

論文 / 著書情報  
Article / Book Information

題目(和文)	マイクロ流路を用いた二相液滴の生成とポリマー粒子生成への応用
Title(English)	Microfluidic formation of biphasic droplets and their application in fabrication of polymer particles
著者(和文)	XUSiyuan
Author(English)	Siyuan Xu
出典(和文)	学位:博士(工学), 学位授与機関:東京工業大学, 報告番号:甲第11921号, 授与年月日:2021年3月26日, 学位の種別:課程博士, 審査員:西迫 貴志,初澤 毅,進士 忠彦,柳田 保子,石田 忠
Citation(English)	Degree:Doctor (Engineering), Conferring organization: Tokyo Institute of Technology, Report number:甲第11921号, Conferred date:2021/3/26, Degree Type:Course doctor, Examiner:,,,,,
学位種別(和文)	博士論文
Category(English)	Doctoral Thesis
種別(和文)	論文要旨
Type(English)	Summary

## 論文要旨

THESIS SUMMARY

系・コース： Department of Graduate major in	機械 機械	系 コース	申請学位 (専攻分野)： 博士 (工学) Academic Degree Requested Doctor of
学生氏名： Student's Name	XU Siyuan		指導教員 (主)： 西迫 貴志 Academic Supervisor(main)
			指導教員 (副)： Academic Supervisor(sub)

### 要旨 (和文 2000 字程度)

Thesis Summary (approx.2000 Japanese Characters )

本論文は、「Microfluidic formation of biphasic droplets and their application in fabrication of polymer particles」と題し、全7章から構成されている。

第1章「Introduction」では、ダブルエマルジョンや2つの異なる表面を有する Janus 液滴等、複数の液相から構成される液滴の、単相液滴には無い機能や有用性について述べた後、それらの液滴の従来製法および関連する近年のマイクロ流路技術について概観している。その上で本論文では、マイクロ流路による互いに親和性の低い2液相からなる液滴 (二相液滴) の生成、界面エネルギーによる二相液滴の形態制御、およびそれらのポリマー微粒子調製への応用に係る各種の革新的要素技術の提案およびその有効性の実証を目的としている。

第2章「Janus-to-core-shell transition of microfluidic biphasic droplets」では、マイクロ流路にて生成した二相液滴の経時変形とカプセル粒子調製への応用について検討している。まず、ガラス製マイクロ流路内にアクリレートモノマー (HDDA) とシリコンオイル (SO) の二相並行流を形成後、両脇からポリビニルアルコール (PVA) 水溶液を合流させ、その流量制御により平均直径 105–325  $\mu\text{m}$ 、径の CV 値 (標準偏差÷平均) が 1.0–4.5% の二相液滴を生成している。次に、生成直後は Janus 型である二相液滴が、界面エネルギーにより自発的に SO を内、HDDA を外とするコアシェル型に遷移する様子を顕微鏡観察により明らかにしている。また、二相の流量比により、液滴のコアシェル比を幅広く容易に調整できることを実証している。さらに、光および熱重合法によるポリマーカプセルの調製と膜厚制御について検討し、最小膜厚 800 nm の超薄膜カプセルを得ている。

第3章「Microfluidic formation of surfactant-laden Janus droplets」では、界面活性剤を含む新たな Janus 液滴の生成とレンズ状粒子調製への応用について検討している。まず、第2章の実験系において SO に界面活性剤を添加することにより、従来に比べて著しく分散安定性が向上した Janus 液滴が得られることを見出している。次に、流量比に加え、界面活性剤濃度の調整により、Janus 液滴内部の界面形状を制御できることを実証している。さらに、重合処理により、両凸および凹凸レンズ形状の単分散ポリマー粒子が得られることを確認している。

第4章「Microfluidic formation of ternary emulsion droplets」では、第3章にて開発したレンズ状粒子調製法の収率向上を目的とし、2つの HDDA 領域と1つの SO 領域からなる三相液滴の生成法を提案している。まず、界面活性剤を含む SO の両脇から HDDA を合流させてマイクロ三相並行流を形成した後、PVA 水溶液を合流させ、平均直径 138  $\mu\text{m}$ 、CV 値 2.5% の三相液滴を生成している。また、生成液滴が2つの両凸状 HDDA 領域を有し、HDDA 領域同士および三相液滴同士は容易に合一せず安定であることを確認している。さらに、流量比による2つの HDDA 領域のサイズと形状の制御が可能となること、および重合処理による単一液滴からの2個の両凸レンズ粒子の取得が可能となり、レンズ状粒子調製法の収率が向上することを実証している。

第5章「W/O/W double emulsions produced in PDMS microfluidic devices」では、単核の Water-in-Oil-in-Water (W/O/W) 型液滴の生成とその薄膜化を目的とした、平面状マイクロ流路デバイスを提案している。まず、layer-by-layer 法により親水性および疎水性を局所的に制御した、2つの十字流路を連結した polydimethylsiloxane (PDMS) 製デバイスを作製している。次に、内水相と油相の流量比制御による薄膜化を試み、最小膜厚 3.5  $\mu\text{m}$  の単核 W/O/W 型液滴を平均直径 130  $\mu\text{m}$ 、CV 値 0.8% にて得ている。さらに、内水相流の Weber 数が1以上であることが、単核 W/O/W 型液滴生成のための必要条件であることを確認している。

第6章「Parallelized microfluidic channels for generating biphasic droplets」では、二相液滴生成を生産技術へと応用する場合に課題となる生産量スケールアップを目的とした、新たな並列化デバイスの開発について述べている。提案されているデバイスは、4つのスリット型流路を備えるステンレス部品と、マイクロ流路が並列化された PDMS チップの貼り合わせにより構成される。最大 128 流路を並列化した装置を用い、径の CV 値が約 5% のコアシェル型および Janus 型の二相液滴を得られることを確認している。

第7章「Conclusion and outlook」では、本論文で得られた研究成果を総括し、今後の展望を述べている。

以上を要するに、本論文は、マイクロ流路を用いた液滴・粒子作製技術の機能・適用範囲を大幅に拡張する、新たな二相液滴生成技術、分散安定化、薄膜化技術や生産量スケールアップデバイスについて提案・実証したものであり、工学上ならびに工業上貢献するところが大きい。よって本論文は、博士 (工学) の学位論文として十分な価値があるものと認められる。

備考：論文要旨は、和文 2000 字と英文 300 語を1部ずつ提出するか、もしくは英文 800 語を1部提出してください。

Note：Thesis Summary should be submitted in either a copy of 2000 Japanese Characters and 300 Words (English) or 1 copy of 800 Words (English).

注意：論文要旨は、東工大リサーチリポジトリ (T2R2) にてインターネット公表されますので、公表可能な範囲の内容で作成してください。

Attention: Thesis Summary will be published on Tokyo Tech Research Repository Website (T2R2).

(博士課程)  
Doctoral Program

## 論文要旨

THESIS SUMMARY

系・コース： Department of, Graduate major in	機械 機械	系 コース	申請学位 (専攻分野) : Academic Degree Requested	博士 Doctor of	( 工学 )
学生氏名 : Student's Name	XU Siyuan		指導教員 (主) : Academic Supervisor(main)	西迫 貴志	
			指導教員 (副) : Academic Supervisor(sub)		

要旨 (英文 300 語程度)

Thesis Summary (approx.300 English Words )

In Chapter 1, the conventional emulsification methods and recent droplet microfluidics for making biphasic droplets (i.e., double emulsions and Janus droplets) are introduced. Then, the objective to expand a new microfluidic approach for biphasic droplet formation based on the minimization of interfacial energies and their applications is described.

In Chapter 2, the Janus-to-core-shell transition of microfluidic biphasic droplets for fabricating microcapsules is studied. Janus droplets comprised of an acrylate monomer (HDDA) and silicone oil (SO) are produced in a co-flowing aqueous polyvinyl alcohol (PVA) solution, subsequently evolved to the core-shell state by minimization of interfacial energy. Then, they are solidified into microcapsules with an ultra-thin shell (thickness, 800 nm) via photo- and thermally induced polymerization.

In Chapter 3, the formation of surfactant-laden Janus droplets is studied. The presence of a surfactant in the SO phase produces Janus droplets with considerably higher stability against coalescence than the surfactant-free Janus droplets in the aqueous sodium dodecyl sulfate (SDS) solution. By varying the surfactant concentration in the SO phase, the morphology of surfactant-laden Janus droplets can be tuned for fabricating concave-convex and biconvex lens-shaped particles via off-chip photopolymerization.

In Chapter 4, the formation of surfactant-laden ternary droplets is studied. Ternary droplets comprised of two biconvex HDDA segments separated by a biconcave SO segment containing a surfactant are produced for scalable fabrication of two biconvex particles from one droplet.

In Chapter 5, a planar polydimethylsiloxane (PDMS) microfluidic device is described for one-step formation of single-core Water-in-Oil-in-Water (W/O/W) double emulsions with a thin shell.

In Chapter 6, a novel parallelization device is described for the scaled-up production of biphasic droplets in industry. The device consists of a PDMS planar chip having an array of parallel microgrooves and a stainless-steel module having vertical slits. By using a device having 128 parallel channels, monodisperse core-shell and Janus droplets are produced.

In Chapter 7, the conclusion and future work are described.

備考 : 論文要旨は、和文 2000 字と英文 300 語を 1 部ずつ提出するか、もしくは英文 800 語を 1 部提出してください。

Note : Thesis Summary should be submitted in either a copy of 2000 Japanese Characters and 300 Words (English) or 1copy of 800 Words (English).

注意 : 論文要旨は、東工大リサーチリポジトリ(T2R2)にてインターネット公表されますので、公表可能な範囲の内容で作成してください。

Attention: Thesis Summary will be published on Tokyo Tech Research Repository Website (T2R2).