

2022年度 一般財団法人杉山産業化学研究所 研究助成 成果報告書

研究課題

ドラッグデリバリーシステムへの応用を目的とする O/W エマルションの複合制御

研究者所属・氏名 立命館大学 理工学部機械工学科 准教授 吉岡修哉

本研究の目的は、O/W エマルションに含まれる油滴を電界と磁界を用いて複合制御する事である。研究助成により得られた 2022 年度の研究成果は以下のとおりである。

【電界による制御】

分岐流路内を流れる O/W エマルション油滴を電界により片方の分岐に誘導制御する技術を確立した（研究成果①）。

【磁界による制御】

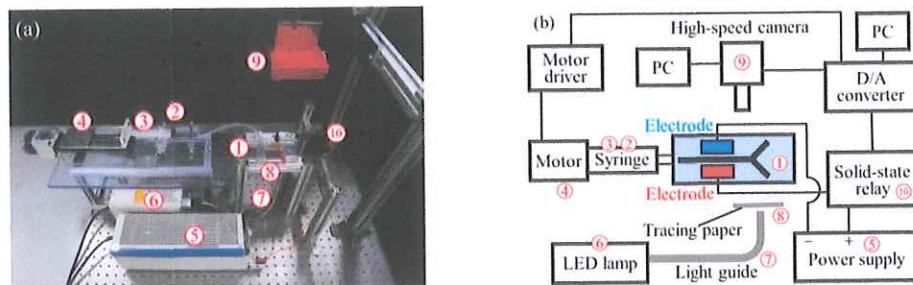
O/W エマルションの油滴内に磁性粒子を導入した S/O/W エマルションを作成し、この油滴を磁界により動かす事に成功した。次に分岐流路内にこの S/O/W エマルション油滴を流し、一部の油滴について片方の分岐に誘導制御する事が出来た（研究成果②）。

上記のとおり電界による制御については、静水中だけでなく流水中においてもエマルション油滴の挙動を制御する事が出来た。また、制御能力に与える油滴の移動速度や印加する電界強度の影響についても明らかにした。

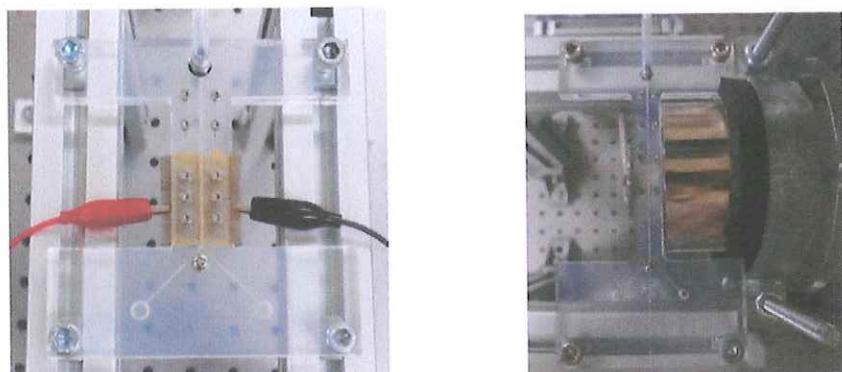
磁界による制御については、まずエマルション油滴に磁性を与える方法から検討した。当初は界面活性剤を添加した油滴の表面に、電荷をもつ磁性粒子を付着させる方法を試みた。しかしこの方法では油滴に十分な磁性を与える事が出来なかった。この原因として、界面活性剤と磁性粒子の間に働くクーロン力が十分ではなかったためと考えられる。そこで次に、油滴の内部に磁性粒子を含ませる方法を試みた。ここでは、油の中にあらかじめ磁性粒子を拡散させ、これを油滴に細分化したうえで水中に拡散させた。この方法により、磁性粒子（Solid）を含む油滴（Oil）が水中（Water）に拡散する S/O/W エマルションを作成した。このエマルション油滴に対して、前述の電界の場合と同様に分岐流路を流す実験を行った。その結果、サイズが大きい油滴に限り片方の分岐に誘導制御する事が出来た。サイズの小さい油滴を制御する事が出来なかった理由は、その中に含まれる磁性粒子の量が少ないと考えられる。

研究助成申請時には、電界と磁界を同時に作用させる複合制御の実現までを計画していた。しかしながら、上記のとおり磁界による制御が可能なエマルション油滴が、サイズの大きいものに限られるという結果になった。この問題を解決する事が出来なかつたため、2022

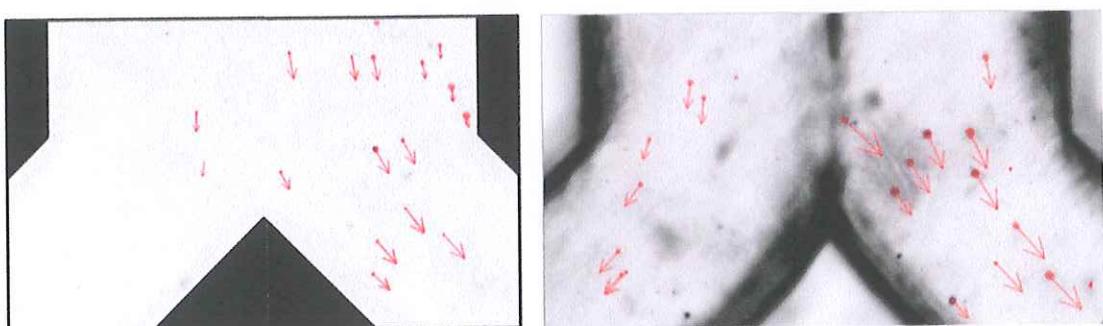
年度中には複合制御を実現する事が出来なかった。今後、S/O/W エマルション油滴のサイズや内包する磁性粒子の量が与える制御能力への影響を調査し、磁界による誘導制御の技術を確立する。その後、電界と磁界による複合制御の実現を目指す。



実験装置 分岐流路、エマルション導入装置、電源などで構成される



分岐流路 分岐部分に（左）電界生成用電極、（右）磁界生成用磁石が設置されている



分岐部分を右側に誘導されるエマルション （左）電界（右）磁界による誘導制御の様子

研究成果

- ① 蛾原淳志、吉岡修哉、分岐流路を流れる O/W エマルション油滴の電界による誘導、実験力学、23-1、pp. 75-81 (2023)
- ② 蛾原 淳志、吉岡 修哉、磁界を用いた S/O/W エマルションの挙動制御、日本機械学会関西支部第 98 期定時総会講演会 30705 (2023)

磁界を用いた S/O/W エマルションの挙動制御

Motion Control of S/O/W emulsion by Magnetic Field

学 ○ 蟹原 淳志 (立命館大院), 正 吉岡 修哉 (立命館大)
 Atsushi EBIHARA, Graduate School of Ritsumeikan University
 Shuya YOSHIOKA, Ritsumeikan University

Keywords: エマルション, 油滴, 磁性粒子, 磁界, SPG 膜, PTV

磁界を用いて S/O/W エマルション油滴(磁性粒子入り油滴)の挙動を制御する。本報では 2 種類の実験を行った。まず、流水中を流れる油滴の挙動を制御した。流路下流に Y 字の分岐を設け、磁界によって油滴を意図した分岐に誘導した。その結果、油滴径が大きいほど誘導しやすいことがわかった。次に、静水中で油滴に磁界を与え、油滴径と移動速度の関係を調べた。その結果、油滴の移動速度は油滴径に依存することが明らかとなった。

1 緒 言

本研究の目的は、磁界を用いてエマルション油滴の挙動を制御することである。挙動を制御するためには、油滴に磁性を付与する必要がある。そこで、本報では磁性粒子を内部に含んだ S/O/W(Solid-in-Oil-in-Water)エマルション油滴を用いる。S/O/W エマルションを扱った先行研究では、静水中の油滴を磁石によって誘導できることが明らかとなった。¹⁾しかし、油滴の誘導技術を DDS²⁾などの医療分野などに応用するためには、より複雑な条件下での誘導が求められる。そこで本研究ではまず、流水中を流れる油滴の挙動を制御する。流路側面から磁界を加え、流路下流に設けた分岐部で意図した分岐に油滴を誘導することを試みた。その結果、油滴径が大きいほど誘導しやすいことがわかった。次に油滴径と移動速度の関係を調べた。その結果、油滴径が大きいほど、磁界によって生まれる移動速度が大きくなることが明らかとなった。

2 S/O/W エマルションの作製方法

S/O/W エマルション油滴の模式図と画像を Fig.1 に示す。本研究では、S/O/W エマルションを、シリンジと SPG テクノ株式会社製のポンピングコネクタを用いて 2 段階の工程で作製する。このコネクタは内部に SPG 膜(シラス多孔質ガラス)を持つ。³⁾

- ① Fig.2 と Fig.3 に示すように、ベニバナ油が 1.2mL、磁性粒子が 0.3mL 入ったシリンジをポンピングコネクタで接続する。コネクタ内部の疎水性 SPG 膜の平均細孔径は 30μm である。この状態で左右のシリンジを交互に押すことで、次第に油が連続相となり、内部に磁性粒子が分散する。シリンジを左右 1 回ずつ押す動作を 50 回繰り返した。
- ② Fig.4 に示すように、磁性粒子が分散した油が 0.4mL、水溶液が 4.0mL 入ったシリンジをポンピングコネクタで接続する。水溶液とは、カチオン界面活性剤(トリメチルテトラデシルアンモニウムクロリド)を純水に臨界ミセル濃度まで添加したものである。界面活性剤は油滴の分散性を高めるために使用した。また、コネクタ内部の親水性 SPG 膜の平均細孔径は 50μm である。シリンジを左右 1 回ずつ押す動作を 20 回繰り返した。

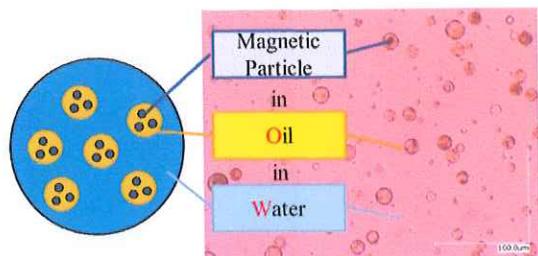


Fig.1 S/O/W emulsion

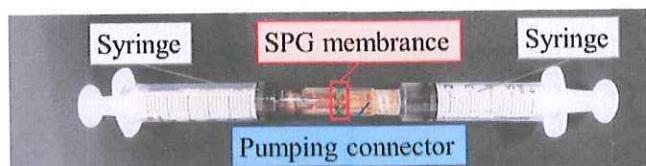


Fig.2 Experimental device

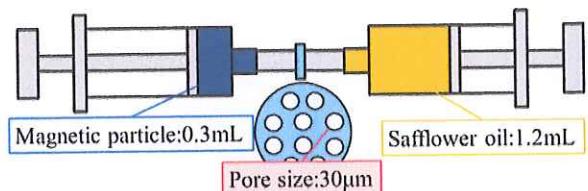


Fig.3 Manufacturing process 1

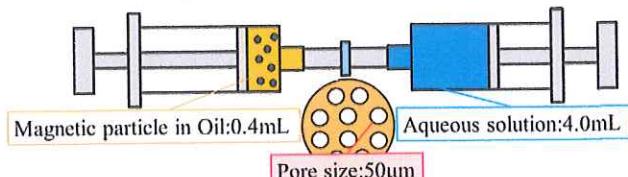


Fig.4 Manufacturing process 2

作製した油滴群の油滴径 d_{od} をヒストグラムに表したものを見 Fig.5 に示す。平均油滴径 $D_{od}=12.4\mu m$ であった。以降の実験では、これと同様の径を持つ油滴を取り扱う。

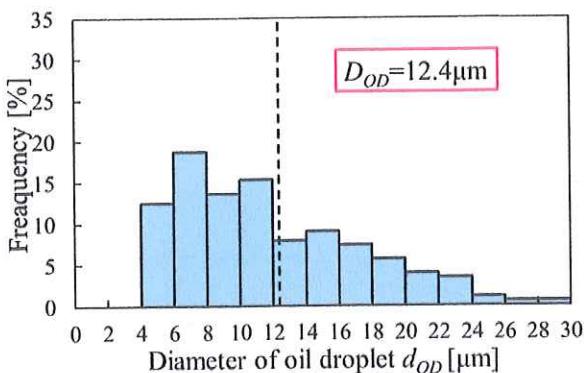


Fig.5 Histogram of diameter of oil droplets in S/O/W emulsion

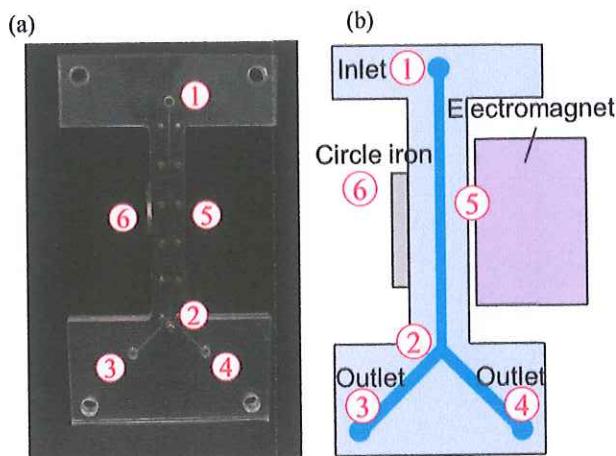


Fig.6 Bifurcating channel. (a)Top view, (b)schematic

3 流水中の油滴の挙動制御

3・1 分岐流路

Fig.6(a), (b)に、実験に用いた分岐流路の写真と模式図を示す。分岐流路は加工したアクリル2枚を重ね合わせている。また、2枚の間には防水用のシリコンシートを挟んでいる。実際の流路部分はアクリル中央にある。実験では、この流路にS/O/Wエマルション油滴を流し、磁界を加える。油滴は流入口①から流速5mm/sの一定流速で流した。油滴は流入口①からY字の形をした分岐部②を通る。ここまででの流路は長さ110mm、断面は幅1mm、高さ2mmである。分岐部②を通過した後、油滴は流出口③、④から流路外部に流れる。分岐部から左右の流出口までの流路は長さ25mm、断面は幅0.5mm、高さ2mmである。油滴が流路内を流れる際、右側面⑤から電磁石で磁界を加える。また、流路左側面にはSUS430製の円形鉄板を取り付けてある。この鉄板には、電磁石から伸びる磁力線を流路と直行させる役割がある。

3・2 実験内容

電磁石の磁界により、分岐流路内を流れる油滴を右側の分岐に誘導する。使用した実験装置全体の写真と模式図をFig.7(a), (b)に示す。前述の分岐流路①は、写真中央やや右よりに位置するアルミフレーム上に水平に設置した。分岐流路の流入口をシリンジ②とシリコンチューブで接続した。シリンジには、希釀したS/O/Wエマルションが入っている。また、シリンジは自動ステージ③と連動する。ステッピングモータ

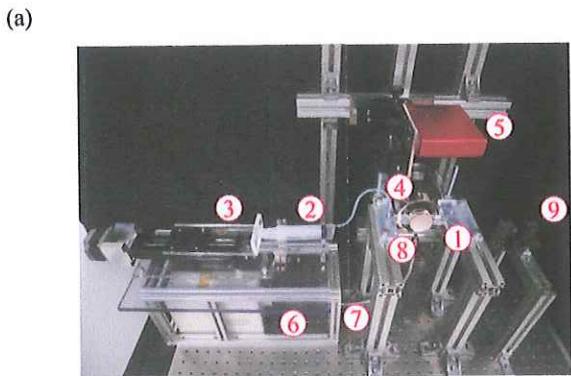


Fig.7 Experimental apparatus. (a)Overview, (b)schematic

ーで駆動される自動ステージが動くとシリンジのピストンが押される。それにより、シリンジ②内部のS/O/Wエマルションが流速5mm/sで分岐流路内に流入する。写真的分岐流路の奥側には、電磁石④(株式会社フジタ製FSGP-90)を設置した。電磁石④は写真外にある30Vに設定した定電圧電源と接続している。これにより、電磁石から分岐流路の右側面に向かって磁界が発生する。分岐流路の約20cm上に撮影用のハイスピードカメラ⑤(株式会社ディテクト製HAS-EF)を下向きに取り付けた。カメラには株式会社ケンコー・トキナー製の倍率8倍マクロレンズであるKCM-8を取り付けた。これらにより、流路内を流れるS/O/Wエマルション油滴を撮影する。撮影位置は分岐部であり、高さ2mmの流路の高さ方向の中央断面である。撮影画像の上側が上流、下側が下流になるよう調節した。その際、撮影領域は縦0.70mm、横1.24mmであり、画像は縦1080ピクセル、横1920ピクセルで構成される。また、撮影の際にLED光で分岐流路を下側から照らした。LED光をLED光源⑥からライトガイド⑦で分岐流路下まで導いた。LED光はライトガイド先端と分岐流路の間に設置したトレーシングペーパー⑧を通って拡散する。自動ステージの動きと撮影開始時刻を、別に用意したPCとD/Aコンバーターから出力されるトリガー信号によって管理した。電磁石の出力についても、このトリガー信号によりリレー⑨を作動させることで管理した。

Fig.8は実験装置に固定された分岐流路を上から撮影した写真である。分岐流路右側面が電磁石と接している。そのため、流路を流れる油滴はFig.8の画像右側から磁力を受ける。この分岐部の連続画像を撮影し、画像からエッジ検出により油滴を抽出した。抽出には、株式会社フローテック・リサーチ製ソフトウェア Ftr-PIV の粒子解析機能(PIA)⁴⁾を使用した。

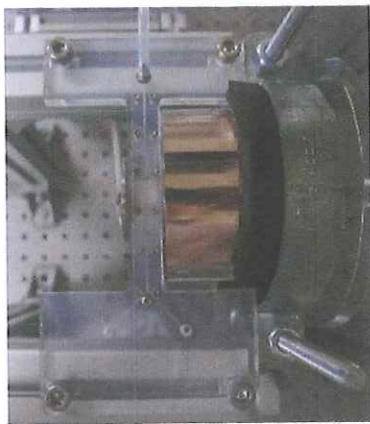


Fig.8 Bifurcating installed in experimental set up

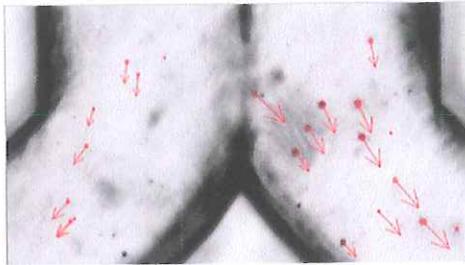


Fig.9 Oil droplets flow in bifurcating region.
Arrow show velocity vectors

3・3 実験結果と考察

分岐流路の分岐部を撮影し、左右の分岐に流れる油滴の割合を調べた。シリジンから流入する S/O/W エマルジョンの平均流速は 5mm/s とした。また、ハイスピードカメラのフレームレートを 250fps とした。S/O/W エマルジョンが流路を流れる際、磁界を加えてから 10 秒後に撮影を開始し、3.5 秒間撮影した。磁界は流路右側面に設置した電磁石から発生させる。電磁石と接続した定電圧電源を電圧 30V に設定した。

Fig.9 に撮影された画像の一例を示す。図には、株式会社フローテック・リサーチ製 Ftr-PIV の粒子追跡機能 (PTV)⁴⁾により算出された速度ベクトルも同時に示す。また、撮影した画像から PIA により左右の分岐に流れる油滴数を計測し、その割合を Fig.10 の円グラフで示す。これらを見ると、左分岐に流れる油滴より、右分岐に流れる油滴が多いことがわかる。予備実験にて、磁界を加えていない場合油滴は左右均等に流れることを確認している。そのため、右分岐に流れる油滴が増加したのは、油滴が磁界の影響を受けたと考えられる。流路右側面に設置した電磁石に油滴内部の磁性粒子が反応し、分岐部上流で油滴が流路右側に引き寄せられた。油滴はそのまま下流まで流れ、結果的に右分岐に誘導されたと考えられる。

また、Fig.10 の円グラフを油滴径ごとに調べてみると、油滴径が大きいほど右分岐に誘導された油滴の割合が多いことが分かった。例えば、油滴径 4-6μm の油滴は 54.8%，油滴径 10-12μm の油滴は 57.7%，油滴径 16-18μm の油滴は 70.2% が右分岐に誘導された。この結果より、磁界による油滴の誘導には、油滴径が関係していると考えられる。そこで、第 4 節で磁界をえた際の油滴径と移動速度の関係を調べた。

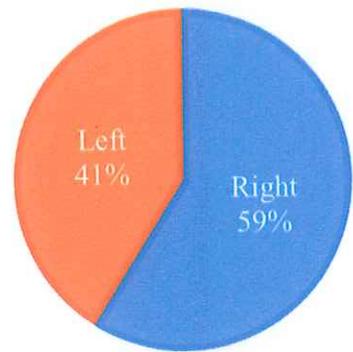


Fig.10 Pie chart of oil droplets flow in left and right bifurcating region

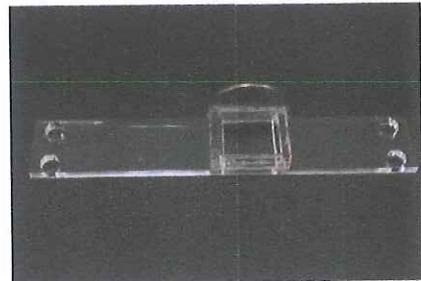


Fig.11 Emulsion tank

4 静水中の油滴の挙動制御

4・1 実験内容

S/O/W エマルジョン油滴の径と磁界によって生まれる移動速度の関係を調べる。実験は Fig.11 の小型水槽内で行なった。この小型水槽はアクリル製であり、内寸は縦 30mm、横 26mm、深さ 10mm である。この水槽に水溶液で 100 倍に希釈した S/O/W エマルジョンを入れる。その後、厚さ 2mm のポリエチレンテレフタレート (PET) 製平板で蓋をする。また、第 3 節の分岐流路と同様の目的で円形鉄板を取り付けてある。

実験装置全体の写真と模式図を Fig.12(a), (b) に示す。実験装置は小型水槽以外第 3 節と同様のものを使用した。前述の小型水槽①は写真中央やや左にあり、Fig.13 のようにアルミフレームに固定されている。小型水槽の側面から電磁石②で磁界を加える。電磁石は直列に接続した 3 つの定電圧電源に繋がっている。実験時には、定電圧電源を 90V に設定した。電磁石から発生する磁力により、小型水槽内を漂う油滴が電磁石方向に誘導される。その様子を水槽上面からハイスピードカメラ④で撮影した。撮影の際、電磁石側の水槽内壁から 5mm の位置を 250fps で撮影した。ただし、このままでは撮影間隔が短いため、移動速度の計測には適さない。Ftr-PIV の PTV を行う際には取得した画像 10 枚ごとに 1 枚を抜き出して使用した。そのため、実質的に使用したフレームレートは 25fps である。撮影画像は縦 1600 ピクセル、横 1200 ピクセルで構成される。また、電磁石が右側になるよう固定した。実験時には、LED 光で小型水槽を下から照らした。さらに、第 3 節と同様の方法で撮影の開始と磁界を加えるタイミングを管理した。

(a)



(b)

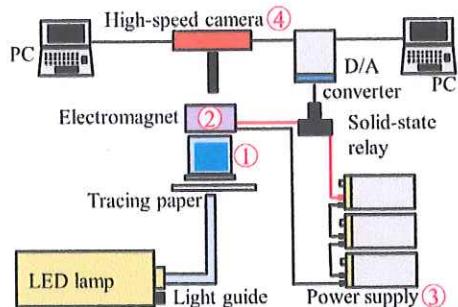


Fig.12 Experimental apparatus. (a)Overview, (b)schematic

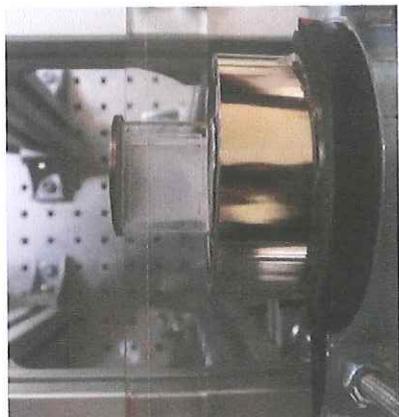


Fig.13 Emulsion tank installed in experimental set up

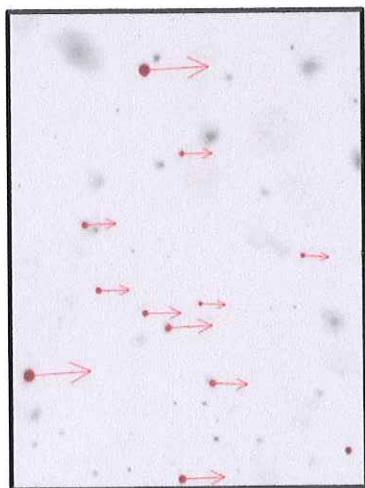
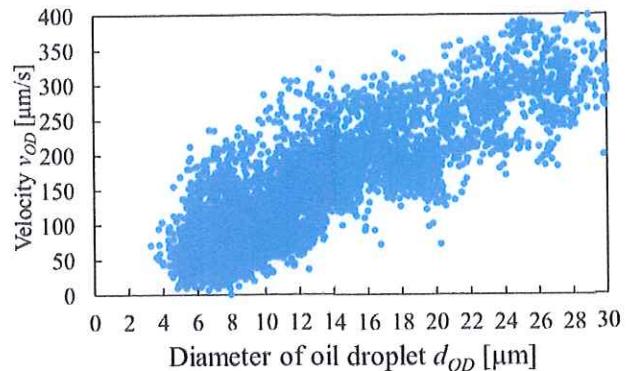


Fig.14 Oil droplets in emulsion tank. Arrow show velocity vectors

Fig.15 Relationship between diameter d_{OD} and velocity of oil droplet v_{OD}

4・2 実験結果

小型水槽内のS/O/Wエマルション油滴の移動速度を計測した。撮影は、磁界を加えてから0.5秒後に開始し、3.5秒間行った。電磁石と接続した定電圧電源は90Vに設定した。Fig.14は磁界を加え、小型水槽内を撮影した画像の一例である。粒子追跡機能(PTV)により算出された速度ベクトルも同時に示す。画像右側に電磁石があるため、油滴は画像右方向に誘導された。本研究では得られた移動速度から電磁石方向への移動速度 v_{OD} を計測した。以後の検討では、油滴の移動速度としてこの v_{OD} を用いる。

Fig.15に計測対象となった油滴の移動速度 v_{OD} を油滴径 d_{OD} ごとに示す。移動速度 v_{OD} の正の値は、電磁石方向へ誘導されたことを示している。移動速度 v_{OD} はバラつきが見られるものの、油滴径 d_{OD} が大きくなるとともに増加した。この様な傾向が得られたのは、油滴内部の磁性粒子の量が関係していると考えられる。油滴径が大きいほど、内部に分散した磁性粒子の量が増加する。それに伴い、油滴の磁気量が増加し、電磁石から受ける力が強まったと考えられる。

5 結論

S/O/Wエマルションに磁界を与え、油滴の挙動を調べた。まず、流れのある分岐流路中で油滴に磁界を与えたことで、油滴が右分岐に流れる割合が増加した。また、油滴径が大きいほど誘導割合が増加することもわかった。次に、静水中で油滴の移動速度を調べた。その結果、油滴径が大きいほど、磁界によって生まれる移動速度が増加することがわかった。

参考文献

- 1) 常川洋暉, 吉岡修哉, “磁界を用いたS/O/Wエマルションの運動制御”, 日本機械学会関西支部講演会講演論文集第96巻(2021年掲載).
- 2) 藤原正浩 “ドラッグデリバリーシステム”, 日本食品科学工学会誌第57巻9号(2010年掲載), pp. 400.
- 3) 中嶋忠夫, 清水正高, “多孔質ガラス膜による単分散O/Wエマルションの調整”, 化学工学論文集第19巻6号(1993年掲載), pp. 984-990.
- 4) Flowtech Research Inc., “Ftr-PIV operation guide”.

論 文

分岐流路を流れる O/W エマルション油滴の電界による誘導

蛇原淳志*, 吉岡修哉**

Manipulation of Oil Droplets in O/W Emulsion Flow
in Bifurcating Channel by Electric Field

Atsushi EBIHARA and Shuya YOSHIOKA

Manipulation of oil droplets in O/W emulsion flow in bifurcating channel by externally applied electric field is experimentally attempted. The oil droplets in the O/W emulsion are charged with positive electricity in advance by adding cationic surfactant. Positive and negative electrodes are installed in both sides of the channel just before the bifurcating region to generate an electric field in spanwise direction. In the region where electric field is applied, positively charged oil droplets flow toward the negative electrode located in right-hand side of the channel. Oil droplets finally tend to be directed to the right-hand side branch at the bifurcation. Rate of number of oil droplets directed to the right-hand side branch increases with increase of the concentration of the cationic surfactant as long as the concentration is less than critical micelle concentration (CMC) of the cationic surfactant. When the concentration exceeds CMC, the rate keeps almost constant. This may because the surface of the droplet is fully covered by the surfactant when the concentration exceeds CMC.

Keywords: O/W emulsion, Oil droplet, Manipulation, Bifurcating channel, Electric field, Surfactant, Critical micelle concentration, PTV

1. 緒論

本研究の目的は、O/W エマルションに含まれる油滴群の挙動を能動的に制御する事である。著者らはこれまでに、イオン性界面活性剤により電荷を与えた油滴群を、外部から与える電界により動かす手法を検討してきた。前報¹⁾では、静水中に分散する油滴群を対象とし、これらを電界により電極方向に移動させる手法を報告した。本報はその統報として、2方向に分岐する流路（上流側に1つの流入口と下流側に2つの出口を持つ分岐流路）を流れる油滴群を対象とし、この油滴群を電界により片側の分岐へ誘導する事を試みる。

水中（あるいは油中）に広く混在する油滴（あるいは水滴）を外部から与える電界により大規模に移動させる技術は、水処理等における油水分離やエマルションの解乳手法等として広く用いられている。近年では、電界を用いてエマルション内の分散相の挙動をより精密に制御する技術も検討されている。これは、マイクロチャネル内のエマルション流れによく適用されている。制御手法は、静電力や誘電泳動を利用する例が多い。これらの中でも特に、マイクロチャネル内に設けられた多方向に分岐する分岐流路にて、分散相を特定の分岐に誘導して下流に流す研究の例²⁻⁸⁾を Table 1 に示す。分岐流路として、2方向に分岐するもの（Bifurcation）と、3方向に分岐するもの（Trifurcation）を用いる例がある。2方向分岐流路（Bifurcation）のうち、分

岐前の流路と分岐後の流路がなす角度が90°である場合を T junction, 90°以上である場合を Y junction と表記している。また、分散相を水（水滴）、連続相を油とした報告が多い。これらは共通して、少數（目視で一つ一つを追跡できる程度の個数）の分散相を逐次誘導する事を目的としている。

次にエマルションの挙動制御技術を、ドラッグデリバリーシステムや、食品、塗料等の製造分野、さらには化学工

Table 1 Existing studies on droplet manipulation in emulsion flow in bifurcating channel by electric field

Authors	Method	Configuration	Dispersed phase	Continuous phase
Ahn et al. ²⁾	Experiment	Bifurcation (Y junction)	Water	Oil
Link et al. ³⁾	Experiment	Bifurcation (T junction)	Water	Oil
Guo et al. ⁴⁾	Experiment	Trifurcation	Mammalian cell	Soybean oil
Ahn et al. ⁵⁾	Experiment	Trifurcation	Water	Mineral oil
Niu et al. ⁶⁾	Experiment	Bifurcation (T junction)	Water, Ethylene glycol	Silicone oil
Wehking et al. ⁷⁾	Numerical simulation	Bifurcation (T junction)	Water	Silicone oil
Hao et al. ⁸⁾	Numerical simulation	Trifurcation	Different permittivity and electric conductivity fluids	
Present	Experiment	Bifurcation (Y junction)	Safflower oil	Water

原稿受付 2022年7月19日

* 立命館大学大学院理工学研究科(〒525-8577 滋賀県草津市野路東1丁目1-1)

** 正会員 立命館大学理工学部(〒525-8577 滋賀県草津市野路東1丁目1-1)

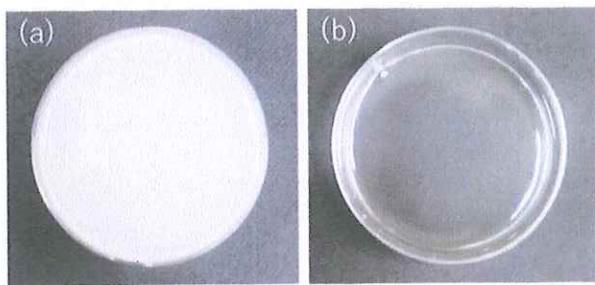


Fig. 1 O/W emulsion generated by SPG membrane module¹⁾.
(a) Before dilution, (b) after dilution

学プラント等へ応用する事を考える。この場合は上記の既存研究例と比較して、より大量の分散相群の挙動を、より複雑に制御する技術も求められる。

そこで本研究は、多数の油滴群（分散相）を水中（連続相）に含む O/W エマルションを対象とした。さらに外部から与える電界により油滴群（分散相）の挙動を制御するため、油滴群（分散相）には予めイオン性界面活性剤を添加して電荷を与えた。この O/W エマルションを 2 方向に分岐する分岐流路に流し、外部から与える電界により油滴群を片側の分岐に誘導する手法を試みた。この手法によれば、帯電させる電荷の正負や大きさは、界面活性剤のイオン性や濃度により容易に変えることができる。さらに、作用させる電界の強度や方向を変えることで、より複雑なエマルションの制御が実現すると期待される。

2. O/W エマルションの作成と電荷の付与

本実験では、シラス多孔質ガラス膜（以後 SPG 膜と略す）を用いて O/W エマルションを作成した。この際にイオン性界面活性剤を添加する事で、O/W エマルションに含まれる油滴に電荷を与えた。この一連の工程は前報¹⁾と同一なので、ここでは以下にその概要のみを説明する。

本実験で用いる O/W エマルションの連続相は純水（脱イオン水）、分散相は食用サフラン油である。まず、純水 500mL にカチオン界面活性剤のトリメチルテトラデシルアンモニウムクロリド（臨界ミセル濃度 $C_{CMC} = 4.5 \times 10^{-3} \text{ mol/L}$ ⁹⁾ を添加する。これにより、4 節にて後述する濃度の界面活性剤水溶液を調製する。なお界面活性剤の添加量は十分少なく、連続相の粘度への影響はほとんどない。これに食用サフラン油 50mL を加える。これをマグネチックスターラーで攪拌することでプレミックスエマルションを作成する。次にこのプレミックスエマルションを、SPG 膜を内蔵するモジュール（エス・ピー・ジー・テクノ株式会社製）に圧入し、内部で SPG 膜を通過させる。分散相のサフラン油が SPG 膜の細孔を通過する際に微細化することで、O/W エマルションが生成される。本実験では、平均細孔径 50 μm の SPG 膜を使用した。SPG 膜への圧入圧力は 0.5 MPa とした。

作成した O/W エマルションは油滴の数密度が大きく、速

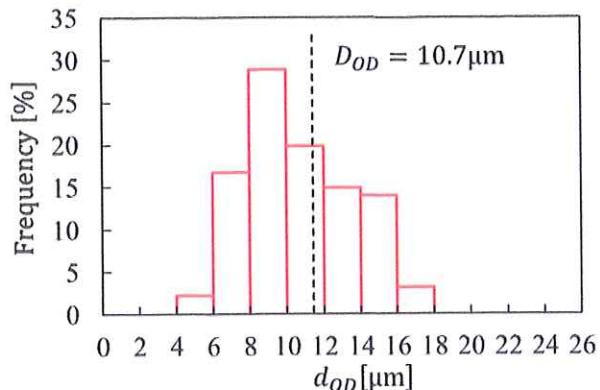


Fig. 2 Histogram of diameter of oil droplets in O/W emulsion¹⁾

度計測用に撮影する画像内で油滴の重なりが生じやすい。そのため速度計測が困難になる事がある。また油滴間の距離が近いと、着目する油滴の運動が周囲に存在する油滴の影響を受ける可能性がある。そのため本実験では、作成した O/W エマルションを 100 倍（4.1 項の実験）ないし 500 倍（4.2 項の実験）の体積の連続相で希釈して油滴の数密度を下げた。Fig. 1 に、希釈前（Fig. 1(a)）と 100 倍に希釈後（Fig. 1(b)）の写真¹⁾を示す。なお事前に実施した予備実験により、希釈倍率が 100 倍以上であれば、希釈倍率が油滴の速度に与える影響がないことを確認している。

この O/W エマルションに含まれる油滴の直径 d_{OD} は、Fig. 2 のヒストグラムに示す通り、個数平均値 $D_{OD} = 10.7 \mu\text{m}$ 附近に単一のピークを持って分布している¹⁾。油滴表面の油水界面には、添加されたカチオン界面活性剤が吸着するため、油滴は正電荷を帯びる。この油滴に電界が作用すると、クーロン力により油滴は負極方向に移動する¹⁾。

3. 実験装置

3. 1 分岐流路

Fig. 3(a), (b) に、実験に用いた分岐流路の写真と模式図を示す。O/W エマルションは、入口①から一定流量で流路内の導入部分に流入する。この導入部分は、長さ 60mm、断面の幅 1mm、高さ 2mm の直線流路である。流路は分岐部②で左右 2 方向に分岐する。分岐後の各流路は、長さ 25mm、断面は幅 0.5mm、高さ 2mm の直線流路である。端部③④は流路の出口で、O/W エマルションはここから外部に排出される。分岐部直前の流路側面には、鉄製の正電極⑤を左側に、負電極⑥を右側に設置した。電極の大きさは、流れ方向の長さ 30mm、幅 13mm である。これらの電極により、電極間の流路内には流れと垂直方向（図では左右方向）の電界が生成される。界面活性剤の添加により正電荷を帶びた油滴群は、この電界の影響により、負電極⑥がある右側に移動しつつ流路内を流下する。そのため油滴は、電極間を通過直後の分岐部②にて、右側の分岐に多く誘導される。

Fig. 3(c) の断面図に示すように、流路は 2 枚の透明アクリル板に挟まれた部分に作成した。正負の両電極は上側のア

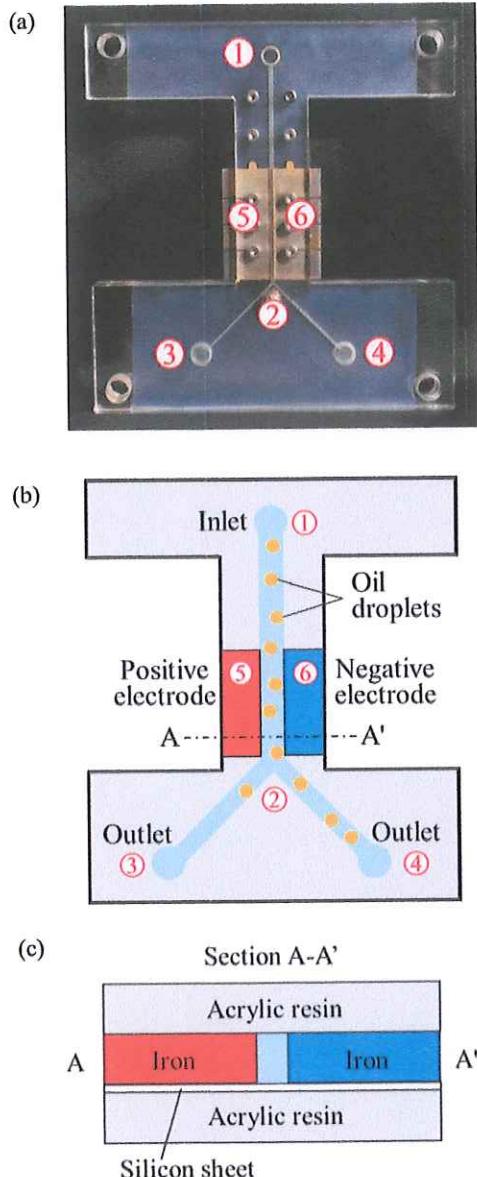


Fig. 3 Bifurcating channel. (a) Top view, (b) schematic, (c) schematic of cross section A-A'

クリル板に接着した。下側のアクリル板上には、防水用のシリコンシートを装着した。

3. 2 油滴の速度計測

実験装置全体の写真と模式図を Fig. 4(a), (b) に示す。分岐流路①は、Fig. 4(a) の写真中央やや右よりに位置するアルミフレーム上に水平に設置した。分岐流路①の入口 (Fig. 3(a), (b) の①) は、シリンジ②とビニールチューブで接続されている。このシリンジ②の中には、作成された O/W エマルションが入る。シリンジのピストン③は、ステッピングモーターで駆動される自動ステージ④に固定されている。この自動ステージにより、シリンジから分岐流路内に O/W エマルションが一定流量で導入される。

分岐流路内の正負両電極は、定电压电源⑤に接続した。電極間电压は 3.0V とした。これにより、電極間に電界が生

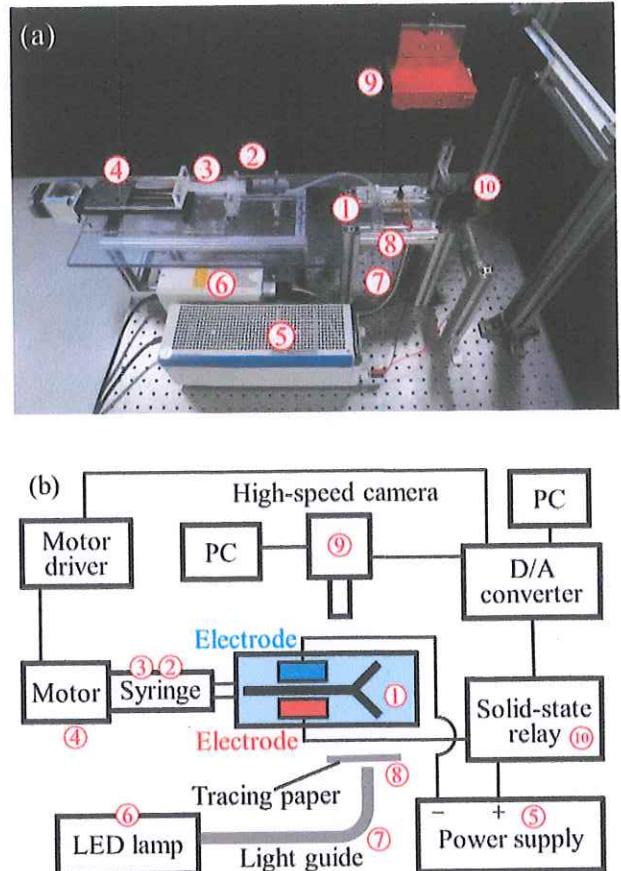


Fig. 4 Experimental apparatus. (a) Overview, (b) schematic

成される。分岐流路は、LED 光により照明した。LED 光は、ランプハウス⑥内の光源から分岐流路①の直下まで、ライトガイド⑦により導いた。LED 光は、ライトガイド先端と分岐流路の間に設置したトレーシングペーパー⑧を通過して拡散し、分岐流路を底面側から照明する。

水槽の上には、撮影用のハイスピードカメラ⑨（株式会社ディテクト製 HAS-EF）を下向きに設置した。これには倍率 8 倍のマクロレンズ（株式会社ケンコー・トキナー製 KCM-8-65, 被写界深度 0.065mm, ワーキングディスタンス 64mm）を取り付けた。上記の通り配置することで、LED 光によって底面側から照明された流路内の油滴の影を、ハイスピードカメラにより流路の上側から撮影した。撮影面は、高さ（カメラ側から見ると奥行き）2mm の流路の、高さ方向の中央断面である。ハイスピードカメラは、画像の上側が上流側、左側が正電極側、右側が負電極側になる向きで、画像の中央に流路幅の中心線が位置するように配置した。撮影される領域は縦 0.70mm、横 1.24mm である。画像は縦 1080 ピクセル、横 1920 ピクセルで構成される。

電極への電圧印加とハイスピードカメラの撮影タイミング及び自動ステージの動作は、別に用意した PC とそれに接続した D/A コンバーターから出力されるトリガー信号によって管理した。電圧の印加は、このトリガー信号によりリレー⑩を作動させる事で行った。

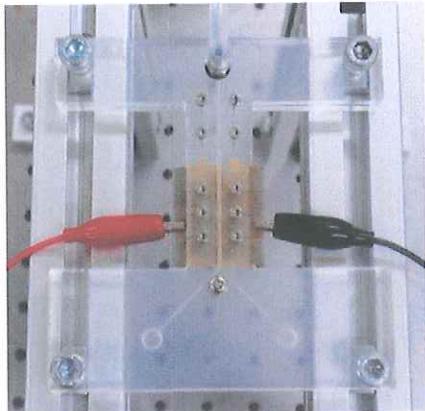


Fig. 5 Bifurcating channel installed in experimental set up

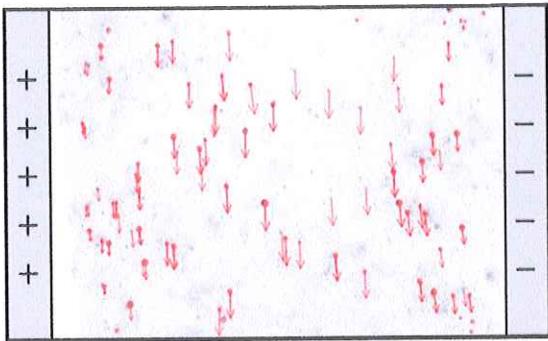
Fig. 6 Oil droplets flow in channel between electrodes. Arrows show velocity vectors. $u = 5\text{mm/s}$, $C/C_{CMC} = 1.00$

Fig. 5 は実験装置に固定された分岐流路を上から撮影した写真である。分岐流路はアルミフレーム上に水平に固定されている。左側の正電極と右側の負電極が、ワニロクリップにより定電圧電源 (Fig. 4 の⑤) に接続されている。

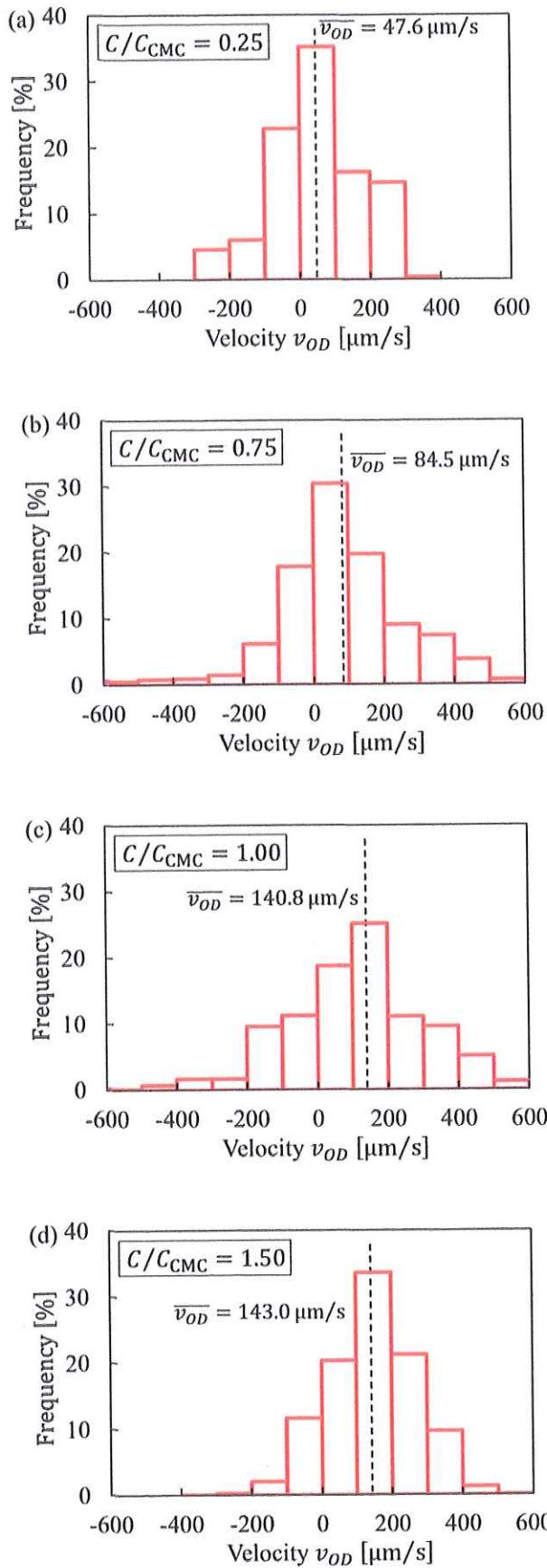
ハイスピードカメラによって撮影された連続画像において、エッジ検出により各油滴を認識した。さらに、認識された各油滴を追跡することで、それぞれの移動速度を算出した。油滴認識と移動速度算出には、株式会社フローテック・リサーチ製ソフトウェア Ftr-PIV が持つ粒子追跡機能 (PTV) を用いた¹⁰⁾。

4. 実験結果及び考察

4. 1 電界による油滴の速度変化

まず、電界が油滴の速度に与える影響について調べた。ここでは、分岐位置より 15mm 上流の、左右方向に電界が作用する領域で油滴群を撮影した。シリングから導入される O/W エマルションのバルク平均速度は $u = 5\text{mm/s}$ とした。ハイスピードカメラのフレームレートは 250fps とした。電圧印加直後は油滴の動きが安定しないため¹¹⁾、撮影は電圧印加の 0.5 秒後から行った。撮影時間は 3.5 秒間とした。実験は、添加するカチオン界面活性剤の濃度 C を $0.25 \leq C/C_{CMC} \leq 3.00$ の範囲で 7 種類変化させて行った。

Fig. 6 に撮影された画像の一例を示す。界面活性剤濃度は $C/C_{CMC} = 1.00$ である。図には、PTV により算出された

Fig. 7 Histograms of v_{OD} . (a) $C/C_{CMC} = 0.25$, (b) $C/C_{CMC} = 0.75$, (c) $C/C_{CMC} = 1.00$, (d) $C/C_{CMC} = 1.50$

各油滴の速度ベクトルも合わせて表示している。油滴は総じて下流方向（画像では下方向）の速度を持っている。ただしそく見ると、やや右方向（負電極方向）の速度成分を持っている。著者らは前報¹⁾にて、静水中に分散する油滴群が電界により電極方向に移動する事を示した。またその移動速度が電界強度と共に増加する事から、油滴はクーロン力により移動している事を示した。従って本実験においても、この右方向（負電極方向）への移動はクーロン力によって生じていると考えられる。

次に、各油滴の速度からその電極方向成分（画像では左右方向成分） v_{OD} を算出した。ここで v_{OD} は、右側の負電極方向を正とした。Fig. 7 に、電極方向速度成分 v_{OD} のヒストグラムを示す。Fig. 7(a)は界面活性剤濃度が $C/C_{CMC} = 0.25$ の場合を示す。ヒストグラムは、平均速度 $\bar{v}_{OD} = 47.6 \mu\text{m}/\text{s}$ 付近に単一のピークを持っている。 \bar{v}_{OD} が正の値を取ることから、油滴群は平均して右側の負電極方向に移動しながら下流に流れている事が分かる。界面活性剤の濃度 C を増加し、 $C/C_{CMC} = 0.75, 1.00, 1.50$ とした場合のヒストグラムを、それぞれ Fig. 7(b), (c), (d)に示す。界面活性剤濃度の増加と共に、ヒストグラムのピーク位置は v_{OD} が増加する方向に移動している。平均速度 \bar{v}_{OD} も界面活性剤濃度と共に増加し、 $C/C_{CMC} = 1.50$ の場合には $\bar{v}_{OD} = 143.0 \mu\text{m}/\text{s}$ に達している。以上より、油滴に作用するクーロン力により、油滴の進行方向が負電極が位置する右側方向に変化する事が示された。

Fig. 8に、油滴の電極方向平均速度 \bar{v}_{OD} と界面活性剤の濃度 C の関係を示す。界面活性剤の濃度 C が低い場合、 \bar{v}_{OD} は界面活性剤濃度と共に増加する傾向が見られる。ただし、臨界ミセル濃度付近 ($C/C_{CMC} \approx 1.00$) で増加の傾向は收まり、それ以上の濃度では $\bar{v}_{OD} \approx 140 \mu\text{m}/\text{s}$ 付近に分布するようになる。界面活性剤濃度が臨界ミセル濃度以下の場合は、界面活性剤濃度の増加と共に油滴の油水界面に吸着する界面活性剤分子の量も増加すると考えられる。従って油滴が持つ電荷も合わせて増加するため、油滴に働くクーロン力も増加し、結果として \bar{v}_{OD} も増加すると推察される。一方、界面活性剤濃度が臨界ミセル濃度に達すると、油滴表面の油水界面は全体が界面活性剤で覆われる。濃度がさらに増加しても、連続相内に界面活性剤のミセルが形成されるのみで、油滴に吸着する界面活性剤の量は大きくは変化しない。そのため \bar{v}_{OD} も大きく変化していない可能性がある。なお、臨界ミセル濃度を境に、低濃度では速度が濃度と共に増加し、高濃度では速度が濃度によらず一定となる現象は、Wuzhang ら¹⁰⁾による油滴の電気泳動の実験でも同様に確認されている。

また、同じ Wuzhang ら¹⁰⁾の報告によれば、イオン性界面活性剤に覆われた油滴に電界が作用した場合、油滴は油滴周囲に生じる電気浸透流に抗して電界中を移動する。さらに、移動する油滴の周囲には渦構造が形成される。このように油滴は電界内に生じる複雑な流れの中を移動している。本実験においても同様に、油滴群は複雑な流動の中を移動

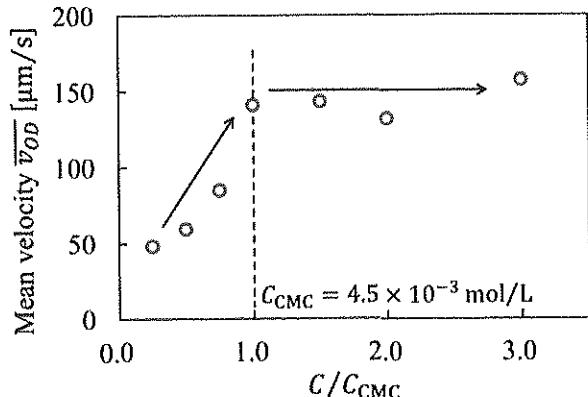


Fig. 8 Effect of surfactant concentration on \bar{v}_{OD}

していると考えられる。そのため現時点では、油滴の移動速度を本実験の実験条件のみから見積ることは困難である。よって、本実験により得られた移動速度やその変化のメカニズムについて詳細に考察する事は出来ない。これについては今後の検討課題とする。

4. 2 油滴の右側分岐への誘導

続いて、電界による油滴群の右側分岐への誘導について調べた。ここでは、分岐流路の分岐位置にて油滴群を撮影した。シリソジから導入される O/W エマルションのバルク平均速度は、 $5.0 \text{ mm}/\text{s} \leq u \leq 20.0 \text{ mm}/\text{s}$ の範囲で 4 段階に変化させた。ハイスピードカメラのフレームレートは 500fps とした。撮影は電圧印加の 4.0 秒後から 3.5 秒間行った。界面活性剤濃度は前項の実験と同様に、 $0.25 \leq C/C_{CMC} \leq 3.00$ の範囲で 7 種類変化させた。

Fig. 9 に撮影された画像の一例を各油滴の速度ベクトルと共に示す。バルク平均速度は $u = 5 \text{ mm}/\text{s}$ 、界面活性剤濃度は $C/C_{CMC} = 1.00$ である。本項の実験では油滴の個数を正確に求めるため、O/W エマルションを前項 4.1 の場合（100 倍）より多い 500 倍の連続相で希釈している。従って、Fig. 9 に写る油滴の数は Fig. 6 に写る油滴の数より少ない。画像上部から流入する油滴群は、上流部の電界の影響により既に右側に偏って分布している。これらの多くが、分岐部分にて右側の分岐に多く流入している。これより、油滴群（分散相）は、水流（連続相）とは独立して右側分岐に誘導されている事が分かる。

次に、流路を流れる O/W エマルションの全油滴の個数に対する、右側分岐に誘導される油滴の個数の割合（誘導率）を求めた。ここでは、ハイスピードカメラで撮影された画像から、右側分岐内で認識された油滴の個数と左側分岐内で認識された油滴の個数を記録し、両者の合計に対する右側分岐内の油滴の個数の割合を算出した。

Fig. 10 に、右側分岐への誘導率と界面活性剤濃度の関係を、バルク平均速度 u ごとに示す。バルク平均速度 u によらず、界面活性剤濃度が大きい程、誘導率が大きい傾向が確認できる。各グラフの傾き（濃度の増加に対する誘導率の増加）は、濃度が臨界ミセル濃度を超えると小さくなるよ

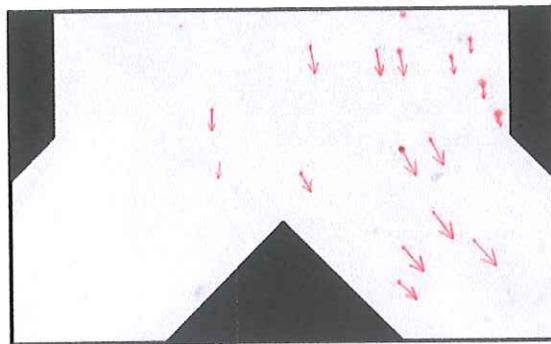


Fig. 9 Oil droplets flow in bifurcating region. Arrows show velocity vectors. $u = 5\text{mm/s}$, $C/C_{CMC} = 1.00$

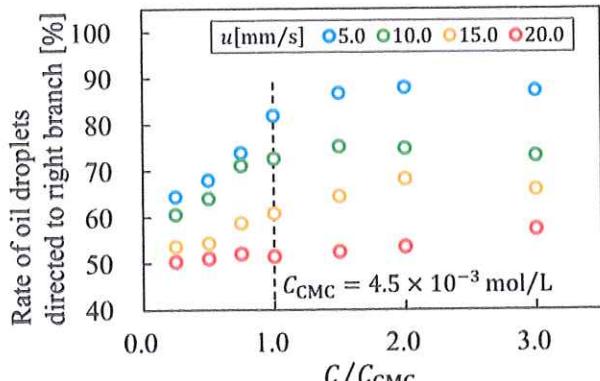


Fig. 10 Rate of number of oil droplets directed to right-hand side branch

うに見える。この濃度に対する誘導率の傾向は、Fig. 8 に示す濃度に対する \overline{v}_{OD} の傾向に近い。

右側分岐への誘導率は、界面活性剤濃度によらず、バルク平均速度 u が増加すると減少する。これは速度の増加と共に、各油滴が正負両電極間の電界が作用する領域を通過する時間が短くなるからと考えられる。ただしこの場合も、界面活性剤濃度が大きい程、誘導率が大きい傾向は保たれている。バルク平均速度 $u = 5\text{mm/s}$ の場合、界面活性剤濃度が低い場合でも誘導率は 60% を超えている。誘導率は濃度と共に増加し、臨界ミセル濃度以上 ($C/C_{CMC} \geq 1.00$) では 80% 以上の油滴が右側に誘導された。 $u = 20\text{mm/s}$ の場合においても、いずれの界面活性剤濃度の場合も右側分岐への誘導率は 50% を超えている。以上より、外部から与える電界により油滴の多くを分岐流路の片方に誘導できる事が示された。

著者らは前報¹⁾にて、静水中に分散する油滴群に電界を作用させた場合、油滴群の移動速度が電界強度と共に増加する事や、添加する界面活性剤のイオン性の変更により移動方向を変更可能である事を示した。従って本実験においても、電界強度の増加による誘導割合の増加や、界面活性剤のイオン性の変更による誘導方向の変更も可能と考えられる。さらに前報¹⁾にて移動速度が油滴直径に依存しない事も示されているため、本実験においても、油滴の誘導割合に対する油滴直径の影響は少ないと考えられる。

以上より、界面活性剤により電荷を付与された油滴群を、外部から与える電界により片側の分岐に誘導する事が出来た。誘導率や誘導方向は、界面活性剤の濃度やイオン性によって変更することも可能である。そのため、本技術により油滴群の挙動をより複雑に制御する事が可能になると考えられる。

5. 結 論

2 方向に分岐する分岐流路内を流れる O/W エマルションに対し、外部から電界を作用させることで、分散相の油滴群を片側の分岐に誘導した。

O/W エマルションは、SPG 膜を使用して水と食用サフラン油から作成した。この際、カチオン界面活性剤を添加する事で、油滴に正電荷を与えた。この正に帶電した油滴群を含む O/W エマルションを分岐流路内に流した。流路内の分岐直前の左側面に正電極、右側面に負電極を設置し、流れに対して垂直方向の電界を生成した。電界中を流れる油滴群の進行方向は、作用するクーロン力により負電極がある右方向に変化した。その結果、直後の分岐にて油滴群の多くは右側分岐に流れた。以上より、連続相の水とは独立して、油滴群を右側分岐に誘導する事が出来た。

界面活性剤の濃度が臨界ミセル濃度以下の場合は、濃度の増加と共に右側分岐に誘導される油滴の割合は増加した。しかし、その傾向は濃度が臨界ミセル濃度以上になると顕著には見られなくなった。これは、濃度が臨界ミセル濃度に達した時点で油滴全体が界面活性剤に覆われるため、濃度がそれ以上に増加しても油滴の電荷が増加せず、油滴に作用するクーロン力も増加しないからと推察される。

謝 辞

本研究の実験遂行に当たり、エス・ピー・ジー・テクノ株式会社の協力を得た。本研究の一部は、JSPS 科学研究費(課題番号 21K03865)の助成により行われた。ここに記して謝意を表する。

参 考 文 献

- Tomoyasu, K., Ebihara, A. and Yoshioka, S.: Velocity measurement of moving oil droplets driven by electric field in O/W emulsion (in Japanese), *J. JSEM*, **22-2** (2022), 134-141.
- Ahn, K., Kerbage, C., Hunt, T. P., Westervelt, R. M., Link, D. R. and Weitz, D. A.: Dielectrophoretic manipulation of drops for high-speed microfluidic sorting devices, *Applied Physics Letters*, **88** (2006), 024104.
- Link, D. R., Grasland-Mongrain, E., Duri, A., Sarrazin, F., Cheng, Z., Cristobal, G., Marquez, M. and Weitz, D. A.: Electric control of droplets in microfluidic devices, *Angewandte Chemie International Edition*, **45** (2006), 2556–2560.
- Guo, F., Ji, X. H., Liu, K., He, R. X., Zhao, L. B., Guo, Z. X., Liu, W., Guo, S. S. and Zhao, X. Z.: Droplet electric separator microfluidic device for cell sorting, *Applied Physics Letters*, **96** (2010), 193701.
- Ahn, B., Lee, K., Panchapakesan, R. and Oh, K. W.: On-demand electrostatic droplet charging and sorting, *Biomicrofluidics*, **5** (2011), 024113.
- Niu, X., Zhang, M., Peng, S., Wen, W. and Sheng, P.: Real-time detection, control, and sorting of microfluidic droplets, *Biomicrofluidics*, **1** (2007), 044101.
- Wehking, J. D., Chew, L. and Kumar, R.: Droplet deformation and

- manipulation in an electrified microfluidic channel, *Applied Physics Letters*, **103** (2013), 054101.
- 8) Hao, G., Li, L., Wu, L. and Yao, F.: Electric-field-controlled Droplet Sorting in a Bifurcating Channel, *Microgravity Science and Technology*, **34** (2022), 25.
- 9) Rosen, M. J.: *Surfactants and interfacial phenomena (3rd ed.)*, John Wiley & Sons, Inc. (2004).
- 10) Flowtech Research Inc.: Ftr-PIV operation guide.
- 11) Wuzhang, J., Song, Y., Sun, R., Pan, X. and Li, D.: Electrophoretic mobility of oil droplets in electrolyte and surfactant solutions, *Electrophoresis*, **36** (2015), 2489-2497.