

令和 4 年 6 月 7 日現在

機関番号：17102

研究種目：基盤研究(C) (一般)

研究期間：2019～2021

課題番号：19K06171

研究課題名(和文)自然がつくるネットワークの強さの秘密とその応用

研究課題名(英文)Mechanism of the strength of naturally occurring networks and its application

研究代表者

巽 大輔 (Tatsumi, Daisuke)

九州大学・農学研究院・准教授

研究者番号：60293908

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 3,300,000円

研究成果の概要(和文)：自然界に見られるパターンとそれが示す特性について系統的に検討する目的で、ヴィスカスフィンガリングによって形成される樹枝状ゲル ひび割れを鋳型として作製したゲル等について、ネットワーク構造と粘弾性の関係について検討を行った。は、枝分かれが顕著になるほど、ネットワーク構造に特有の粘弾性挙動へ移行することが示唆された。ネットワーク弾性率とネットワークの濃度との間にはべき乗則が成り立ち、そのべき数はおよそ3であった。一方、についてもべき乗則が成り立つことが示され、べき数はおよそ5であった。以上より、本研究で得られた樹枝状ネットワークについて、パターンと粘弾性には相関があることが示された。

研究成果の学術的意義や社会的意義

自然が見せるネットワークには必然的な美しさと強さがあり、そこに潜む機序を探ることで構成要素が少なくても強度が高いネットワークを構築できる可能性がある。本研究の結果から、樹枝状ネットワークについて、パターン構造と粘弾性にはべき乗型の相関があることが明らかにされた。この成果をもとに、構成要素が最小の分率でかつ最大強度を得られるようなネットワークパターンをデザインすることが可能となる。軽量かつ高強度の複合材料を最小のエレメントを用いて作成することは工業的にも重要であり、本研究は学術的なネットワーク科学(基礎)と社会的に重要な複合材料(応用)の橋渡しの意義を持っていると言える。

研究成果の概要(英文)：It is found various patterns of shapes in nature, such as branching, networks, and so on. They have unique properties to carry some functions. It is important to understand the relationships between the structures and the properties of them. We thus investigated the relationships between the structures and properties of the patterns. The patterns investigated were: (1) tree-like gels formed by viscous fingering and (2) gels fabricated using cracks as templates. The results for (1) showed that the viscoelastic behavior of the viscous fingering networks was shifted to that of typical gels as the branching became more pronounced. A power law was established between the network modulus and the network concentration, and the power was around 3. On the other hand, another power law was also found for (2): the gels fabricated using cracks have a power of 5. These results indicate that there is a correlation between the pattern and properties for the networks in nature.

研究分野：高分子材料学

キーワード：ネットワーク ゲル パターン 粘弾性 ヴィスカスフィンガリング ひび割れ セルロース 非線形現象

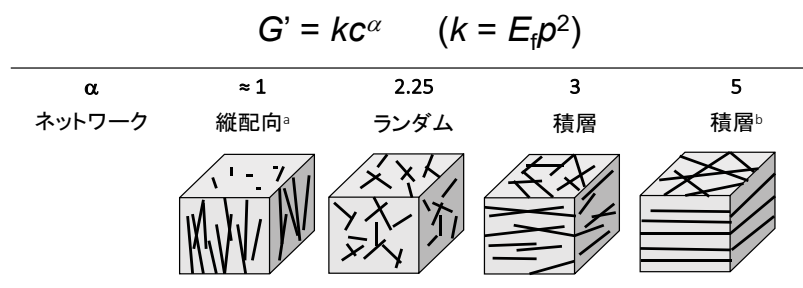
1. 研究開始当初の背景

ネットワーク構造と一口に言っても、その構成要素のつながり方には多種多様なパターンがある。そのような種々のパターンと粘弾性の相関を系統的に研究した例はまだない。これを明らかにし、パターンと粘弾性の相関を包括するような関係が見いだせれば、ネットワークを構成要素とする材料創製への大いなる貢献が期待できる。

これまでに申請者らは、セルロース繊維分散系がもつ繊維ネットワーク構造と系の粘弾性の相関について研究を行ってきた。その結果、系の貯蔵弾性率  $G'$  は系の濃度  $c$  のべき乗に比例し、 $G' = kc^\alpha$  であらわされるようなべき乗関係を示すことがわかった。さらに、べき乗関係のフロントファクター  $k$  は繊維の弾性率  $E_f$  と繊維の軸比  $p$  の 2 乗の積であること、また べき数  $\alpha$  は繊維個々の特性には依存せず、繊維ネットワークの構造を表すことが明らかとなった。これを下記の表 1 にまとめる。

ここで、次の「問い」は、「このようなべき乗関係は、ネットワーク一般にあてはまるのか？」ということである。この「問い」は材料創製においては非常に重要であり、たとえば構造予測を物性測定結果から行う、あるいは逆に物性予測を構造情報から推定する、といったことを可能にするものである。そこで、この“ネットワーク一般”を自然界の中に見出すことにした。

表 1：繊維ネットワークの粘弾性測定によって得られる べき乗則とネットワーク構造の関係



a: 応力の伝達方向に配向、b: 繊維長 ≫ 繊維幅  
 巽 大輔、*成形加工* **28**(7), 283-287 (2016).

2. 研究の目的

上述のように、本研究では自然界に見られるネットワークを利用して、そのパターンと粘弾性の相関を明らかにすることを目的とした。ここで、なぜ自然界に見られるネットワークか？ということになる。自然界には多種多様のネットワーク構造があり、それらは必然的に自然現象によって生み出されている。たとえば、有名なベナール対流やカルマン渦など（見方によればネットワークとみることできる）は、非平衡かつ非線形現象により生じる構造パターンである。それらには、構造的な美しさもさることながら「エネルギー散逸の過程で必然的にそうなった」という意味あいも含んでいる。すなわち、自然が選んだパターンにはそうなるべくしてなった理由（最小作用の原理などを含む）があり、ここに材料創製に生かせるヒントがあるとみる。

本研究では、ヴィスカスフィンガリングおよびクラッキング等\*の非線形現象を利用したパターンを作成し、そのパターンの特徴とそれが示す物性の相関について検討することを目的とした。非線形現象で得られるネットワークは、前述のように自然が“自発的に（必然的に）”選んだパターンであり、人知が及ばない意味がそこには潜んでいる可能性がある。このような、自然現象からその機序を学び取るスタンスは、ネットワーク科学に進展をもたらすものと期待できる。さらに応用面では、たとえば、最小のネットワーク要素で最大の強度を発現できるようなネットワーク構造をもつ材料の創製に寄与できる可能性を秘めている。

\*ヴィスカスフィンガリングとは、高粘性流体の中に低粘性流体が貫入した時に、界面の不安定性のために樹枝状ネットワークができる現象のことである。一方、クラッキングは、田んぼが干上がる際に生じるようなひび割れのネットワークである。このようなネットワークパターンを利用することで、従来のランダムネットワーク構造とは大きく異なるパターンを形成させている。

3. 研究の方法

(1) ネットワークパターンの作成

ヴィスカスフィンガリングパターンの作成では、パターンを固定化できるよう、低温でゾル、高温でゲル化するメチルセルロース水溶液を試料とした。メチルセルロース水溶液をレオメー

ターの平行プレート間に充填し、上部のプレートを引き上げることで、プレート周縁から試料に空気を貫入させ、パターンを形成させた。その後、装置の温調機能を用いて昇温し、メチルセルロース水溶液をゲル化することでパターンを固定化した。

一方、クラッキングパターンに関しては、粘土をガラスシャーレ上で厚さ数 mm、直径 5 cm の円盤状に広げ、乾燥させることによって、異なるひび割れのパターンを形成させた。このひび割れを鋳型とし、セルロース/塩化リチウム・*N,N*-ジメチルアセトアミド (LiCl/DMAc) 溶液を注入し、その後、それを脱イオン水に浸して溶液をゲル化させることでパターンを固定化し、鋳型から取り出した。得られたネットワークパターンは図 1 に示すようにフラクタル (自己相似型) な構造をもっている。

#### (2) パターンの定量化

これらのネットワークパターンをカメラで撮影し、ボックスカウント法を用いてパターンのフラクタル次元を求めた。加えて、全体の面積に対するパターンの面積の割合(%)、ネットワークの平均太さなどを求めた。

#### (3) ネットワークの物性

上述のレオメーターを用いて、貯蔵弾性率  $G'$  および損失弾性率  $G''$  の角周波数依存性について測定を行い、パターンパラメータと物性値 (弾性率) の相関について検討した。

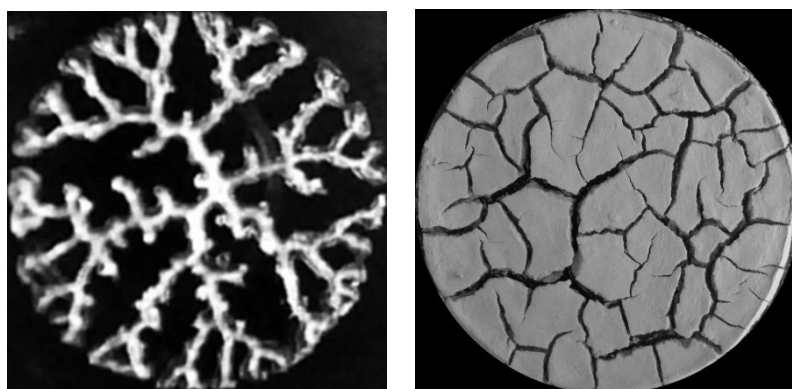


図 1: 本研究で作成した非線形現象によるパターン (直径はいずれも 5 cm)  
左: ヴィスカスフィンガリングによって生じた樹枝状ネットワークパターン  
右: クラッキングによって生じたネットワークパターン

### 4. 研究成果

ヴィスカスフィンガリングによる樹枝状ゲルの粘弾性挙動は、ゲルの枝分かれが顕著になるほど、ネットワーク構造に特有の粘弾性挙動へ移行することが示唆された。ネットワーク弾性率とネットワークの濃度との関係は、両対数プロットで直線関係を示した。すなわち、両者の間にはべき乗則が成り立ち、そのべき数はおよそ 3 であった (図 2 左)。一方、ひび割れネットワークについてもべき乗則が成り立つことが示されたが、べき数はおよそ 5 であった (図 2 右)。以上より、本研究で得られた樹枝状ネットワークについて、パターンと粘弾性には相関があることが示された。

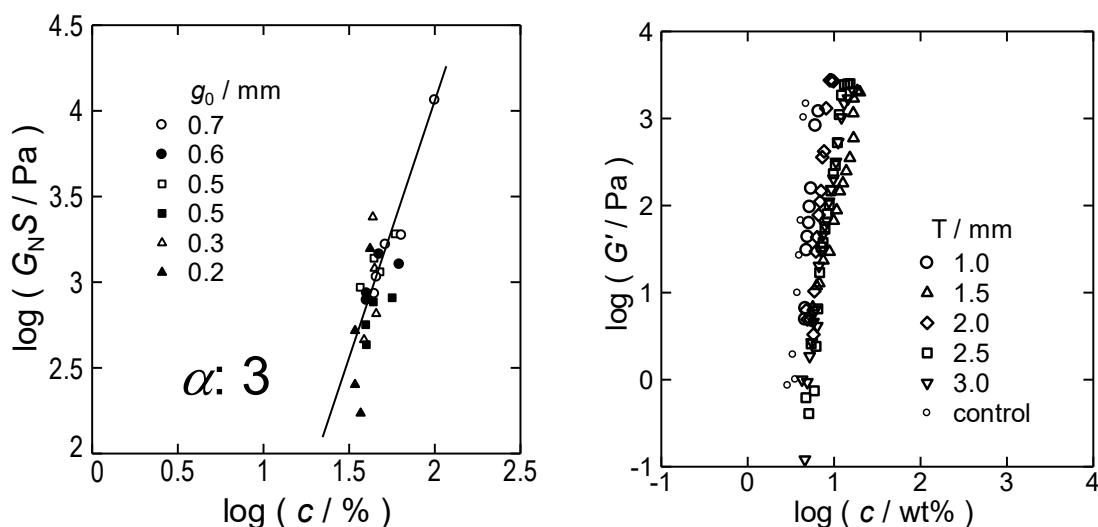


図 2: 本研究で作成したパターンの貯蔵弾性率と濃度の関係  
左: ヴィスカスフィンガリングによって生じた樹枝状ネットワークパターン  
右: クラッキングによって生じたネットワークパターン

次に、ネットワークを構成要素とする材料中の応力の伝達方向とネットワークパターンの広がり方向の相関を検討するため、ヴィスカスフィンガリングパターンを付与したメチルセルロースのフィルムの粘弾性を評価した。パターンの形を評価する指標としてフラクタル次元  $D$  を用いたところ、 $D$  が大きいほど弾性率  $E$  が上昇するという結果が得られた。 $D$  の値が最も大きなフィルムと最も小さなフィルムを比較したところ、 $D$  が大きいものはより枝分かれが顕著なパターンを持ったフィルムであった。このことより、フラクタル次元は枝分かれの度合いを評価できる指標であることが示唆された (図3左)。

さらに、パターンの広がり方向を評価する指標として配向度  $f(\theta)$  を用いた。 $f(\theta)$  が 0.2 よりも小さい領域では、 $f(\theta)$  が上昇するに伴い  $E$  も上昇した。それに対し、 $f(\theta)$  が 0.2 よりも大きい領域では  $f(\theta)$  が上昇するに連れ  $E$  は減少した。 $f(\theta)$  が約 0.2 となると  $E$  は極値をとる可能性が示された。 $f(\theta)$  が大きいフィルムと小さいフィルムを比較したところ、 $f(\theta)$  が大きなフィルムは試料の幅方向に対してパターンがより平行に配置しているのに対して、小さいものでは幅方向に対して垂直なパターンがより多く存在していた。このことより、配向度  $f(\theta)$  を用いてパターンの広がり方向を評価できていると考えられる。以上の結果から、ネットワークパターンの枝分かれと応力の伝達方向に対するパターンの広がり方向が系の弾性率に影響を与える要因であることが示された (図3右)。

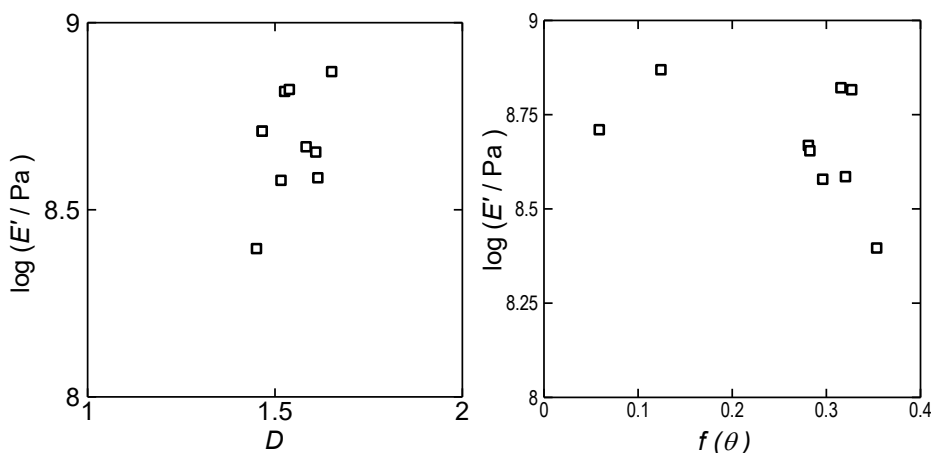


図3：ヴィスカスフィンガリングパターンを付与したメチルセルロースのフィルムの粘弾性  
左：貯蔵弾性率とフラクタル次元の関係、右：貯蔵弾性率と配向度との関係

最後に、効率良くエネルギーや物質を輸送する役割を担っているパターンを見出すため、双子葉植物の葉脈を用いた電気伝導性の検討を行った。葉脈に見られるような樹枝状ネットワークは分岐をもつ自己相似図形を形成しているという特徴があり、葉脈の場合は効率良く水を輸送する役割を担っている。このような樹枝状ネットワーク回路を材料に導入することが可能となれば、これまでに見られないような効率の良い機能 (今回の場合はとくに導電性) 発現につながる材料を設計することができる。そのため、上記のネットワーク構造と導電性との相関の理解は極めて重要な基礎的知見となる。そこで本研究では、葉脈を模倣した樹枝状自己相似図形を導電性材料で作製し、枝分かれの広がり方向による特性の違いを明らかにした。すなわち、葉脈から取り込んだ図形の特徴をフラクタル次元により評価し、その導電性は通電方向を変えて検討した。

双子葉植物の図形パターンを、3Dプリンタを用いてPLAフィラメントにより3次元構造体として作製した。導電性塗料としてドータイトを造形物表面に塗付し、室温乾燥させ、直流電源に接続した。得られた電流値から導電率  $\sigma$  を算出し、これを使用ドータイトあたりの重量で補正した。樹枝状自己相似図形の評価法としてネットワークのフラクタル次元  $D$  を算出した。

フラクタル次元  $D$  に対する補正導電率の変化を検討した結果、葉の柄から先端方向に電子を通電した場合と、その逆方向に通電した場合とでは、補正導電率と  $D$  の相関関係は異なった。このことから、葉脈を模倣した自己相似図形の導電性がフラクタル次元  $D$  に依存するとともに、方向依存性があることが示された。

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計1件（うち査読付論文 0件/うち国際共著 0件/うちオープンアクセス 0件）

1. 著者名 巽 大輔	4. 巻 29
2. 論文標題 時空間スケールの見方の味方 ~ 散乱とレオロジー ~	5. 発行年 2022年
3. 雑誌名 Cellulose Communications	6. 最初と最後の頁 2-8
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 -

〔学会発表〕 計7件（うち招待講演 3件/うち国際学会 0件）

1. 発表者名 巽 大輔
2. 発表標題 セルロースおよび関連多糖のレオロジー要論
3. 学会等名 セルロース学会 第24回マイクロシンポジウム（招待講演）
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 巽 大輔
2. 発表標題 時空間スケールの見方の味方 ~ 散乱とレオロジー ~
3. 学会等名 2020年度セルロース学会西部支部セミナー（招待講演）
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 坂上なるみ, 巽 大輔, 近藤哲男
2. 発表標題 メチルセルロースフィルム of 粘弾性におけるヴィスカスフィンガリングパターン化の影響
3. 学会等名 セルロース学会第26回年次大会
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 坂上なるみ, 巽 大輔, 近藤哲男
2. 発表標題 ネットワークの巨視的パターンングが粘弾性に及ぼす影響
3. 学会等名 第67回レオロジー討論会
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 坂上なるみ, 巽 大輔, 近藤哲男
2. 発表標題 巨視的ネットワークパターンを付与することによるセルロース材料の機能発現
3. 学会等名 第70回日本木材学会大会
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 巽 大輔, 坂上なるみ, 近藤哲男
2. 発表標題 巨視的ネットワークパターン付与によるセルロース材料の機能創発
3. 学会等名 セルロース学会第28回年次大会
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 巽 大輔
2. 発表標題 水中カウンターコリジョン法を用いたセルロース 結晶をもつナノセルロースの調製
3. 学会等名 第15回多糖の未来フォーラム (招待講演)
4. 発表年 2021年

〔図書〕 計2件

1. 著者名 鈴木 洋	4. 発行年 2021年
2. 出版社 エヌ・ティー・エス	5. 総ページ数 436
3. 書名 分散系のレオロジー	

1. 著者名 技術情報協会	4. 発行年 2021年
2. 出版社 技術情報協会	5. 総ページ数 589
3. 書名 動的粘弾性測定とそのデータ解釈事例	

〔産業財産権〕

〔その他〕

-

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

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