

科学研究費助成事業 研究成果報告書

平成 29 年 6 月 28 日現在

機関番号：17102

研究種目：基盤研究(B) (一般)

研究期間：2012～2016

課題番号：24340100

研究課題名(和文)非相溶性ブレンドの電気粘性効果

研究課題名(英文)Electrorheology of immiscible fluid mixtures

研究代表者

坂上 貴洋 (Sakaue, Takahiro)

九州大学・理学(系)研究科(研究院)・助教

研究者番号：30512959

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 13,900,000円

研究成果の概要(和文)：外部から電場をかけることにより流動特性を制御できる流体を電気粘性流体という。本研究では、あまりこれまで研究の進展していない二相に相分離した流体混合系における電気粘性効果を対象とし、基礎的な研究を展開した。特に、電場による流動特性の変化と相分離流体内部のドメイン構造との関連に注目し、電気粘性効果が発現する物理的機構を明らかにした。

研究成果の概要(英文)：The viscosity of some fluids can be controlled by the application of the external electric field. Due to its technological importance, this so-called electro-rheological (ER) effect has been extensively studied in the past, but most of them examined the insulating fluid containing the dielectric small particles.

In the present research, we have investigated another type of ER fluid, which do not involve the dispersed particles; that is immiscible (phase separated) mixture of the dielectric fluids. In particular, we have focused on how the domain structure of the phase separated fluid is determined by the imposed flow and electric fields, and its relation to the resultant rheological properties. This enables us to clarify the competitive effects of the flow and electric fields to control the ER properties of the fluid.

研究分野：ソフトマター物理学

キーワード：電気粘性効果 レオロジー 相分離 エマルジョン

1. 研究開始当初の背景

「電気粘性効果」は、物質の流動状態を外部から印加する電場による制御する現象一般を指し、その実用的重要性から長い研究の歴史を持つ。通常、電気粘性流体といえ、溶液中に電場応答性の微粒子を添加したものを指し、それらの分散状態を電場により変化させることにより、マクロな流動物性の制御を行う。ところが、1990年代の半ばに、相分離した流体混合物（非相溶性ブレンド）においても電気粘性効果が発現することが報告された。この系は従来の電気粘性流体と異なり分散微粒子を含まず、その新たな電気粘性効果の発現メカニズムについて国際的に強い関心が寄せられてきた。

応用面においては、通常の微粒子分散タイプにおける「硬くて素早い応答」に比べ、より「柔らかくゆっくりとした応答」をするという傾向が経験的に認識され、その特性を生かした歩行補助器のブレーキが既に国内で試作されてきた。一方、この現象についての理論的理解は未だ非常に初歩的な段階に留まっていた。定性的には、電場による相分離ドメイン構造の変形により、応力の増大が起こるのであると考えられてきたが、実験結果を（半）定量的に説明し、更に、新たな現象の予言能力を持つ理論的枠組みの構築と整備が強く望まれていた。

2. 研究の目的

近年の着目すべき進展として、レオロジー測定と同時にブレンド内部構造の直接観察が可能となったことが挙げられる。これを受け、実験と連携をとりながら、メソスケールでの構造変化と巨視的な流動物性との関係を理論的に解明していくことは、急務であり、同時に、そこには大きな発展の可能性が秘められている。

これまで理論的研究が未開拓であった困難の要因として、電気的効果(マクスウェル応力)の寄与を理論へ取り込むのが容易ではなかったことが挙げられる。原理的には、これはマクスウェル方程式の解より与えられるが、時々刻々と変化する複雑な界面により規定される境界条件の下これを実行するの

には、詳細、かつ大規模な数値計算に頼るしかなく、解析的理論は、高分子共重合体系における秩序構造を対象としたいいくつかの研究を除き、これまで皆無であった。

本研究では、電気粘性効果を支配する物理量であるマクスウェル応力を界面の統計的形狀(界面テンソル)により表現し、ブレンドの電気粘性効果の問題を界面ダイナミクスの土俵に乗せ、界面テンソルという粗視化変数を用いた解析的理論の展開へと繋げていく。ここには、近年の非平衡統計力学の中心的課題として研究されてきた相分離ダイナミクス、パターン形成の問題で培われてきた多くの蓄積があり、それらを総合的かつ有機的に用いることにより、基礎的なレベルにおける理解を飛躍的に進展させることを目指す。

3. 研究の方法

マクスウェル応力を界面の統計的形狀(界面テンソル)により表現する公式を導出し、それを基に、流動場、電場中における非相溶性ブレンドの電気粘性効果を記述する構成方程式を考案する。

電気粘性効果では、流動場、電場の二つの外場に対する系の応答を見ることになるが、そのどちらが支配的かによって様相は大きく異なることが期待される。まずは、流動場が支配的な場合、電場が支配的な場合のそれぞれの場合について相分離流体のドメイン構造とレオロジーとの関連を明らかにし、その後、二つの外場の競合の効果を数値シミュレーションも利用しながら調べていく。

4. 研究成果

(1) マクスウェル応力を相分離流体のドメイン構造を用いて表現する公式の導出

相分離流体においては、一般に二相の誘電率は異なるため、界面にはマクスウェル応力が作用する。しかし、これまで複雑な界面形状とマクスウェル応力との関係は不明であった。一方、界面の存在による応力(界面応力)が界面テンソルと界面張力により表現されることは従来から知られていた。本研究では、電場の効果を系統的に取り扱うことにより、マクスウェル応力の界面テンソルを用いた表現を導出した。この公式は、電場と界面張力から構成される無次元量の結合テンソルを含み、マクスウェル応力の効果を異方的な界面張力として繰り込むことが可能であることを示している。

(2) 流動場が支配的な場合の構成方程式

電場の強度が弱く、流動場の効果が支配的な場合には、せん断流により非平衡状態に駆動されている相分離流体に対し、電場の効果を摂動として取り入れることができる。そのような場合の電気粘性効果を記述する構成方程式を構築した。また、その詳細な解析を行い、実験結果との比較と理論的側面の両面からその妥当性を確かめた。

実験から、電場に対する応力の応答として、通常の平衡系で見られるものとは異なる性質の動的応答が報告されていたが、これを再現することに成功した。また、そのメカニズムとして、電場と流動場との結合効果を明らかにし、同種の応答は、互いに結合している複数自由度がある系において、かなり一般的に見られるものであることを議論した。

(3) 電場が支配的な場合でのせん断剛性率

相分離(誘電)流体に強い電場をかけると、相分離ドメインが電場方向に引き伸ばされ、極板間を架橋する柱状の特徴的な構造が形成される。このような状況では、系は弾性的性質を強く示す。ここでは、柱(二次元では縞)状のドメイン構造を仮定し、それにより発生するせん断剛性率を計算した。これにより、せん断剛性率が電場強度やドメイン構造、流体の組成、それぞれの成分の誘電率や導電率などにどのように依存するかを明らかにした。また、マクスウェル応力を実効的に異方的界面張力として捉えることにより、電場下で形成される柱構造の特徴的長さの選択則についてのスケーリング則を導出した。

(4) 電場と流動場の競合による非線形レオロジー

電場と流動場の効果が拮抗する状況について、主として数値シミュレーションによる研究を行った。強電場下で極板間を架橋する柱状の相分離構造ができているところにせん断をかけていくと、せん断率が小さなきには、柱構造の傾いた定常状態が実現し、この状態での実効粘度は電場強度の二乗に比例して大きくなることを議論した。一方、せん断率が高くなると柱状の構造が破壊され、速度勾配が空間的に局在したシアバンド現象を伴う非線形レオロジーが観測された。この柱状構造の破壊はせん断率がある臨界値を越えたところで起こる不安定性であり、そこには非自明な電場強度、界面張力依存性が見られた。また、空間次元の効果についても調査を行い、三次元では電場、流動場の両方の効果を「受け流す」ドメイン構造の実現が可能であることを示した。この場合、電気粘性効果は発現しないが、外場によるドメイン構造制御法として興味深い。

5. 主な発表論文等

(研究代表者、研究分担者及び連携研究者には下線)

[雑誌論文](計 6 件)

- 1, "Shear modulus of structured electro-rheological fluid mixtures"
Kyohei Shitara and Takahiro Sakaue
Physical Review E, 93, 052603:1-7 (2016).
- 2, "Miscibility Phase Diagram of Ring Polymer Blends: A Topological Effect"
Takahiro Sakaue and Chihiro Nakajima
Physical Review E, 93, 042502:1-9 (2016).
- 3, "Dynamical scaling of polymerized membranes"
Ken-ichi Mizuochi, Hiizu Nakanishi and Takahiro Sakaue
Europhysics Letters 107, 38003:1-6 (2014).
- 4, "Dynamics and electrorheology of sheared immiscible fluid mixtures"
Takahiro Sakaue, Kyohei Shitara and Takao Ohta
Physical Review E, 89, 052301:1-7 (2014).
- 5, "Memory effect and fluctuating anomalous dynamics of a tagged monomer"
Takahiro Sakaue
Physical Review E, 87, 040601:1-4 (2013).
- 6, "Maxwell stress in fluid mixtures"
Takahiro Sakaue and Takao Ohta
Physical Review Letters, 108, 078301:1-5 (2012).

[学会発表](計 5 件)

- 「非相溶性ブレンドのマクスウェル応力」
坂上貴洋、太田隆夫
日本物理学会第 67 回年次大会 2012/3/27
(兵庫県西宮市)
- 「界面揺らぎにおける記憶効果と異常拡散」
坂上貴洋、中西秀
日本物理学会 2013 年秋季大会 2013/9/25
(徳島県徳島市)
- "On miscibility of ring polymer blend"
Takahiro Sakaue
RING POLYMERS: ADVANCES AND PERSPECTIVES,
2015/7/14 (Creta, Greece)
- 「電気粘性効果とアクティブマター」
坂上貴洋、設楽恭平
アクティブマター研究の過去・現在・未来
2015/3/14 (宮城県仙台市)

“Topological constraint on the phase behavior of ring polymer blends”

Takahiro Sakaue

Polymers with spatial and mechanical constraints, 2016/7/7 (Venice, Italy)

〔図書〕(計 0 件)

〔産業財産権〕

出願状況(計 0 件)

名称:

発明者:

権利者:

種類:

番号:

出願年月日:

国内外の別:

取得状況(計 0 件)

名称:

発明者:

権利者:

種類:

番号:

取得年月日:

国内外の別:

〔その他〕

ホームページ等

www.stat.phys.kyushu-u.ac.jp/~sakaue

6. 研究組織

(1) 研究代表者

坂上 貴洋 (SAKAUE, Takahiro)

九州大学・大学院理学研究院・助教

研究者番号: 30512959

(2) 研究分担者

()

研究者番号:

(3) 連携研究者

太田 隆夫 (OHTA, Takao)

京都大学・名誉教授

研究者番号: 50127990

中西 秀 (NAKANISHI, Hiizu)

九州大学・大学院理学研究院・教授

研究者番号: 90155771

(4) 研究協力者

設樂 恭平 (SHITARA, Kyohei)

お茶の水女子大学・博士研究員

研究者番号: 20709159