

科学研究費助成事業 研究成果報告書

平成 29 年 10 月 10 日現在

機関番号：10101

研究種目：基盤研究(B) (一般)

研究期間：2014～2016

課題番号：26289032

研究課題名(和文)せん断流下における非ニュートン流体のマイクロレオロジー

研究課題名(英文)Microrheology of non-Newtonian fluids under shear flow

研究代表者

折原 宏(Hiroshi, Orihara)

北海道大学・工学(系)研究科(研究院)・教授

研究者番号：30177307

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 12,100,000円

研究成果の概要(和文)：高分子、液晶等のソフトマターはミクロな構造を持ち、この構造は流れと相互作用をする。本研究では、構造が特にせん断流と関係したレオロジー的性質に及ぼす影響をマイクロレオロジー的手法を用いることによって明らかにした。まず、平衡状態におけるネマチック液晶の配向ゆらぎとせん断流れを同時に観測し、これらの相互相関関数を求めることによって、相互作用がゆらぎにおいても存在することを明らかにした。さらに、相関関数をレスリー・エリクセン理論から導出し、実験結果と比較した。次に、キサントタン水溶液にせん断を印加したときの分散粒子のブラウン運動を観測し、キサントタン分子間の相互作用に起因する拡散があることを明らかにした。

研究成果の概要(英文)：Soft matter such as polymers and liquid crystals has microscopic structures, which interplay with flow. We have investigated the effect of the structure on the rheological properties related to shear flow by applying microrheology. First, we observed both orientation and shear flow fluctuations at equilibrium to obtain the cross-correlation function between them, and elucidated the existence of interplay. Furthermore, we compared the experiment with a theoretical result derived from the Ericksen-Leslie Theory. Next, we observed sheared particles dispersed in a xanthan solution and found an anomalous diffusion due to the molecular interaction.

研究分野：ソフトマター物理学

キーワード：液晶 マイクロレオロジー せん断流 コロイド

1. 研究開始当初の背景

レオメーターを用いたレオロジー測定は高分子等のソフトマターの研究に広く用いられている。一方、近年新たにマイクロレオロジーと呼ばれる微粒子を分散させ、そのブラウン運動を観測する手法が用いられるようになった。マイクロレオロジーでは局所的な粘弾性の評価も可能であるため、細胞などのような微小空間での測定が可能となる等、従来のレオメーターによる測定方法に比べ多くの優れた点がある。

2. 研究の目的

本研究では、従来のマイクロレオロジーの手法を流動がある場合に発展させ、流動下における拡散定数の測定法を確立するとともに、これを用いて高分子等のソフトマターの流動下における非線形レオロジーの個別性と普遍性を解明することを目的とする。

3. 研究の方法

現有のレオメーターに蛍光微粒子を観測するための共焦点レーザー顕微鏡を取り付け、せん断流下でマイクロレオロジー測定を行う装置を作製すると同時に、得られた画像から粒子の軌跡等を求め、相関関数等を計算するソフトウェアを開発する。これを用いて、液晶、高分子等の測定を行う。

4. 研究成果

(1) ネマチック液晶は細長い分子からなり、配向の秩序を持つ。平均の配向方向はダイレクターと呼ばれる単位ベクトル n によって表される。配向と流れが相互作用するのがネマチック液晶の重要な特徴である。この相互作用は平衡状態でも起こっている筈であるが、これまで報告例はない。本研究では、液晶 ZLI-2806 に分散させた直径 $1\mu\text{m}$ の蛍光微粒子をレーザーで緩くトラップし、その位置の時間変化を測定した。位置の時間依存は液晶の流れを反映している。一方、配向変化は偏光顕微鏡により測定することができる。蛍光と偏光観測を同時に行った。Fig. 1 に得られた動画のスナップショットを示す。画像の明暗の変化はダイレクターの空間ゆらぎを反映している。動画では時間的にも揺らいでいるのがわかる。中心にあるのが蛍光粒子であり、ある範囲内でブラウン運動している。Fig. 2 に粒子の平均自乗変位 (MSD) を示す。液晶では異方性があるため x と y 方向で拡散に違いがあることがわかる。ダイレクター方向 (y 方向) の拡散が大きい。長時間側で MSD の増加率が減少しているのは、光トラップの影響が出ているためである。 y 軸からのダイレクターの角度を θ とすると、画像の強度は θ に比例する。配向と流れの間に相互作用があれば、 $g_y \equiv \partial\theta/\partial y$ と粒子の位置 x の間には相関があることが示される。Fig. 3 に蛍光粒子をトラップする高さが異なる 3 つの相互相関関数 $\langle(x(t)-x(0))(g_y(t)-g_y(0))\rangle$ を示した。

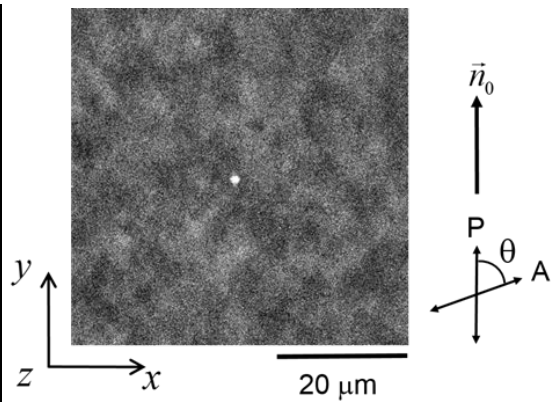


Fig. 1. 蛍光と偏光画像 .

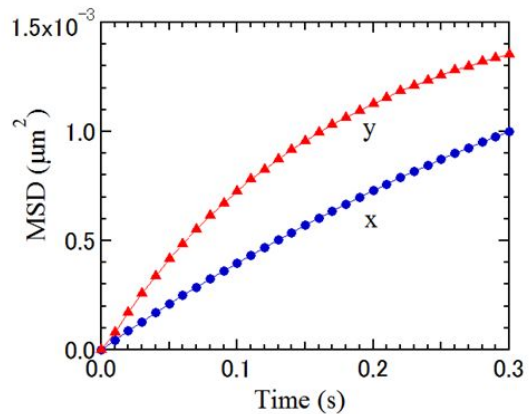


Fig. 2. 流れ方向 (x 方向) と渦度方向 (y 方向) の MSD.

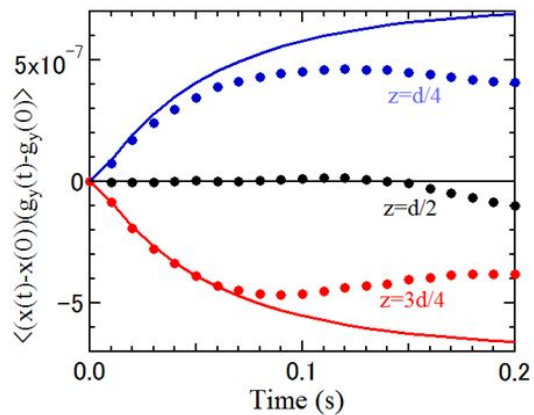


Fig. 3. 配向と流れの相互相関関数 .

本実験では 2 枚のガラス板の内部で高さ方向に 1 波長のゆらぎを観測している。したがって、 d をガラスの間隔とすると、 $d/4$ と $3d/4$ ではゆらぎの振幅が最大であるが、位相は逆、また中心 $d/2$ ではゼロとなる。これに対応して相互相関関数は $d/4$ と $3d/4$ では値を持つが、逆符号、 $d/2$ ではゼロとなっている。なお、図中の実線はエリクセン・レスリー理論から得られた計算値である。以上のように、本研究により平衡状態においてもネマチック液晶のせん断流は配向ゆらぎの影響を受けていることを明確に示すことができた。

(2) キサンタン水溶液はせん断を印加するとその粘度が減少する、つまりシアシニング

を起こす流体としてよく知られている。このような流体に対して、マイクロレオロジーを適用し、せん断流下における粘性の測定を行った。実験には濃度 0.2wt% のキサンタン水溶液を用いた。レオメーターの下側のステージをガラス板と取り換え、ガラス板をとおして蛍光粒子の軌跡を観測した。Fig. 4 にせん断速度を変えた時の流れ方向の MSD を示す。無せん断の場合ほぼ拡散はなく、強い劣拡散の状態となっている。せん断を印加すると MSD がせん断速度に応じて大きくなり、長時間側では指数約 2 のべき乗則に従っていることがわかる。ニュートン流体にせん断を印加すると流れ方向の MSD には通常的时间に比例する項に加えて、時間の 3 乗の項が加わることが知られている。これはせん断速度方向のゆらぎがせん断流れによって増幅されるためである。簡単な考察から、せん断速度方向の MSD の指数を a とすると流れ方向の異常部分の指数は $a+2$ となることが示せる。今、 a はほぼゼロであるので b は 2 となり、実験結果を説明できる。一方、流れとせん断速度に垂直な方向(渦度の方向)の MSD は Fig. 5

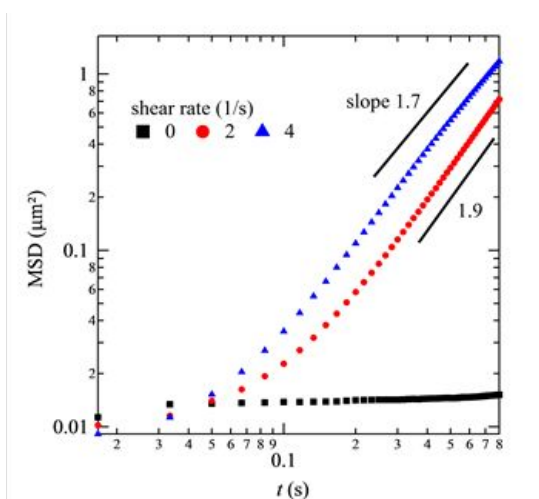


Fig. 4. 流れ方向の MSD .

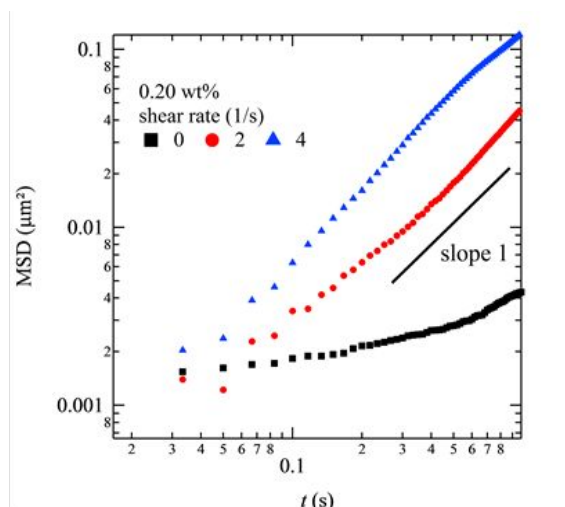


Fig. 5. 渦度方向の MSD .

に示すように、せん断を印加すると長時間側で傾き 1、つまり正常拡散になっている。せん断を印加した際に正常拡散になる例として、コロイド粒子の濃厚懸濁液が知られている。粒子が接近している場合、せん断を印加すると粒子同士が衝突し、それによって粒子がランダムに移動する。これにより、熱ゆらぎに起因するブラウン運動と類似した拡散(自己拡散)が起こると考えられている。キサンタンの場合も、分子が大きいので同様な自己拡散が分子に起こり、それによって蛍光粒子も拡散すると推測している。ニュートン流体ではこのような自己拡散は起こらない。以上のように、大きな分子からなる懸濁液では、せん断流によって静止状態とは異なる拡散が特に渦度方向に起こることが明らかとなった。

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 9 件)

H. Orihara, N. Sakurai, Y. Sasaki, and T. Nagaya

“Direct observation of coupling between orientation and flow fluctuations in a nematic liquid crystal at equilibrium”
Phys. Rev.E Vol.95, 042705/1-6(2017)
(査読有)(DOI:10.1103/PhysRevE.95.042705)

K. Sato, I. Kunita, Y. Takikawa, D. Takeuchi, Y. Tanaka, T. Nakagaki and H. Orihara

“Direct observation of orientation distributions of actin filaments in a solution undergoing shear banding”
Soft Matter, 13, 2708-2716(2017)(査読有)(DOI:10.1039/C6SM02832B)

Y. Sasaki, V.S.R. Jampani, C. Tanaka, N. Sakurai, S. Sakane, K. V. Le, F. Araoka, and H. Orihara

“Large-scale self-organization of reconfigurable topological defect networks in nematic liquid crystals”
Nature Communications Vol. 7 13238/1-13 (2016)(査読有)(DOI:10.1038/ncomms13238)

T. Nagaya, Y. Satou, Y. Goto, Y. Hidaka, and H. Orihara

“Viscosity of Liquid Crystal Mixtures in the Presence of Electroconvection”
Journal of the Physical Society of Japan Vol. 85 074002/1-4(2016)(査読有)(DOI:10.7566/JPSJ.85.074002)

Y. Nishioka, F. Kobayashi, N. Sakurai, Y. Sasaki, and H. Orihara

“Microscopic characterisation of

self-assembled colloidal particles in electrohydrodynamic convection of a low-birefringence nematic liquid crystal ”

Liquid Crystals Vol. 43 427-435 (2016) (査読有) (DOI:10.1080/02678292.2015.1117146)

J. F. Fatriansyah and H. Orihara “Electric-field-induced flow-aligning state in a nematic liquid crystal ”

Phys.Rev.E Vol.91 042508/1-7 (2015) (査読有) (DOI:10.1103/PhysRevE.91.042508)

Y. Sasaki, H. Hoshikawa, T. Seto, F. Kobayashi, V. S. R. Jampani, S. Herminghaus, C.Bahr, and H. Orihara “Direct visualization of spatiotemporal structure of self-assembled colloidal particles in electrohydrodynamic flow of a nematic liquid crystal, ”

Langmuir Vol.31 3815-3819 (2015)(査読有)(DOI: 10.1021/acs.langmuir.5b00450)

Y. H. Na, Y. Aburaya, H. Orihara, K. Hiraoka, and Y. Han

“Electrically induced deformation in chiral smectic elastomers with different domain structures ”

Phys.Rev.E Vol.90 062507/1-6 (2014) (査読有) (DOI:/10.1103/PhysRevE.90.062507)

J. F. Fatriansyah, Y. Sasaki, and H. Orihara

“Nonequilibrium steady-state response of a nematic liquid crystal under simple shear flow and electric fields ”

Phys. Rev.E Vol.90 032504/1-8 (2014) (査読有) (DOI:10.1103/PhysRevE.90.032504)

[学会発表](計 22 件)

櫻井信孝, 佐々木裕司, 長屋智之, 折原宏

“ネマチック液晶中の微粒子のブラウン運動と配向ゆらぎの同時測定 ”

第 64 回レオロジー討論会, 2016 年 10 月 28 日、大阪大学、豊中市

T. Nagaya, Y. Satou, Y. Goto, Y. Hidaka, and H. Orihara

“Negative electrorheological effect of MBBA in the presence of electro-convection, ”

Nice Optics 2016 (Oct.27, 2016), Nice, France.

Y. Goto, S. Nukita, T. Nagaya, S. Residori, H. Orihara,

“Observation of Stochastic Resonance

in a Liquid Crystal Light Valve with Optical Feedback, ”

Nice Optics 2016 (Oct.27, 2016), Nice, France.

H. Orihara, Y. Harada, Y. Sasaki, S. Fujii, T. Nagaya, Y. Goto, and Y. Hidaka

“Negative shear viscosity observed in the presence of electroconvection of nematic liquid crystal, ”

ETHZ-HU Joint Academic Seminar (Sep. 26, 2016), Sapporo, Japan.

長屋智之, 佐藤裕樹, 後藤善友, 日高芳樹, 原田祐子, 折原 宏

“MBBA の電気対流状態における特異なレオロジー特性 ”

2016 年 日本液晶学会討論会, 2016 年 9 月 5 日、大阪工業大学、大阪市

原田祐子, 佐々木裕司, 折原 宏, 佐藤裕樹, 長屋智之, 後藤善友, 日高芳樹

“液晶電気対流により誘起された自発せん断流れと履歴曲線 Spontaneous shear flow induced by electrohydrodynamic convection of NLC and hysteresis loop ”

2016 年 日本液晶学会討論会, 2016 年 9 月 5 日、大阪工業大学、大阪市

佐々木裕司, 坂根 伸, 天野 怜央, 上田 基史, Khoa V. Le, 荒岡 史人, 折原宏

“ネマチック液晶におけるトポロジカル欠陥配列の高分子安定化とその物性 ”

2016 年 日本液晶学会討論会, 2016 年 9 月 5 日、大阪工業大学、大阪市

Y. Sasaki, V.S.R. Jampani, K. V. Le, F. Araoka, and H. Orihara

“Self-organization of reconfigurable topological defect arrays in nematic liquid crystals, ”

International Symposium for Advanced Materials Research (Aug.12,2016), Sun Moon Lake, Taiwan.

H. Orihara, N. Sakurai, Y. Sasaki, and T. Nagaya,

“Direct observation of the coupling between orientation and flow fluctuations at equilibrium, ”

26th International Liquid Crystal Conference (Aug. 3, 2016), Kent, USA.

T. Nagaya, Y. Satou, Y. Goto, and H. Orihara

“Negative electrorheological effect of MBBA due to Maxwell stress in the presence of electro-convection ”

26th International Liquid Crystal Conference(Aug.3,2016), Kent OH, USA.

小林史明, 佐々木裕司, 日高芳樹, 長屋智之, 折原宏

“液晶電気対流のしきい値近傍における配向ゆらぎの観察”

2015年 日本液晶学会討論会, 2015年9月7日、東京工業大学、横浜市

小林史明, 西岡自晶, 櫻井信孝, 佐々木裕司, 折原宏

“小さな複屈折を有する液晶を用いた電気対流中でのコロイド粒子の運動”

2015年 日本液晶学会討論会, 2015年9月7日、東京工業大学、横浜市

櫻井信孝, 佐々木裕司, 長屋智之, 折原宏

“液晶中の微粒子のブラウン運動と配向ゆらぎの同時測定”

2015年 日本液晶学会討論会, 2015年9月7日、東京工業大学、横浜市

H. Orihara

“Non-equilibrium steady-state response and fluctuations of nematic liquid crystals”

International Symposium on Fluctuation and Structure out of Equilibrium 2015 (SFS2015) (Aug. 22, 2015), Kyoto, Japan.

S. Nukita, Y. Goto, T. Nagaya, and H. Orihara

“Stochastic Resonance in a Liquid Crystal Light Valve with Optical Feedback,”

International Symposium on Fluctuation and Structure out of Equilibrium 2015 (SFS2015) (Aug. 21, 2015), Kyoto, Japan.

Y. Sato, T. Nagaya, Y. Goto, Y. Hidaka, and H. Orihara

“Rheology and Patterns of Electro-Hydrodynamic Convection in Liquid Crystal Mixtures,”

International Symposium on Fluctuation and Structure out of Equilibrium 2015 (SFS2015) (Aug. 21, 2015), Kyoto, Japan.

T. Nagaya, Y. Satou, Y. Goto, Y. Hidaka, and H. Orihara

“Apparent Viscosity and Stripe Structure of a Mixture of MBBA and EBCA,”

The 2nd Asian Conference on Liquid Crystals (Jan. 20, 2015), Busan, Korea.

J. F. Fatriansyah, H. Orihara

“Probing Orientational Transitions of a Nematic Liquid Crystal under Shear Flow and Electric Fields through Shear Stress Response”

第62回レオロジー討論会, 2014年10月15日、AOSSA、福井市

武内大輔, 瀧川佳紀, 國田 樹, 佐藤勝彦, 田中良巳, 折原 宏, 中垣俊之

“F-アクチン溶液に形成されるシアバンディング”

第62回レオロジー討論会, 2014年10月15日、AOSSA、福井市

瀧川佳紀, 布川貴大, 安田宗玄, 佐々木裕司, 折原 宏

“定常せん断流下における微粒子のブラウン運動”

第62回レオロジー討論会, 2014年10月15日、AOSSA、福井市

②1 佐々木裕司, 瀧川佳紀, VSR Jampani, 星川光, 瀬戸貴文, C. Bahr, S.

Herminghaus, 日高芳樹, 折原宏

“液晶電気対流中におけるコロイド粒子の運動と輸送”

2014年 日本液晶学会討論会, 2014年9月8日、くびきメッセ、松江市

②2 J. F. Fatriansyah, Y. Sasaki, and H. Orihara

“Response of Nematic Liquid Crystal under Simple Shear Flow and Electric Field,”

International Union of Materials Research Societies- The IUMRS

International Conference in Asia 2014 (Aug. 26, 2014), Fukuoka, Japan.

〔その他〕

ホームページ等:

<http://www.eng.hokudai.ac.jp/labo/MOLPHY/home/>

6. 研究組織

(1) 研究代表者

折原 宏 (ORIHARA HIROSHI)

北海道大学・大学院工学研究院・教授

研究者番号: 30177307

(2) 研究分担者

佐々木裕司 (SASAKI YUJI)

北海道大学・大学院工学研究院・助教

研究者番号: 00649741

(3) 連携研究者

中垣俊之 (NAKAGAKI TOSHIYUKI)

北海道大学・電子科学研究所・教授

研究者番号: 70300887