日、横

- 浜国立大学
- ②⑥ 井崎、岩下、木村、異種欠陥を伴うネマチックコロイドの粒子間相互作用、2012年9月18日、横浜国立大学
  - ②⑦ K. Izaki and Y. Kimura、Anisotropic Interparticle Force in Nematic Colloids、24th International Liquid Crystal Conference、2012年8月23日、マインツ
  - ②⑧ Y. Kimura 他、Interparticle Force in Nematic Colloids- Comparison between Experiment and Theory、24th International Liquid Crystal Conference、2012年8月23日、マインツ
  - ②⑨ Y. Kimura (招待講演)、Mesoscopic mechanical properties of bilayers systems、Biological & Pharmaceutical Complex Fluids: New Trends in Characterizing Microstructure, Interactions & Properties ECI Conference、2012年8月2日、トマール
  - ③⑩ 佐々、岩下、木村他、駆動コロイド粒子が示すリミットサイクルとそのスイッチング現象、日本物理学会第67回年次大会、2012年3月27日、関西学院大学
  - ③⑪ 柴田、岩下、木村他、流体力学的に結合した駆動コロイド粒子の集団運動、日本物理学会第67回年次大会、2012年3月27日、関西学院大学
  - ③⑫ S. Tanaka, Y. Iwashita, Y. Kimura、Melting of an isolated two-dimensional colloidal crystal、Phase Transition Dynamics in Soft Matter、2012年2月21日、京都大学
  - ③⑬ K. Izaki, Y. Iwashita, Y. Kimura 他、Interparticle force in nematic colloids、Phase Transition Dynamics in Soft Matter、2012年2月20日、京都大学
  - ③⑭ Y. Kimura (招待講演)、Introduction to electrophoretic light scattering、NICEM、2011年9月29日、ソウル国立大学
  - ③⑮ 柴田、岩下、木村、駆動されたコロイド粒子の集団運動、日本物理学会2011年秋季大会、2011年9月23日、富山大学
  - ③⑯ 佐々、岩下、木村、流体力学的に結合したコロイド粒子系の運動、日本物理学会第68回年次大会、2011年9月21日、富山大学
  - ③⑰ Y. Kimura、Interparticle force in nematic colloids、8th liquid Matter Conference、2011年9月9日、ウィーン大学
  - ③⑱ Y. Sassa、Y. Kimura 他、Hydrodynamically induced collective motion of driven particles on a ring、8th liquid Matter Conference、2011年9月6日、ウィーン大学

- ③⑲ 梶海、岩下、木村他、液晶コロイドの異方的相互作用、第1回ソフトマター研究会、2011年8月3日、キャンパスプラザ京都
- ④⑩ 柴田、岩下、木村他、駆動されたコロイド粒子の集団運動、第1回ソフトマター研究会、2011年8月3日、キャンパスプラザ京都
- ④⑪ 佐々、岩下、木村他、円環上を駆動されるコロイド粒子のダイナミクス、第1回ソフトマター研究会、2011年8月3日、キャンパスプラザ京都
- ④⑫ Y. Kimura (招待講演)、Nematic Colloids-Interaction between particles in anisotropic liquids、th international mini-symposium on liquids、2011年6月26日、岡山大学

[その他]  
 ホームページ等  
<http://mag.phys.kyushu-u.ac.jp>

## 6. 研究組織

### (1) 研究代表者

木村 康之 (KIMURA, YASUYUKI)  
 九州大学・大学院理学研究院・教授  
 研究者番号：00225070

### (2) 研究分担者

岩下 靖孝 (IWASHITA, YASUTAKA)  
 九州大学・大学院理学研究院・助教  
 研究者番号：50552494