

会場 D

領域 12

D-4

動的差分顕微鏡法を用いたコロイド分散系のダイナミクス解析

九大理^A, 九大院理^B 田旗栄太^A, 木村康之^B

近年、顕微鏡画像の時間・空間揺らぎから動的光散乱と同様のソフトマター流体のダイナミクスに関する情報を得ることが可能な動的差分顕微鏡 (Differential Dynamic Microscopy : DDM) が用いられ、さまざまな系に適用されている [1]。DDM では異なる時間で撮影された画像の差のフーリエ変換から散乱波数 q 、時間差 t における中間散乱関数 $f(q, t)$ を得ることができる。本研究では DDM をさまざまなソフトマター流体に適用し、そのダイナミクスに関して得られた情報を議論する。その 1 例として図 1 にコロイド分散系に対して得られたさまざまな時間差 t における差分フーリエ変換画像強度の散乱波数 q 依存性を示す。この強度分布から、各 q に対して図 2 のような $f(q, t)$ の時間依存性を得ることができる。コロイド分散系では f の時間減衰は粒子の拡散に起因しており、時間軸を tq^2 とスケールすることで種々の q に対する f が重なることがわかる。また、その時間減衰率から粒子の拡散定数を得ることができる。当日はその他の系に適用した結果も報告する予定である。

[1] R. Cerbino¹ and V. Trappe, Phys. Rev. Lett. **100**, 188102 (2008).

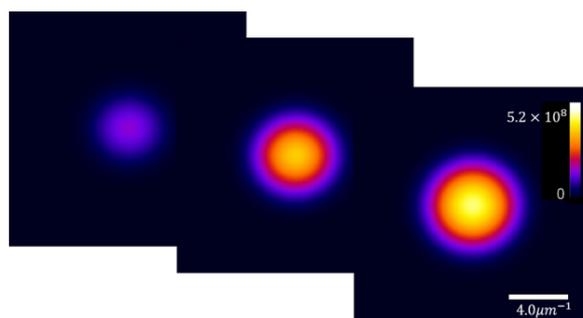


図1. 各時間差での画像差のフーリエ変換強度
左から $\Delta t = 5.27s, 8.37s, 13.3s$

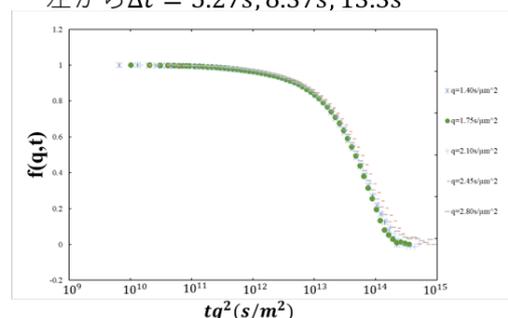


図2. コロイド分散系に対してDDMから
得られた中間散乱関数 $f(q, t)$

D-5

ホログラフィック顕微鏡を用いた多粒子3次元追跡

九大理^A, 九大院理^B 満生明輝^A, 池田豊和^B, 木村康之^B

液体中のコロイド粒子のダイナミクスを研究するために3次元位置の追跡を行うことは非常に有用である。2次元の顕微鏡像から粒子の3次元位置を推定する方法の一つとして、ホログラフィック顕微鏡を用いた推定方法がある。粒子にコリメートされたレーザー光を照射して得られる散乱光と直接光の干渉パターン(ホログラム)をもとに3次元光場を構築し、粒子の重心位置を推定する方法をRayleigh-Sommerfeld back-propagation(RS法)と呼ぶ[1]。本研究では光源にレーザーではなく赤色LEDを用い、RS法によって複数の粒子の3次元位置を同時追跡した。

図1は7個のポリスチレン粒子(粒径 $1.9\mu\text{m}$)のホログラムから再構築された3次元光場を、図2は粒子の軌跡を示す。本方法の特徴として、粒子のホログラム像が重なっていてもその3次元位置を推定可能な点がある。発表ではより高濃度な系に適用した結果も報告する予定である。

[1]S.-H.Lee and D.G.Grier, Opt.Express **15**, 1505 (2007).

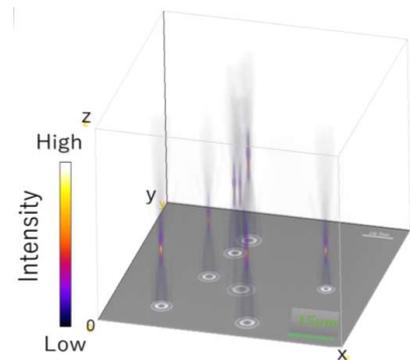


図1:ホログラムから再構築された3次元光場

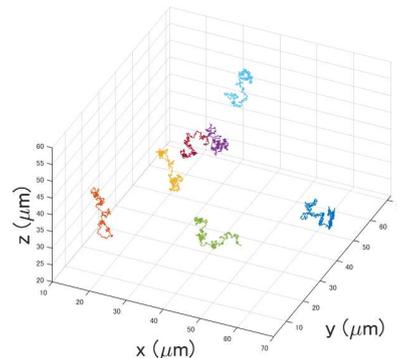


図2:7 粒子の3次元軌跡の例

D-6

局所的な力印加による濃厚コロイド懸濁液のマイクロレオロジー

九州大学理学部物理学科^A, 九州大学大学院理学研究院^B 荊原佳祐^A, 江藤高宏^B, 水野大介^B

私たちの身の回りに存在するソフトマターは、メソスケール($\text{nm}\sim\mu\text{m}$)の要素で構成されるために、外力の印加により多彩な流動挙動を示す。剛体球コロイドの濃厚懸濁液は、こうした非線形流動のメカニズムを調べるための最も単純なモデル系である。従来レオメーターを用いて巨視的な応答が観測されてきたが、マクロな流動挙動は、構成要素である粒子同士の相互作用とダイナミクスにより決定される。そこで本研究では、基本構成粒子の力学応答と外場に対する降伏挙動を直接観測した。具体的には、ガラス転移点近傍のコロイド懸濁液($\phi=57\%$)中に分散させたプローブ粒子に、フィードバック制御された光捕捉力を加えつつ、揺らぎと輸送特性を観測した(図1)。ストークス関係式から求めた周囲媒質の局所粘性は、強い非ニュートン性を示し、粒子に加える牽引力が増加するにつれ顕著に減少した(thinning: 図2)。ガラス転移近傍のコロイド懸濁液は、わずかな内的・外的条件に対して流動挙動が大きく変化する。そこで本研究では、境界条件がコロイド懸濁液の局所的な降伏挙動へ与える影響も実験により検証した。

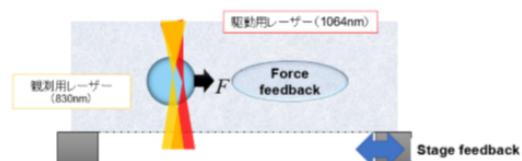


図1:牽引実験模式図

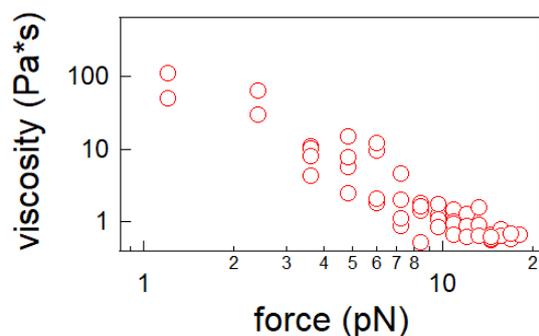


図2:牽引力に対するコロイド懸濁液の局所粘性の変化

D-7

外力誘起により流動する濃厚コロイド懸濁液のマイクロレオロジー

九州大学大学院理学研究院^A, 九州大学理学部物理学科^B 水野大介^A, 江藤高宏^A, 荊原佳祐^B

私たちの身の回りに存在するソフトマターは、単純液体とは異なり外力の印加により、力学的性質が大きく変化して多彩な流動挙動を示す。剛体球コロイドの濃厚懸濁液は、その非線形流動のメカニズムを調べるための単純なモデル系である。従来、マクロレオメーターを用いてマクロな系の平均的な応答が広く研究されてきた。しかしながら、コロイド系の流動挙動は構成粒子の相互作用に由来するため、巨視的な流動場中において微視的なレベルでの力学応答を観測することが、その非線形機構の理解に繋がる。

そこで本研究では、コロイド懸濁液 ($\phi=0.57$) にマクロなずり場を印加し、流動する懸濁液中の1粒子の応答を、光捕捉を用いた外力印加の下 (アクティブマイクロレオロジー) で測定した。図1に示す通り、試料上面のピエゾを振動させて巨視的なずり流動場を印加しつつ、下部のピエゾをフィードバック制御に用いることで、プローブ粒子を光捕捉レーザーの焦点位置に維持した (図1)。また、ガラス基板表面にコロ

イド粒子を接着させることで、試料表面でのスリップを除去し、良く定義されたずり場を試料に印加しつつ測定を実施した。予備的な実験では、巨視的流動場の印加に伴い、個別粒子の線形応答にも流動性が生じている。その詳細は当日議論する。

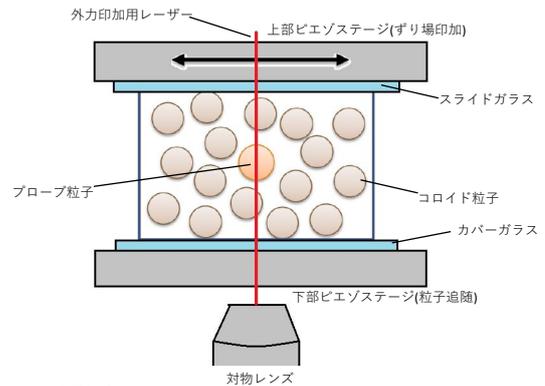


図1: 実験概念図

D-8

レーザー干渉法による粒子追跡の感度向上へ向けた、光てこの応用

九州大学理学部物理学科^A, 九州大学理学府物理学科^B, 九州大学理学研究院物理学部門^C 井口昇之^A, 三谷一晃^B, 水野大介^C

レーザー干渉法 (LI) は、急峻に収束させたレーザー光で捕捉した微粒子が形成する干渉パターンを後側焦点面で観測し、粒子位置を高い時空間分解能で追跡する技術である。例えば微粒子の運動から周囲媒質の力学特性が求まり (マイクロレオロジー)、用いる粒子のサイズにより観測の空間スケールを自在に変えられる。しかし、粒径がレーザー波長を超えて大きくなるにつれて、レーザーの回折角が小さくなるため、後側焦点面での検出感度が低下し LI での粒子追跡が困難となる。

光てこは、平行化させた検出レーザーの光路長を確保することで、僅かな回折角度に対応する読み取り変位を光学的に増幅する手法である。本研究では、粒子をレンズとして用いて検出レーザーを平行化させることで LI に光てこを適用し、巨大粒子の変位計測の感度向上を試みた (図1)。

従来の LI と光てこを用いた LI の感度を比較した結果を表1に示す。100 μm の粒子では、光てこにより感度が約 20 倍向上する結果が得られた。このように、後側焦点検出に替わり、光てこを応用した LI は、粒径の大きな粒子の変位検出に有用である。

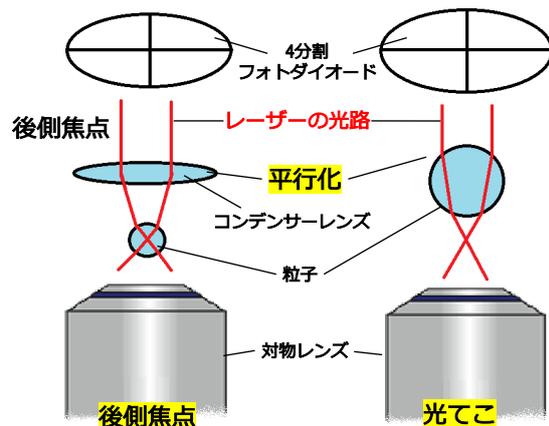


図1 後側焦点検出LI(左)と光てこを応用したLI(右)

表1後側焦点検出LIと光てこを応用したLIでの感度 [10^{-6}V/m]

	後側焦点検出	光てこ応用
粒径50 μm	1.06	7.73
粒径100 μm	0.419	8.08
粒径5 μm	4.67	

D-9 生体高分子ゲルの局所力学応答

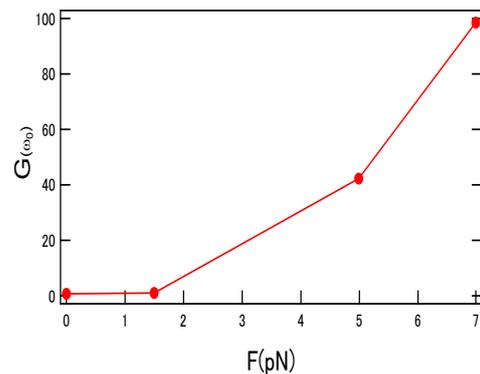
九州大学^A 水野大介^A, Francis van Esterik^A, 本田菜月^A, 白木啓悟^A

生体には、細胞骨格や細胞外繊維のように、曲げに対する復元力を示す生体高分子（ソフトマター）からなるネットワークが存在し、細胞や組織に力学的な安定性を与えている。線形応答が保証された連続媒質中では、局所的な力印加に対する応答性が巨視的な力学特性も決定する。しかしながら生体高分子は、分子モーターや細胞が生成する力に対して、非線形に応答するために、その集合体としてのネットワークにも複雑で多彩かつ予測不能な力学応答が現れる。

本研究では、血餅を固化させる生体高分子であるフィブリンネットワークに、局所的な力を印加して、その力学応答を観測した。フィブリンは緩衝液の塩濃度、pH等によって、個別のフィラメントの力学パラメーター（曲げ弾性率、架橋密度etc）を変化させる。フィブリンネットワーク中に分散させたLATEX粒子（1 μm）に光捕捉力を印加しつつ、レーザーインターフェロメトリ法を用いて、その揺らぎ応答を観測した。予備的な観測の結果、光捕捉力の印加とともに粒子の熱揺らぎは減少し、ネットワークに非線形な応力硬化が生じて

いることが分かった。

今回観測した細胞骨格の局所的力印加に対する非線形応力硬化現象は、スケージング（無次元化）により、普遍曲線に載ることが示唆されている。フィブリン分子の性質を幅広く変化させて実験を繰り返すことで、非線形な力学応答に現れる普遍性とその限界について議論する。

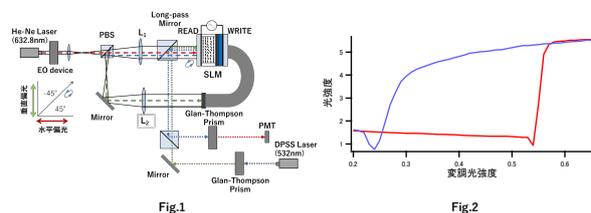


D-10 光ノイズで誘起される液晶空間光変調器の確立共鳴現象

大分大^A, 別府短大^B 猪部篤矢^A, 後藤善友^{A,B}, 小野澤晃^A, 長屋智之^A

確率共鳴現象とは、双安定条件下において周期をもった微小な信号にある最適な雑音（ノイズ）を加えることで、それまで隠れていた信号が顕在化するという現象である。本研究では、光の位相を制御する光アドレス型液晶空間光変調器（SLM：Spatial Light Modulator）に光フィードバックを課した光学系（Fig.1）において確率共鳴を観測した。この系では、SLMに入射する光の強度の増加時と減少時で液晶の傾き角に対応する信号にヒステリシスが観測されるため（Fig.2）、安定な傾き角が二つある（双安定性）。この双安定領域で確率共鳴現象の観測を行う。また、ノイズの種類による確率共鳴現象への影響を見るため、加えるノイズは二値ノイズ（Dichotomous noise）とした。SLMに入射するレー

ザー光に正弦的変調とノイズを加えた結果、光強度が明と暗の2つの状態間を周期的に遷移する結果が得られ、確率共鳴現象が確認できた。当日はこの研究の詳細を報告する。



D-11

有色ノイズがMBBA 液晶の負の粘性発現に及ぼす効果

大分大^A, 別府短大^B, 北大院工^C 野中祐輝^A, 氏家誠司^A, 津田洋介^A, 小野澤晃^A, 後藤善友^{A,B}, 長屋智之^A, 小林史明^C, 折原宏^C

粘性とは流れに対する抵抗の大きさであり、一般的には正の値である。しかし、最近の研究で負の誘電異方性を持つ MBBA 液晶に高電圧の正弦波を印加した際の電気対流 (Electro Convection:EC) 発生時 (乱流状態) では粘性率が大きく減少し、見かけ上の粘性が負になることが分かっている¹⁾。見かけ上の粘性が負になると自発的に流れが生じるため、極めて簡単なモーターを作ることができる。しかし、現段階では、負の粘性発生には高電圧が必要なことから実用性が低い。

最近、九工大の許らは、適切な相関時間を持つ有色ノイズを交流電圧に加算すると EC 発現の閾値電圧を低下させることが可能である事を報告した²⁾。この研究結果から、我々は、適切な有色ノイズを交流電圧に加算すると、負の粘性発現に必要とされる正弦波の電圧が低下するのではないかと考えた。そこで本研究では、負の粘性の発現電圧を低下させることを目的として、正弦波に有色ノイズを加算してレオメーターを用いて粘性測定を行った。詳細は当日発表する。

(1) H. Orihara, Y. Harada, F. Kobayashi, Y. Sasaki, S. Fujii, Y. Satou, Y. Goto, and T. Nagaya Phys. Rev. E 99, 012701(2019)

(2) Jong-Hoon Huh and Shoichi Kai J. Phys. Soc. Jpn. 83, 063601 (2014)

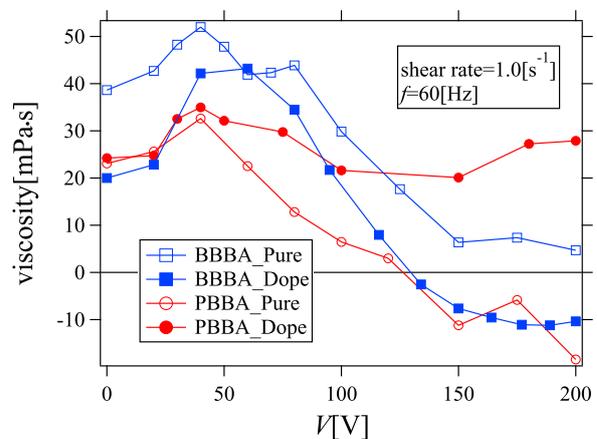
D-12

液晶電気対流によって誘起される MBBA 同族液晶の負の粘性

大分大^A, 別府短大^B, 北大院工^C 津田洋介^A, 氏家誠司^A, 小野澤晃^A, 後藤善友^{A,B}, 長屋智之^A, 小林史明^C, 折原宏^C

基本的に粘性率という物理量は正である。しかし、電気対流の存在下で、MBBA 液晶やその同族である EBBA の見かけの粘性率は高電圧領域の中で負になることが報告されている [1,2]。これは、電場と配向場の相互作用によって負の電氣的応力が生じ、その大きさが粘性に起因する応力よりも大きくなるのが原因と考察されている [1]。今回、これらの同族液晶である PBBA と BBBA が負の粘性を発現するかを調べた。その結果、BBBA は、導電性不純物 TBAB を添加し、導電率を向上させると 140V 付近で負の粘性が発現することがわかった。また、PBBA は導電性不純物を添加しないときに負の粘性を発現し、添加すると負の粘性を発現しなくなるがわかった。これらの結果を詳細に報告する。[1] [1]H.Orihara et al., Negative viscosity of liquid crystal in

the presence of turbulence, PRE 99(2019)012701, [2] 日本物理学会 2019 秋季大会 12aK35 液晶電気対流下における液晶のレオロジー



D-13 液晶電気対流の高分子ネットワークによる影響

九大工^A 井福弘基^A, 児島亮平^A, 岡部弘高^A, 河野真也^A, 原一広^A, 日高芳樹^A

ネマチック液晶に電圧を印加すると電気対流が生じる。プレーナー配向系では、電圧を上昇させていくと、様々な対流構造(パターン)を経て乱流へ至る。これをパターン遷移と呼ぶ。液晶電気対流は、対流パターンの観察が容易など実験上の様々なメリットがあるため、対流現象のモデルとしてよく用いられている。一方、液晶と高分子ネットワークに関する研究は「液晶/高分子複合体」として多くの応用研究が行われてきたが、液晶電気対流が高分子ネットワークによってどのような影響を受けるかについては研究がほとんど行われていない。また、高分子ネットワークは、多孔質媒質の一種とみなされる。多孔質媒質中の対流は、輸送現象の観点から工学的・科学的に重要であり、これまで多くの研究が行われてきたが、高分子ネットワークを用いた研究はこれまでに行われていない。本研究の目的は、液晶電気対流のパターン遷移が高分子ネットワークによってどのような影響を受けるのかを明らかにすることである。光重合によって高分子ネットワークを形成する光反応性モノマーを用い、その濃度を0, 5, 10, 15, 20, 25%と変えてネマチック液晶と混合した液晶試料を用意した。それぞれの液晶試料に電圧を印加してパターン遷移の観察を行なった。

D-15 欠陥乱流における外力下の物質輸送

九大工^A 中垣陽介^A, 岡部弘高^A, 河野真也^A, 原一広^A, 日高芳樹^A

水平配向系の液晶電気対流において、印加電圧を上昇させると、局所的な対流ロールを保ったまま常に揺らいだ状態が現れる(図1)。この状態は、ロールの揺らぎによって生じた欠陥を含むため「欠陥乱流」と呼ばれる。欠陥乱流中の微粒子は、ほとんどの時間で1つのロールにトラップされているが、ロールの揺らぎによる揺動力を受け、稀に隣のロールにホッピングする。これは、周期ポテンシャル中のホッピング拡散として表されることが明らかとなっている。本研究の目的は、微粒子に外力が加わった場合の拡散と伝導の性質を明らかにすることである。微粒子は、短時間では隣のロールにホッピングするが、長時間で見ると外力方向に伝導していく。本研究では、重力を外力として用い、液晶セルを傾けることによって様々な大きさの外力に対する微粒子の運動を解析し、伝導度と拡散係数を求めることで輸送現象の特徴を明らかにする。

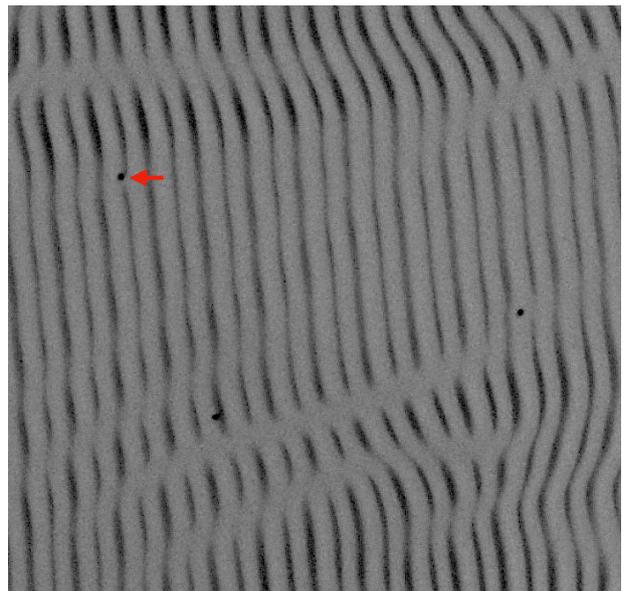
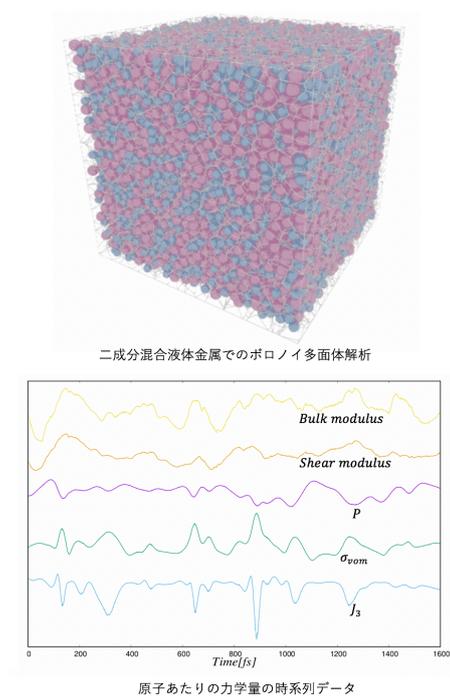


図1: 欠陥乱流中の微粒子

D-16 局所力学量で見る液体の動力学

大分大院工^A 山田爽水^A, 岩下拓哉^A

液体の構造と物性の関係性を明らかにすることは、統計物理学の重要な課題である。時々刻々と構造変化が繰り返される液体中の原子運動は、液体の粘度や電気伝導度を代表とする動的な輸送特性と密接に関わっている。しかしながら、液体が持つ構造不規則性のために、その局所構造変化の明確な特定が困難であり、その実態が明らかではない。そこで応力テンソルである局所的力学量から不規則構造内の時空間変化を特定し、液体の輸送特性の微視的起源を明らかにする事を本研究の目的とする。本研究では、液体金属の分子動力学シミュレーションを用いて、液体の局所力学量や局所構造の時系列データの解析結果を報告する。詳細な局所構造変化を特定するために図のような液体のポロノイ多面体解析から、液体の幾何学的構造データを取得した。また局所力学量パラメータ(局所圧力など)の時系列データから局所構造の変化を特定し、構造変化の時間相関を計算することで局所構造変化と物性について議論する。



二成分混合液体金属でのポロノイ多面体解析

原子あたりの力学量の時系列データ

D-17 液体の局所粘度の空間相関

大分大院工^A 古賀遼生^A, 岩下拓哉^A

液体の粘度は高温領域において特徴的な温度依存性であるアレニウス則を示す。これは、一見不規則な構造変化に見える液体中にも、粘性緩和における熱活性化過程が存在していることを示唆している。しかし、粘性の微視的起源と局所構造との直接的な関係は未だに明らかではない。我々は巨視的な応力は原子レベルの局所応力に分解することができる点に着目し、不規則構造をもつ液体における原子レベルの局所応力緩和と局所構造の関係性について調べた。図は、分子動力学シミュレーションを用いて、応力の回転不変量である局所圧力と局所ミーゼス応力によって局所せん断応力の緩和時間がどのように変化するかを示したものである。これら2つの応力不変量から原子あたりのせん断応力の緩和時間、つまり局所粘度を定義し、温度依存性や空間相関などの解析結果を報告予定である。

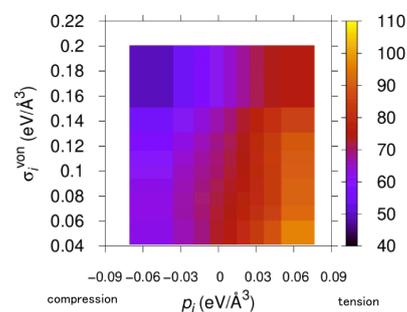


図: 局所圧力 p_i と局所せん断応力 σ_{von} に対する粘性緩和時間
圧縮環境下で σ_{von} が大きい原子は緩和時間が長く、
引っ張り環境下で σ_{von} が小さい原子は緩和時間が長くなる事が分かる。

D-18 荷電コロイドの粘度と熱的活性過程の関係

大分大院工^A 山崎拓真^A

電荷をもった微粒子が溶媒に分散した荷電コロイド分散系は、粒子間の静電相互作用のために粒子間に強い相関をもつ系である。さらに、少量の塩の添加や脱塩により剛体球的な挙動からガラス的な挙動までを制御することができる興味深い系である。この現象の主な原因は、粒子間相互作用が塩によって大きく変化するためである。このような粒子間相互作用の変化の結果として、液体状態からガラス状態への転移を引き起こすことができ、ガラス転移現象を理解するための知見を十分に提供してくれることが期待できる。また近年、液体金属において、高温液体で、粘性緩和を特徴付けるマクスウェル緩和時間と平均配位数が一つだけ変化する時間が等しくなることが見出され、微視的構造緩和と巨視的粘性緩和を結びつけることに成功した。これらの関係性の限界や材料普遍性を明らかにすることが未解決課題として残されている。本講演では、荷電コロイドの分子動力学シミュレーションを用い、応力緩和や粘度、局所構造緩和時間について議論する。また、液体金属で成り立つマクスウェルの緩和時間と局所構造緩和時間が一致するのかどうかについて報告する予定である。ここで、荷電コロイドのモデルとして、粒子間ポテンシャルは YUKAWA ポテンシャルを用いた。

D-19 自由エネルギーランドスケープ理論によるエイジングの理解

科教総研・九大^A 小田垣孝^A

エイジング [1,2] は、摂動に対する応答が、摂動が加えられた時刻から観測が開始されるまでの“待ち時間” t_w に依存する現象 [3] であり、過冷却液体などの遅い緩和の存在する非平衡系で見られる普遍的現象である。現在の所、分布関数の時間変化というぼんやりした考え方を超える理論はなく、エイジングの物理を明らかにすることおよびエイジングの解析から非平衡系の特徴を明らかにすることは、非平衡物理学の重要な課題となっている。本研究では、非平衡系の動的・熱力学的性質を統一的に説明する自由エネルギーランドスケープ (*FEL*) 理論 [4] に基づいて、温度変化に対する *FEL* の応答の遅れがエイジングとして発現するかことを明らかにする。*FEL* は温度に依存し、温度変化に対する応答には遅れが生じる。ここでは、時刻 $t = 0$ において温度を変化させたときの応答を待ち時間 t_w 経過後から観測した物理量に着目し、その待ち時間依存性から、*FEL* に関する情報が求まることを示す。例として二準位モデルで記述される誘電緩和を考え、*FEL* の遅延のある応答が二準位間の遷移確率に時間依存性を生じるものとし、誘電分極および線形感受率の緩和が待ち時間にどのように依存するかを求める。時刻 $t = 0$ において温度を不連続的に上昇させたときの誘電分極 $P(t)$ の $t = t_w$ における緩和関数 $\Phi(t, t_w) = P(t) - P_{eq}/P(t_w) - P_{eq}$ は、自明でない t_w 依存性を示し、エイジング効果が見られる。その待ち時間依存性から *FEL* の緩和時間が決められることを示す。また、正弦的に振動する外部電場がある場合、温度を変化させた後の線形感受率は、時間に依存する。与えられた振動数に対する線形感受率の緩和関数 $\chi(t, t_w) = \chi(\omega, t) - \chi(\omega, \infty) / \chi(\omega, t_w) - \chi(\omega, \infty)$ の t_w 依存性 ($t = t_w$) もエイジングを示す。このエイジングの待ち時間依存性も、分極の緩和関数と同様 *FEL* の応答の遅れで決まることを示す。

1) K. Fukao and D. Tahara, *Phys. Rev. E* 80, 051802 (2009). 2) T. Hecksher, N. B. Olsen, K. Nissand J. C. Dyre, *J. Chem. Phys.* 133, 1 L. Barrat, *Eur. Phys. J. B* 13, 319 (2000). 4) T. Odagaki, *J. Phys. Soc. Jpn.* 86, 082001 (2017).

固液転移において、分子の形状、つまり排除体積は固体の秩序構造や転移点を定める重要な役割を担っている。この観点から我々が注目したのが、円環状の分子である。円環状の分子は重心付近に体積を持たないため、円盤状の分子と比べて排除体積が小さい。このことが固液転移に及ぼす影響を調べるために、環状分子からなる単成分系の定圧冷却過程を、モンテカルロ法を用いて計算した。分子間にはたらく斥力相互作用として、円環分子の微小体積部分の間にソフトコア型の斥力を考えた。シミュレーションでは、1つの円環分子が100個の原子で構成されていると近似して計算した。高温で見られる無秩序相と、低温で見られる2種類の秩序相に対して、分子の配向軸に関するネマチックテンソルの最大固有値 λ_1 を計算した(図1)。さらに輪の中に他の輪が入り込んでいる対の個数を調べた(図2)。

図1 系の配向秩序の温度変化

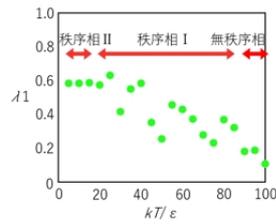


図2 輪の中に他の輪が入り込んでいる対の個数の温度変化(系の分子数は100)

