

科学研究費助成事業 研究成果報告書

平成 29 年 5 月 15 日現在

機関番号：22604

研究種目：若手研究(A)

研究期間：2014～2016

課題番号：26707023

研究課題名(和文) 温度勾配下におけるソフトマターのパターン形成

研究課題名(英文) Pattern formation of soft matters under temperature gradient

研究代表者

栗田 玲 (Kurita, Rei)

首都大学東京・理工学研究科・准教授

研究者番号：20579908

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 19,300,000円

研究成果の概要(和文)：自然界においても多くのパターンが観察されているが、そのほとんどは温度や濃度が不均一な条件下で形成されている。しかし、これまでの研究は空間的に均一な系でほとんど行われており、その中で発見されたパターン形成は特殊な場合であり、ごく一部であると考えられる。今回、温度勾配下におけるソフトマターのパターン形成ダイナミクスの実験的に調べ、不均一系におけるパターン形成のメカニズム解明や均一系では現れない新規のパターンを発見することを目的として研究を行った。その結果、ゼラチンの対流において異常対流が見られた、温度勾配下における膜の特異的挙動を見つけることに成功した。

研究成果の概要(英文)：Pattern formations are ubiquitously observed in Nature and industrial processes. The patterns are closely related with macroscopic physical properties, thus it is important to understand the mechanism and the nature of the pattern formation. The pattern formations have been investigated for some decades, but almost researches have been performed in homogeneous and ideal conditions, however many patterns are formed in inhomogeneous Nature. Here we investigate the pattern formation under temperature gradient. The temperature gradient induces some additional but crucial effects such as Soret effects, Marangoni effects and so on. The pattern formations in soft matters are sensitive to those effects. We found that convection dynamics becomes abnormal in the gelatin solution. In addition, we found that the undulation of the membrane becomes larger at the lower temperature region in the temperature gradient.

研究分野：ソフトマターの物理

キーワード：Temperature gradient soft matter nonequilibrium

1. 研究開始当初の背景

ソフトマターは階層構造という特徴があり、例えば、界面活性剤・水系では、図1のように界面活性剤分子が二分子膜を形成し、その二分子膜がラメラ相やスポンジ相を形成、さらにラメラ相とスポンジ相によってフォーム構造(図2)を形成する。この階層構造の低次構造は数nmなのに対し、高次構造では数 μm と大きさが異なる。このような階層構造は動的結合しているため、ソフトマターの相転移は通常の相転移とは異なり、フォーム構造のようなメソスコピックなパターンを形成する。一般に、このパターン形成と物質の機能性と深く関わっており、例えば、発泡スチロールはガス・高分子の相分離によって形成される。また、骨の内部構造は高分子溶液の相分離過程におけるネットワークパターンと酷似しており、軽量かつ丈夫という機能発現に深く結びついている。このようなパターンは、メソスコピックと大きいために温度や濃度・外場に非常に敏感であり、相図は複雑なことが多い。これまではこの相図に注目し、その形成メカニズムの解明を中心とした研究が主流として行われてきた。

自然界においても多くのパターンが観察されているが、そのほとんどは温度や濃度が不均一な条件下で形成されている。しかし、これまでの研究は空間的に均一な系でほとんど行われており、その中で発見されたパターン形成は特殊な場合であり、ごく一部であると考えられる。2成分流体系において、空間不均一系では均一系とは異なる効果が見つかっている。温度勾配がある場合、化学ポテンシャルが温度依存するために濃度勾配が形成される(ソレー効果)。また、界面張力が不均一になり、流れが生じる(マランゴニ効果)。すなわち、温度勾配があることにより、濃度・自発的流動場・界面張力が不均一になる。一方、ソフトマターのパターン形成において、温度・濃度・自発的流動場・界面張力はパターン形成を決定する重要な物理量である。そのため、不均一場におけるソフトマターのパターン形成ダイナミクスは、不均一場の効果と結合し、均一系とは大きく異なると予想される。このような不均一場におけるソフトマターのパターン形成ダイナミクスはほとんど調べられていなかった。

2. 研究の目的

温度勾配下におけるソフトマターのパターン形成ダイナミクスの実験的に調べ、不均一系におけるパターン形成のメカニズム解明や均一系では現れない新規のパターンを発見することを目的とした。さらに大きな温度勾配を与えると、熱伝導が追いつかないため、対流が起こる。ソフトマターの

パターン形成は流動場による影響が大きいことが均一系の実験により知られており、対流下におけるソフトマターのパターン形成は興味深い。これらの実験からパターン形成メカニズムを解明することは、ソフトマター分野だけではなく、非平衡統計力学の原理的な問題とつながり、また、材料開発・創薬・医学といった様々な産業分野への大きな貢献につながると考えている。

3. 研究の方法

(1) ゼラチンの熱対流現象

ゼラチンはある温度以下になると、流動性を失ったゲル状態になる。この境目の温度をゾルゲル転移温度と呼ぶ。この温度近傍では粘性が大きく変化する。このような物質のゾルゲル転移近傍における熱対流ダイナミクスを調べた。図1のように、サンプルは擬2次元のヘレショウセルを用いて、下からヒーターで温めた。速度場・温度場は温感液晶カプセルを用いて、同時に可視化した。

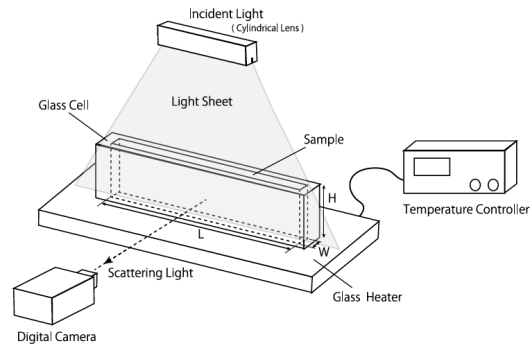
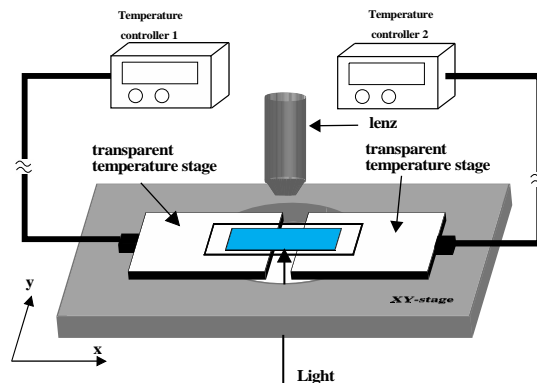


図1 熱対流実験の実験装置図

(2) 温度勾配下における膜のダイナミクス

界面活性剤を水に分散させたのち、ある温度で保つと、界面活性剤が自己会合し、二分子膜を形成する。温度勾配下における膜の挙動を調べた。今回、C10E3という界面活性剤を図2 膜に温度勾配を与える実験装置図



用いて、二分子膜を形成した。カバーガラスに挟んで徐冷することによって、ガラスに膜が平行に配列したホメオトロピックな状態を形成した。透明ガラスヒーターを2枚用い

て、膜に平行な方向に温度勾配を与え、位相差顕微鏡や蛍光顕微鏡を用いて、膜の時間変化の観察を行った(図2)。

4. 研究成果

(1) ゼラチンの熱対流現象

ゼラチンは物理ゲルを形成する物質であり、ゾルゲル転移温度以上では流動性をもつゾル、その温度以下では流動性を失ったゲル状態になる。すなわち、ゾルゲル転移温度近傍で粘性が急激に変化する。このような流体におけるゾルゲル転移温度近傍における熱挙動は興味深い。そこで、擬2次元のヘレシヨウセルにゼラチン溶液を入れ、下の面をヒーターで温め、上は空冷した。ゾルゲル転移近傍がサンプル内に入るように温度調整したところ、通常のロール対流の上昇流のところに流れのない(Stagnant domain; SD)領域が形成され、これが沈降することによって、マクロな流れ場が大きく変化するという現象が見つかった(図3)。これは、これまで報告されていなかった現象である。さらに、温度場を調べたところ、局所的な冷却が原因ではないことがわかった。対流という古くから研究が行われ、ほぼ理解されていると思われていた領域において、説明のつかない現象が見つかったため、より実験を重ねて理解する必要がある。

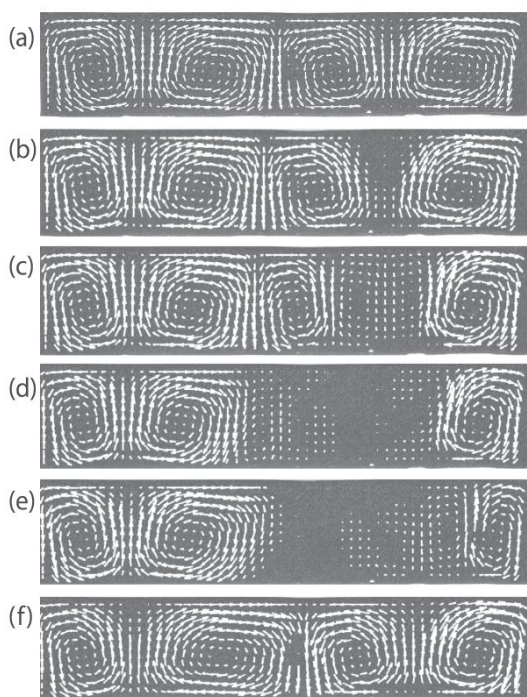


図3 ゼラチン溶液の対流におけるSD形成とマクロな流れ場の変化

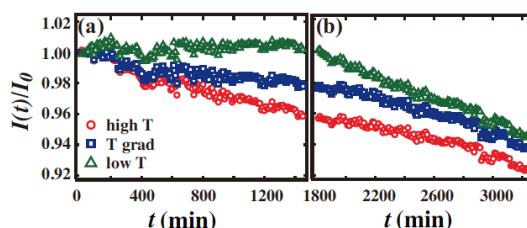
ゼラチンは高分子であるため、粘弾性を持ち、複雑液体となっている。SD形成の起源が粘弾性であるかを調べるため、他の物質でも実験を行った。ゼラチンと同様に粘性の温度依存性が大きい、粘弾性を持たない物質として、ゴールドシロップを用いて実験を行

った。ゴールドシロップにおいても全く同様な結果が得られ、SD形成の起源は粘弾性ではないことが示された。しかしながら、SD形成の起源はまだ未解明であり、今後の課題として、SDが形成される実験条件を系統的な実験を行うことで見つける必要があると考えている。

(2) 温度勾配下における膜のダイナミクス

界面活性剤+水系は界面活性剤が2分子膜を形成し、さらにその二分子膜が一軸方向に配列したラメラ相や3次元的なネットワーク状のスポンジ相を形成する。今回、カバーガラス2枚ではさみ、カバーガラスと平行に配列したホメオトロピックなラメラ相に対して、温度勾配を与え、その挙動について観察した。これまで流体混合系では、高温から低温にエネルギーが流れるとき、片方の成分も流れることによって、濃度が不均一化する。これをSoret効果と呼ぶ。今回、二分子膜のようにつなごうとした、すなわち空間拘束がある系における温度勾配の影響は調べられたことがなく、そのダイナミクスは興味深い。まず、膜に付着する蛍光色素をいれ、温度勾配と濃度勾配の関係を調べた(図4)。

図4 (a)温度勾配下における蛍光強度の時



間変化, (b)温度を一定にした後の蛍光強度の時間変化

温度勾配が印加されている時、低温側の蛍光強度が大きくなる様子が観察された。これは二分子膜が増えていることを意味している。また、1500分後に温度勾配をなくし、一定温度に変化させた。この時、低温側の強度が大きく減少していることから、二分子膜が増えていたことが確認された。

膜はつながっているため、簡単に濃度を大きくすることはできない。温度勾配によって、低温側の膜の揺らぎが大きくなったと考えられる。これを確認するために、くさび状のサンプルセルにいれ、線欠陥の移動に着目した。線欠陥の位置は膜の揺らぎと関係があり、線欠陥の位置変化を見ることによって、膜の揺らぎの情報を得られると考えた。図5は温度勾配下における線欠陥の移動を示したものである。図4(a)~(c)は温度勾配を与えてから、0分、300分、600分の時の画像である。黄色の線が同じ線欠陥を示している。時間とともに移動していることがわかる。図5(d)は(a)の矢印の位置の時間変化を示している。高温側と低温側で反対方向に移動していることがわかる。一方、温度勾配を与え

ずに 25 度から 32 度に変化させた時の位置の変化が(d)の三角である。ほとんど変化していないことがわかる。このことから、この線欠陥の移動は温度勾配によって誘起されたことがわかる。

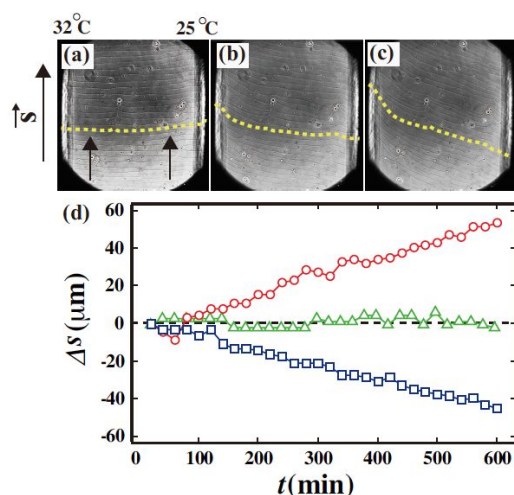


図5 温度勾配下における線欠陥の移動
(a) 0 min, (b) 300 min, (c) 600 min. (d) 線欠陥の移動距離 (丸: (a)の左矢印の位置, 四角: (a)の右矢印の位置. 三角: 温度勾配がなく, 一定の温度変化の時)

以上のことから、温度勾配によって、膜の高温部が引き伸ばされ、低温部にしわ寄せがきたと考えられる。つながった系では多体効果によって、単なる濃度変調ではなく、階層性の高い構造にまで影響することを初めて示したと言える。

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕(計 8 件)

Kazuya U. Kobayashi, Noriko Oikawa, Rei Kurita, Thermal convection in a thermosensitive viscous fluid with inhomogeneous cooling, *Journal of Physical Society of Japan*, **86**, 043402 (2017)

Yujiro Furuta, Noriko Oikawa and Rei Kurita, Close relationship between a dry-wet transition and a bubble rearrangement in two-dimensional foam, *Scientific Reports* **6**, 37506 (2016)

Kazuya U. Kobayashi, Noriko Oikawa, Rei Kurita, Common dynamical features for thermal convection in Golden Syrup and a gelatin solution, *Journal of Physical Society of Japan* **85**, 104402 (2016)

Noriko Oikawa, Daiki Tahara and Rei

Kurita, One-way diffusion of ionic liquids in a mixing process with water *Journal of Physical Society of Japan* **85**, 093001 (2016)

Noriko Oikawa and Rei Kurita, A new mechanism for dendritic pattern formation in dense systems, *Scientific Reports* **6**, 28960 (2016)

Daiki Tahara, Noriko Oikawa and Rei Kurita, Mobility enhancement of red blood cells with biopolymers, *Journal of Physical Society of Japan* **85**, 033801 (2016)

Kazuya Kobayashi, Noriko Oikawa and Rei Kurita, Dynamical transition of heat transport in a physical gel near the sol-gel transition *Scientific Reports* **5**, 18667 (2015)

Rei Kurita, Experimental study of relationship between local size distributions and local orderings in random close packing, *Physical Review E*, **92**, 062305 (2015)

〔学会発表〕(計 14 件)

国際会議 8 件

国内会議 6 件

6. 研究組織

(1) 研究代表者

栗田 玲 (KURITA, Rei)

首都大学東京・大学院理工学研究科・准教授

研究者番号: 20579908