

## 科学研究費助成事業 研究成果報告書

平成 27 年 5 月 15 日現在

機関番号：10101

研究種目：若手研究(B)

研究期間：2013～2014

課題番号：25800234

研究課題名(和文) 粉粒体における相転移ダイナミクスと非線形レオロジーの競合

研究課題名(英文) A competition between phase transition dynamics and the nonlinear rheology in granular matter

研究代表者

村田 憲一郎 (Murata, Ken-ichiro)

北海道大学・低温科学研究所・助教

研究者番号：60646272

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 3,200,000円

研究成果の概要(和文)：相転移・不安定化現象に伴う強い非平衡状態と粉粒体の非線形レオロジーとの間の動的競合についての実験的研究を行った。本課題では、ウェットフォーム薄膜のDewetting(界面不安定化の一種)を例にとり、一粒子レベルの運動が関与する不安定化の起点から、中・後期過程のマクロな粗大化に至るプロセスの実時間・実空間観察を行った。特にウェットフォームの非線形レオロジーにより、粘性流体における従来型のスケーリング則がどのように破れるのかという点に着目し、粉粒体の相転移・不安定化ダイナミクスにおける新たなスケーリング則を見出した。

研究成果の概要(英文)：We have experimentally investigated a dynamic competition between the strongly non-equilibrium state associated with phase transitions and instabilities, and the nonlinear rheology of granular matter. In this study, using dewetting (one of the interfacial instabilities) of the thin film of wet foam as an example, we performed real-space and -time observations of the ordering process ranging from the birth of the instability involving one particle motion to macroscopic coarsening in the late stage. We found a new scaling law in the ordering dynamics of the instability, focusing on the violation of the conventional scaling law in usual viscous fluids due to the nonlinear rheology of wet foam.

研究分野：液体物理学

キーワード：相転移ダイナミクス 粉粒体 撥水 フォーム 濡れ

## 1. 研究開始当初の背景

(1) 粉粒体とは、巨視的な粒子の集合体を指し、適度な外力下で「流れ」を示すユニークな物質群である。密な粉粒体はアモルファスの構造を有し、粒子間の相互作用が極めて弱く、僅かな応力に対しても敏感に応答することから、しばしば「Soft Glassy Material」とも呼ばれる。このような系では、十分に弱い応力で容易に非線形応答が実現する。この特徴的な「流れ」は、外力によってのみ駆動されているので、外力が消失すればエネルギーは散逸し、流動性も失われるという散逸多体系（非熱系）としての側面も併せ持っている。このユニークなレオロジー特性の基礎的理解は、工学的応用のみならず、ガラス転移とジャミング転移の統一的理解に関連して、非平衡物理学の目下の重要なテーマとなっている。

(2) 研究代表者は、本研究課題と並行して「液体・液体転移」という新たな相転移現象、とりわけその過渡的過程の動力学に着目し研究を進めてきたが、その研究の過程で、相転移や不安定化現象に伴う強い非平衡状態と粉粒体のレオロジーの動的競合が、その相転移ダイナミクス自体の非線形性から、非常に重要なテーマになり得るとの認識に至った。従来の粉粒体の研究では、そのユニークなレオロジー特性の基礎的理解そのものに主眼が置かれていたが、本研究課題では相転移・不安定化現象との動的競合の可能性に着目し、むしろ粉粒体の非線形レオロジーを積極的に利用することで、相転移ダイナミクスにおける新しいタイプの普遍性の構築を目指している。相転移ダイナミクスの研究自体は、空間スケールの階層性と、それに由来するのろまなダイナミクスを特徴とするソフトマター物理学分野で今もなお大きな発展を見せているが、特に散逸多体系における相転移・不安定化ダイナミクスについては未開拓な領域であり、本研究分野における今後の重要なテーマの一つになることが予想される。

(3) また、生物物理学分野に目を向ければ、細胞の二次元的な集団運動（広がり）には、類似の力学過程（正確には Dewetting の逆である Spreading）が含まれている可能性がある。その意味でも、本研究は分野の枠を越えた新たな研究のフロンティアを切り開くことができるのではないかと考えた。

## 2. 研究の目的

前述のように、相転移や不安定化現象に伴う強い非平衡状態と粉粒体の非線形レオロジーの動的競合については未解明な点が多い。本研究では、相転移・不安定化ダイナミクスの視座から、レオロジーの非線形性により、秩序化過程における従来型のスケーリング則がどのように破れるのかを明らかにし、粉粒体の相転移・不安定化ダイナミクスにおける新たな普遍性を見出すことを目的とした。特に本課題では、一次相転移・不安定化現象のモデルケースとして、表面・界面（2次元系）の不安定化の一つである撥水（Dewetting：液体薄膜が界面から自発的に後退する不安定化現象）を扱い、従来の Dewetting で観測される動的スケーリング則が、散逸多体系としての粉粒体の特性によりどのように変調されるかを特に検討した。

## 3. 研究の方法

(1) 粉粒体は衝突時の斥力を除いて互いに力を及ぼすことはないので、集合体としての界面張力はゼロである。それ故、通常の粉粒体では Dewetting を始め、界面張力により駆動される不安定化現象は起こり得ない。そこで本研究では、界面張力を生む媒質、即ち不安定化の起点として一定量の水分が必要であると判断し、粉粒体の一種であるウェットフォーム（泡）をサンプルとして選択した。これにより、Dewetting により生じる力学場がフォームの降伏応力に打ち勝つことで流動場が生じるため、そのユニークなレオロジーを反映した Dewetting ダイナミクスを観測することができる。なお、Dewetting により生じる力（界面張力）は非常に小さいので、例えば砂・水の混合系などの含水粉粒体では、水より密度の高い砂を流体力学的に輸送できるほどの強い力は発生しない。それ故、Dewetting を起こすのは困難である。よって水（界面活性剤）・空気で構成されるウェットフォームが本実験系においては最適である。

(2) 本研究では、高速度カメラとマクロレンズを用いて Dewetting ダイナミクスの実時間・実空間観察を行った。より具体的には Dewetting の後期過程における粗大化及びパターン形成というマクロなプロセスを追跡すると同時に、マイクロな視点からは、転移に付随して駆動されるローカルなダイナミクス（流れ）を一粒子レベルで捉えた。解析では、主に画像解析法、二次元流動解析法を用いた。

## 4. 研究成果

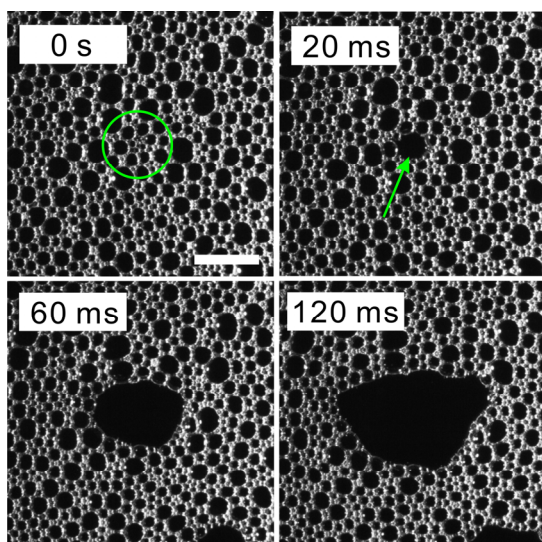


図 1：高速カメラで捉えたフォーム薄膜の Dewetting の様子。黄緑の領域、矢印は不安定化の起点、及び穴の開いた直後の様子を表す。スケールバーは 1 mm である。

(1) マクロレンズを搭載した高速カメラを用いることで、Dewetting という不安定化の起点（核生成の瞬間）を直接観察することに成功した（図 1）。従来の粘性流体の Dewetting では、連続体としての取り扱いが前提となるので、核生成の瞬間はマイクロ（分子スケール）な意味では定義することができない（また観察も不可能である）。それに対し本実験系では、構成粒子のサイズが大きく、かつ粒子間相互作用が弱いウェットフォームを用いることにより、転移のダイナミクス自体が極めて遅くなり、その瞬間を捉えることが可能になった。今後、転移の起点となる場所の粒子配置と応力の関係（例えばマイクロな粒子配置が内部応力を支えるのに適した配置か否か等）を調べる必要がある。

(2) 次に、一粒子レベルの運動が関与する不安定化の始まり（核生成の起点）から、中・後期過程のマクロな粗大化に至るプロセスの解明に取り組んだ。この点については、核生成というマイクロなスケールの事象と、粗大化過程というレオロジーとしての性質が関与するマクロなスケールをつなぐという観点から極めて興味深い。観察の結果、フォームの Dewetting における粗大化過程は、これまで粘性流体の Dewetting において理論的に予測されていた線形成長則（ドメインの特征的サイズ： $\xi \sim t$ ）には従わず、フォームの有限の降伏応力を反映した緩和型（指数関数型）でスケールされることを見出した（図 2）。更にその素過程では、上述したマイクロな領域からマクロな領域へのクロスオーバー挙動は見られずに、空間的にシームレスに指数関数型でスケール可能であることも分かった。このスケールングを特徴付ける緩和時間と、フォーム自身

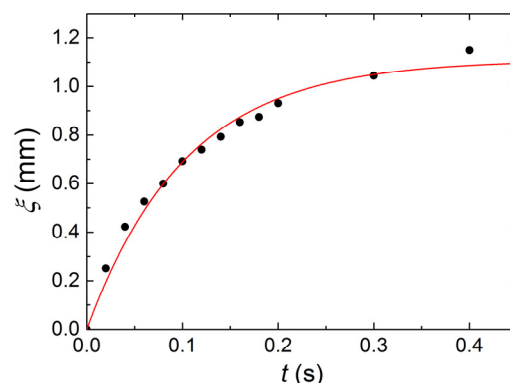


図 1：穴の特征的サイズの時間発展。赤線は単調指数関数（緩和型）による解析。

の物性との結びつきを明らかにすることが今後の研究の焦点となる。

(3) またこれまでの研究から、より理想的な実験系の構築に向けた改善が必要であることも分かってきた。本研究では、フォーム薄膜を成形する際に生じた Dewetting を観察しているが、それ自体が偶発的事象であるために実験系が完全にコントロールされている訳ではない。よって現在、本課題の発展的展開として外力下（例えばフォーム薄膜を伸長した時の膜の穴開き、破壊）での強制的かつ意図的な Dewetting 挙動の制御・解明にも取り組んでいる。

## 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 3 件）

- ① Ken-ichiro Murata and Hajime Tanaka, Microscopic identification of the order parameter governing liquid-liquid transition in a molecular liquid, 査読有, Proceeding of the National Academy of Sciences of the United States of America, Vol. 112, pp. 5956-5961 (2015).
- ② Ken-ichiro Murata and Hajime Tanaka, General nature of liquid-liquid transition in aqueous organic solutions, 査読有, Nature communications, 4, 2844, (2013).
- ③ Christian L. Klix, Ken-ichiro Murata, Hajime Tanaka, Stephen R. Williams, Alex Malins and C. Patrick Royall, Novel kinetic trapping in charged colloidal clusters due to self-induced surface charge organization, 査読有, Scientific Reports, 3, 2072, (2013).

[学会発表] (計 5 件)

- ① 村田憲一郎、「結晶の融解過程における動的階層性」、日本物理学会、2015 年 3 月 21 日、早稲田大学 (新宿区)
- ② Ken-ichiro Murata, Wetting dynamics of quasi-liquid layers on ice crystal surfaces, Physics of Structural and Dynamical Hierarchy in Soft Matter、2015 年 3 月 16 日、東京大学 (目黒区)
- ③ Ken-ichiro Murata, Solute effects on liquid-liquid transition in supercooled water, New Frontiers in Biomineral Formation Research: From Prenucleation Clusters to the Final Crystal, 2014 年 10 月 8 日、北海道大学 (札幌市)
- ④ 村田憲一郎、「液体・液体転移における普遍的性質」、日本地球惑星科学連合 2014 年大会、2014 年 5 月 1 日、パシフィコ横浜 (横浜市)
- ⑤ 村田憲一郎、「液体・液体転移における普遍的性質」、日本物理学会、シンポジウム講演：液・液転移－第 2 臨界点仮説を巡って－：2013 年 9 月 25 日、徳島大学 (徳島市)

[図書] (計 0 件)

[産業財産権]

○出願状況 (計 0 件)

○取得状況 (計 0 件)

## 6. 研究組織

### (1) 研究代表者

村田 憲一郎 (Ken-ichiro Murata)  
北海道大学・低温科学研究所 助教  
研究者番号：60646272