

## 科学研究費助成事業 研究成果報告書

令和 6 年 5 月 16 日現在

機関番号：32665

研究種目：基盤研究(C) (一般)

研究期間：2020～2023

課題番号：20K03886

研究課題名(和文)ペーストのメモリー効果における記憶保持能力の多様性

研究課題名(英文)Variety of the memory retention ability in the memory effect of paste

研究代表者

中原 明生 (NAKAHARA, Akio)

日本大学・理工学部・教授

研究者番号：60297778

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)：ペーストは塑性ゆえに揺れや流れなどの動きを記憶し、その記憶に従って割れやすい方向が決まるので、ペーストの記憶は乾燥亀裂パターンとして可視化される。本研究では、記憶の種類や強さを定量化するために異方的な亀裂パターンを情報エントロピーを用いて解析する方法を提案した。ペーストに紐状高分子の糖類を添加し、添加量に応じて主たる粒子間相互作用を引力にしたり斥力にすることで、ペーストのメモリー効果を促進したり抑制する方法を見出した。さらに、レオメーターを用いた実験を行い、揺れを記憶する構造は振動する微小剪断歪みを起因としており、流れを記憶する構造は一方向の大変形を伴う剪断歪みを起因としていることも分かった。

研究成果の学術的意義や社会的意義

破壊や地震は身近な現象でありながら、いつどこがどのように壊れるかが状況に応じて逐次変化していくので、防災上の正確な予測や対策が立てにくい。本研究では、塑性を持つペーストが揺れや流れなどの己の動きを記憶してその後の壊れやすい方向が決まるという現象を研究することで、サイエンスとしてはソフトマターのレオロジーの面白さの基礎研究だけでなく、破壊の制御や破壊の前駆現象の予知、さらには過去に起こった破壊現象の原因究明へと応用できるので、人類にとって重要なテーマである。今回、揺れの記憶と流れの記憶の転移条件が分かったことで、どの程度の変形でどの方向に物質が破れやすくなるかが予測できるようになり意義がある。

研究成果の概要(英文)：Paste remembers the direction of its vibration or flow due to its plasticity, then the memory determines the preferential direction for cracks to propagate, thus the memory of paste can be visualized as a morphology of desiccation crack pattern. In our research, we presented an image analysis method to characterize the type and the strength of the memory of paste by analyzing the anisotropic crack pattern using information entropy. Then, we perform experiment in which we add polysaccharide to a paste. By changing the amount of polysaccharide which add to a paste, we can control the situation whether the dominant interparticle interaction is attractive or repulsive, and thus succeeded in assisting or eliminating memory effect of paste. Finally, we performed experiments using a rheometer, and found that only oscillatory shear strain with a small amplitude is necessary for memory of vibration; large shear deformation is sufficient for memory of flow.

研究分野：ソフトマター

キーワード：記憶効果 レオロジー 破壊の制御 塑性流体 コロイド

## 様式 C - 19、F - 19 - 1 (共通)

### 1. 研究開始当初の背景

本研究テーマで扱う「ペーストのメモリー効果」は、「ソフトマターのレオロジーというサイエンスとしての面白さ」を探究するだけでなく、「身近に満ち溢れる様々な混合材料の破壊や材料物性の制御など幅広い工学的な応用」をも可能にする、非常に重要な現象である。

ここで「ペーストのメモリー効果」とは、粉と液体を混ぜた高濃度コロイドサスペンション(ペースト)は揺れや流れなどの己の動きを塑性変形の形で記憶し、その記憶に従ってペーストが割れやすい方向が決まるので、ペーストの記憶は乾燥破壊時に生じる亀裂パターンの形態として視覚化される現象のことを言う。この現象は研究代表者によって約20年前に発見され、揺れを記憶したペーストは揺れた方向に垂直に割れやすくなり、流れを記憶したペーストは流れた方向に平行に割れやすくなることが示された。さらにペーストのメモリー効果を応用すると、意図的にある体験をペーストに記憶させることで割れやすい方向を制御するなど未来の破壊の制御ができるようになり、別の応用法として、破壊後の亀裂パターンを観察することによってこのペーストが過去にどのような体験をしたのか推定できるようにもなった。

その後の研究により、サイエンスとしての進展では、ペーストに流れを記憶させるためにはコロイド粒子間の相互作用として引力が主である必要があることがわかり、また、ペーストに磁性粒子などを混ぜると磁場の方向を記憶し磁場の方向に沿って割れやすくなることも分かった。さらに工学的な応用の発展としては、ある動きを記憶したペーストに別の体験をさせて記憶を書き換えることで割れやすい方向を変更できることや、揺れや流れや磁場の方向を記憶したペーストに超音波を照射するとそれらの記憶を消去して特定の方向に破れやすくなっている性質を消すことができることも示された。

以上の結果は、ペーストの記憶効果には、揺れや流れや磁場の記憶などの様々な種類の記憶が存在するという多様性を示すとともに、記憶を形成する要因としてはコロイド粒子間引力に基づく異方的なネットワークの形成が塑性ゆえに残留して亀裂の伝播しやすい方向を定めるなど普遍性も持ち合わせている。そのため、それらの多様性と普遍性の解明が重要となってきた状況である。

### 2. 研究の目的

本研究では「ペーストのメモリー効果」のメカニズムの多様性と普遍性を解き明かすことを目的とした。ペーストが己の体験を記憶するためには、ペーストがマクロにある動きを体験すること、マクロな体験を反映したミクロな内部構造が形成されること、形成されたミクロな構造が残留しマクロに割れやすい方向を決めること、のすべてのプロセスが実現される必要がある。どのようなマクロな体験をしたらどのようなミクロな内部構造が形成され記憶として残るのであろうか？本研究ではペースト中のコロイド粒子間の相互作用に着目し、どういう種類の相互作用であればペーストは己のいかなる体験を記憶できどのような構造が形成されるか調べ、そしてどのような構造であれば残留可能で亀裂の伝播方向に影響を及ぼすのか、そのメカニズムの多様性と普遍性を解明する実験を行った。

### 3. 研究の方法

本研究では、ミクロンサイズの粉(コロイド粒子)と液体を混ぜて作成したペーストに対し、振動や剪断や磁場の印加を短時間行い、その後室温・低湿度で静かに乾燥させて時に出現する亀裂パターンを画像解析することで、ペーストがどのように揺れや流れや磁場を記憶するのか解明する。

実験においてまず重要なパラメーターとなるのは、粉の種類と大きさと形状、液体の種類、粉と液体の混合比であり、これらはペーストのレオロジー特性に大きな影響を及ぼす。さらに、ペーストに振動や剪断を加えるためにこれまでは水平加振機を用いていたが、これはペーストを入れている容器の動きを制御しても、ペースト自体の動きが制御できていない。そのため本研究では、レオメーターを用いてペーストに振動剪断を加えることで、ペーストにかかる応力と歪みを正確に測定し制御することに成功した。また、Shimadzu や Spring-8 で X 線 CT を用いたペースト内部の非破壊観察を行うことで、ペースト内に形成されるネットワーク構造も解析した。実験と並行して、LAMMPS を用いた分子動力学シミュレーションも行い、コロイド粒子間の相互作用を調整しながら、剪断流動中のペースト内部のコロイド粒子のネットワーク構造の形成過程を調べた。

### 4. 研究成果

本研究により、以下の成果が得られた。

(1) まず、ペーストの記憶の強さやメモリー効果によって生じた亀裂パターンの異方性を定量化するために、シャノンの情報エントロピーを用いた亀裂パターンの異方性の定量化の方法を提案した。多くの亀裂が特定な方向に伝播する状況は本来レアなイベントである。そのため、特定の方向へライン状に伝播する亀裂の発生確率を用いて情報エントロピーを定義すると、メモリー効果によって亀裂の伝播方向が決まっている場合は亀裂の伝播する方向に沿って情報エントロピーの値を計算した時に最小値を取る。よって、情報エントロピーが最小となる方向と最小値の導出により、亀裂の伝播する方向からペーストがどのような動きを記憶しその記憶の強さがどの程度か定量化できるようになった。[図1]

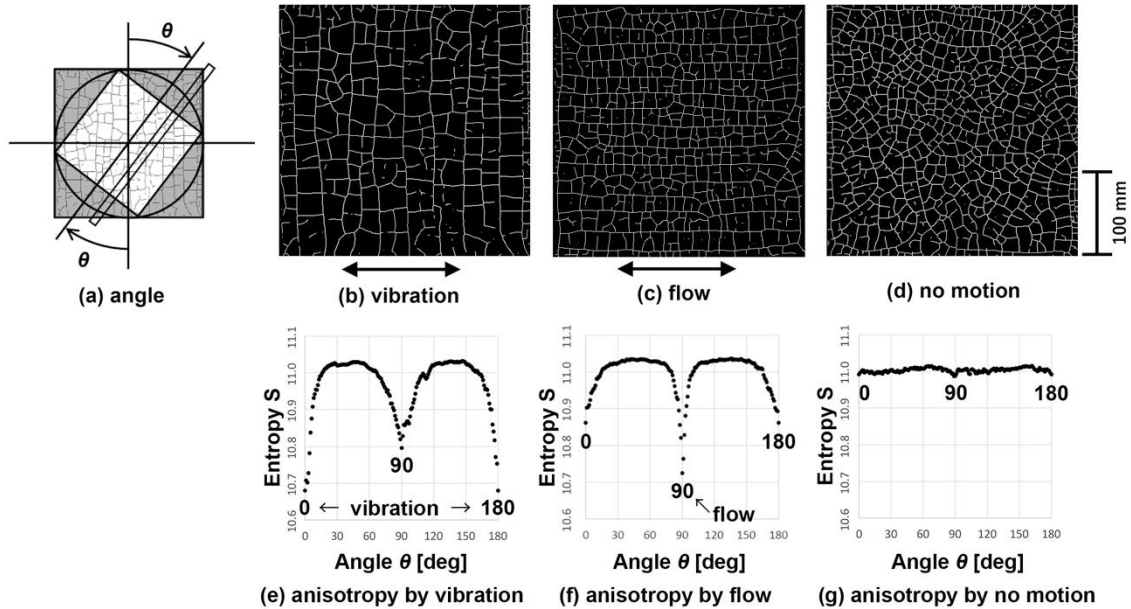


図1 情報エントロピーを用いた記憶と亀裂パターンの異方性の定量化 [1]

(2) ペーストに添加する紐状の糖類の量を調整することでペーストにメモリー効果を促進したり抑制したりできるようになった。ペーストが塑性を持ち己の動きを記憶するメカニズムとして、コロイド粒子間の引力的相互作用によって形成されるネットワーク構造が重要であると考えられる。そのため、水中で帯電している炭酸カルシウムなどのコロイド粒子は、高濃度で揺れた場合は揺れを記憶できても、中濃度で流れた時にクラスターを形成できず流れを記憶できないことが知られていた。ここで、糖類などの紐状の高分子を適度に添加すると、ポロマーブリッジ効果でコロイド粒子間に引力が誘起され、流れの中でもネットワーク構造が形成できるようになるので、流れを記憶できることがわかった。さらに糖の添加量が多すぎると逆効果になり、ポリマーによるラッピング効果でコロイド粒子間に斥力が誘起されるので、流れだけでなく揺れをも記憶できなくなることが確認された。[図2]

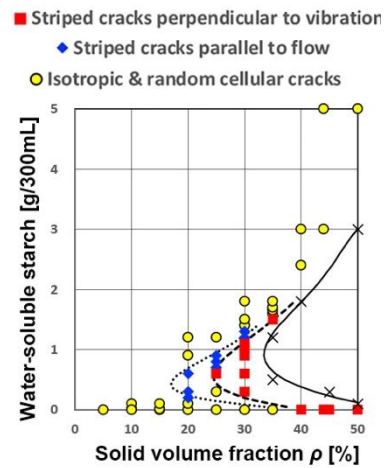


図2 糖類添加によるペーストのメモリー効果の促進と抑制 [1]

(3) ペーストが揺れを記憶した場合は揺れた方向に垂直に、流れた場合は流れた方向に平行に亀裂が伝播することが知られていたが、本研究では揺れの記憶と流れの記憶の境界を定量化する実験を行った。レオメーター下でペーストに振動剪断歪みを印加してから乾燥破壊をさせたところ、揺れの記憶の垂直縞状亀裂と流れの記憶の平行縞状亀裂のどちらが発生するかは振動剪断歪みの振幅だけで決まることと、流れの記憶のためには振動を加える必要もないことが分かった。すなわち、揺れを記憶する構造は振動する微小剪断歪みを起因としており、流れを記憶する構造は一方方向の大変形を伴う剪断歪みを起因としていることが分かった。 [図3]

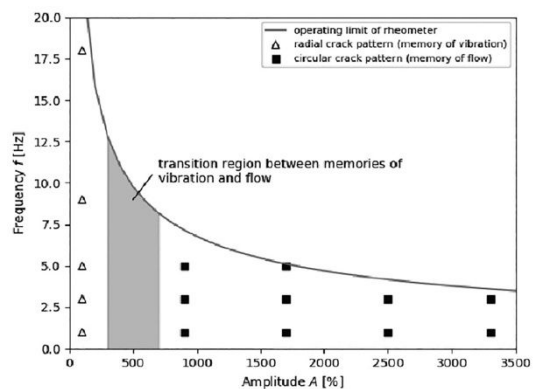


図3 揺れの記憶と流れの記憶の発現相図 [2]

(4) 流れの記憶と言っても、いつも流れに平行に割れるとは限らないことも分かった。例えば、

ペーストを流してスリットに通すと、スリット通過前は流れに平行に割れやすいものの、スリット通過後は流れに垂直に割れやすくなることがわかった。この要因として、スリット通過前は流れが加速され流れの方向に沿って伸びたクラスターになるが、スリット通過後は流れが減速されるために、相対的に剪断変形の大きさが小さくなるとともに、クラスターにブレーキがかかる形で進行方向に対しクラスターが垂直に広がってしまい、流れに垂直に割れやすくなっていると考えられる。この現象のメカニズムの詳しい解明のためには引き続きシミュレーションやX線CT撮影による解析が必要となる。

(5) ペーストが揺れや流れなどの自身の動きを記憶するメカニズムを調べるために粉と混ぜる液体の種類を水からエタノールに変えたところ、炭酸カルシウムの粉末を混ぜると揺れを記憶するがエタノールと混ぜると記憶できなくなる一方、フッ化カルシウムの粉末とエタノールを混ぜると揺れを記憶できるが水と混ぜると記憶できなくなるなど、粉と液体の組み合わせによって記憶できたりできなくなったりすることが分かった。さらに研究を進めたところ、記憶効果が発現するためには粉と液体の親和性が関係しており、親和性が良いと粉が液体中で一様に分散してしまうために異方性を記憶する構造が形成できず、かえって親和性が悪いほうが揺れや流れなどの動きに連動した異方的なネットワーク構造を形成しやすくなるために記憶効果が発現しやすくなることが分かった。

以上、本研究によりペーストのメモリー効果の多様性と普遍性についての理解も進んだため、今後は人類の役に立つためのさらなる工学的な応用に向けても邁進していきたい。

#### <引用文献>

- [1] Ryu Baba, Kazuhiro Fujimaki, Chihiro Uemura, Yousuke Matsuo, Akio Nakahara and Akinori Muramatsu, "Assisting and eliminating memory effects of paste by adding polysaccharides", *Physical Review E* **108** (2023) 054602.
- [2] Chihiro Uemura, Akio Nakahara, Yousuke Matsuo and Takahiro Iwata, "Transition condition between memories of vibration and flow in the memory effect of paste", *Physical Review E* **109** (2024) 034604.

## 5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計4件（うち査読付論文 4件/うち国際共著 1件/うちオープンアクセス 0件）

1. 著者名 Baba Ryu, Fujimaki Kazuhiro, Uemura Chihiro, Matsuo Yousuke, Nakahara Akio, Muramatsu Akinori	4. 巻 108
2. 論文標題 Assisting and eliminating memory effects of paste by adding polysaccharides	5. 発行年 2023年
3. 雑誌名 Physical Review E	6. 最初と最後の頁 054602(1-24)
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1103/PhysRevE.108.054602	査読の有無 有
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 -
1. 著者名 Uemura Chihiro, Nakahara Akio, Matsuo Yousuke, Iwata Takahiro	4. 巻 109
2. 論文標題 Transition condition between memories of vibration and flow in the memory effect of paste	5. 発行年 2024年
3. 雑誌名 Physical Review E	6. 最初と最後の頁 034604(1-7)
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1103/PhysRevE.109.034604	査読の有無 有
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 -
1. 著者名 Roland Sztatmari, Zoltan Halasz, Akio Nakahara, So Kitsunozaki and Ferenc Kun	4. 巻 17
2. 論文標題 Evolution of anisotropic crack patterns in shrinking material layers	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 Soft Matter	6. 最初と最後の頁 10005-10015
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1039/d1sm01193f	査読の有無 有
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 該当する
1. 著者名 So Kitsunozaki, Akihiro Nishimoto, Tsuyoshi Mizuguchi, Yousuke Matsuo and Akio Nakahara	4. 巻 105
2. 論文標題 X-ray computerized tomography observation of Lycopodium paste incorporating memory of shaking	5. 発行年 2022年
3. 雑誌名 Physical Review E	6. 最初と最後の頁 044902 (1-11)
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1103/PhysRevE.105.044902	査読の有無 有
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17件（うち招待講演 1件 / うち国際学会 0件）

1. 発表者名 中原明生
2. 発表標題 破壊に見る流れの記憶
3. 学会等名 研究会「計算統計物理の今日と明日」（東京大学工学部）（招待講演）
4. 発表年 2024年

1. 発表者名 植村千尋、中原明生、松尾洋介、岩田隆浩
2. 発表標題 ペーストのポリゴン状亀裂パターンにおける異方性の転移と火星地形への応用に関する研究
3. 学会等名 日本地球惑星科学連合2024年大会
4. 発表年 2024年

1. 発表者名 佐久間絢子、狐崎創
2. 発表標題 パラフィンワックスの冷却によって生じる亀裂の研究II
3. 学会等名 日本物理学会2024年春季大会
4. 発表年 2024年

1. 発表者名 藤巻和宏、馬場龍、植村千尋、松尾洋介、中原明生、村松旦典
2. 発表標題 情報エントロピーを用いた異方的な亀裂パターンの定量化
3. 学会等名 奈良非線形研究会（奈良女子大学理学部）
4. 発表年 2024年

1. 発表者名 馬場龍、藤巻和宏、植村千尋、松尾洋介、中原明生、村松旦典
2. 発表標題 糖の添加量を調整してペーストのメモリー効果を促進したり抑制する実験
3. 学会等名 奈良非線形研究会（奈良女子大学理学部）
4. 発表年 2024年

1. 発表者名 植村千尋、中原明生、松尾洋介、岩田隆浩
2. 発表標題 ペーストのメモリー効果における揺れの記憶と流れの記憶の転移条件
3. 学会等名 奈良非線形研究会（奈良女子大学理学部）
4. 発表年 2024年

1. 発表者名 佐久間絢子、狐崎創
2. 発表標題 パラフィンワックスの冷却によって生じる亀裂の研究
3. 学会等名 奈良非線形研究会（奈良女子大学理学部）
4. 発表年 2024年

1. 発表者名 小田桐和奏、松尾洋介、中原明生、狐崎創
2. 発表標題 粉体の接触角がペーストのメモリー効果に及ぼす影響
3. 学会等名 日本物理学会第78回年次大会
4. 発表年 2023年

1. 発表者名 佐久間絢子、狐崎創
2. 発表標題 パラフィンワックスの冷却によって生じる亀裂の研究
3. 学会等名 日本物理学会第78回年次大会
4. 発表年 2023年

1. 発表者名 田口真実、狐崎創
2. 発表標題 気体の圧力による亀裂形成のフェーズフィールドモデル
3. 学会等名 日本物理学会2023年春季大会
4. 発表年 2023年

1. 発表者名 小田桐和奏、松尾洋介、中原明生、村松旦典
2. 発表標題 粉粒子の形状と溶媒によるメモリー効果の影響
3. 学会等名 日本物理学会2022年秋季大会
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 馬場龍、中原明生、村松旦典
2. 発表標題 ペーストに混合させた高分子の糖類がメモリー効果に及ぼす影響
3. 学会等名 日本物理学会2021年秋季大会
4. 発表年 2021年



1. 発表者名 伊藤伸一、中原明生、湯川愉
2. 発表標題 乾燥亀裂パターンの動的統計則に現れる相転移的性質
3. 学会等名 日本物理学会2021年秋季大会
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 狐崎創、西本明弘、中原明生、松尾洋介、水口毅
2. 発表標題 揺れの記憶を持つ石松子ペーストの $\mu$ X-CT(II) 異方的構造の解析
3. 学会等名 日本物理学会第76回年次大会
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 中原明生、内田恭輔、笹川将、松尾洋介、狐崎創、フェレンツ・クン、ルーカス・ゲーリング、水口毅
2. 発表標題 磁性ペーストの記憶と亀裂形成への影響
3. 学会等名 日本地球惑星科学連合
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 植村千尋、岩田 隆浩、中原明生、臼井寛裕、松尾洋介、野口里奈
2. 発表標題 乾燥破壊による亀裂パターンと火星上の熱収縮polygonの類似性の検討
3. 学会等名 日本地球惑星科学連合
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 中原明生
2. 発表標題 Morphological diversity in crack pattern of dried colloidal suspension induced by memory effect
3. 学会等名 日本分子生物学会
4. 発表年 2020年

〔図書〕 計0件

〔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
研究分担者	狐崎 創  (KITSUNEZAKI So)  (00301284)	奈良女子大学・自然科学系・教授   (14602)	

	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
研究協力者	松尾 洋介  (MATSUO Yousuke)		

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		
ハンガリー	HAS		