

やわらかく小さなシステムの構造変化と非平衡ダイナミクス

東京大学大学院理学系研究科・教授 佐野 雅己

成果概要

コロイドの温度勾配下における熱泳動現象が溶液に高分子を加えることで自在に制御でき、その効果が非平衡枯渇力という新しいメカニズムによることを解明した。また、非平衡相転移の一つである Directed Percolation の包括的な実験検証に始めて成功した。さらに、Wet Granular 系における新規の界面不安定現象を見出した。

1. 非平衡枯渇効果の発見とコロイド粒子の新しいマイクロマニピュレーション法

温度勾配下における物質の輸送は熱泳動現象またはソーレ効果として古くから知られているが、一般に温度勾配による輸送の向き（熱拡散係数の符号）やその強度を理論的に予測することは難しい。我々は、コロイド粒子の熱泳動現象に関して、溶液中に高分子（PEG）を添加することにより、熱拡散の強さを表すソーレ係数（ S_T^{eff} ）の大きさが加えた PEG の濃度に比例して変化すること、さらには本来、 $S_T^{eff} > 0$ であり低温側に泳動する物質でも PEG 濃度の増加により符号を変え、 $S_T^{eff} < 0$ となり高温側へと輸送されることを見出した。このことは、レーザー等で局所的に加熱することによりコロイド粒子をレーザーの焦点に集束可能であることを意味し、レーザーピンセットなどでは捕捉しにくい物体も捕捉、操作できる可能性を示唆している。実際に我々は、種々のビーズや DNA 分子、細胞などがこの手法で捕捉、操作できることを示した。今年度はこの現象のメカニズムを明らかにするため、実効的ソーレ係数のコロイド粒径に対する依存性を調べ、それが粒径に比例することを見出した。

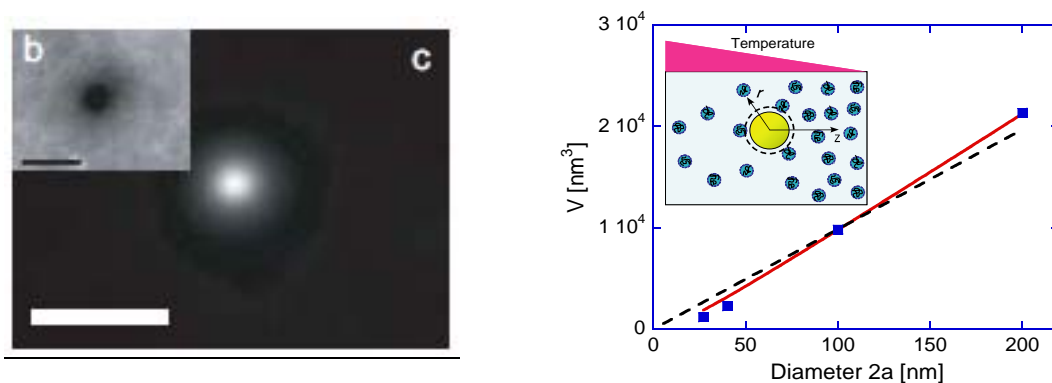


図 1 (左)レーザーによる蛍光コロイド粒子の捕捉(右)実効的ソーレ係数の粒径依存性

また、理論解析により粒子の界面近傍における高分子の枯渇効果（エントロピー効果）を解析した。温度勾配によって生じた高分子の濃度勾配によって生じる正味の枯渇力を計算したところ、浸透圧効果、平衡状態の枯渇効果は全て液体の静水圧によって相殺し、結果として枯渇力の接線成分が流体の運動を引き起こして粘性応力と釣り合うことによって粒子に運動量を与えるという描像を得た。この理論では、実効的なソーレ係数は、高分子濃度とコロイド粒径に比例することが導かれ、理論から予測される枯

濁層の厚さも約 5 nm となり、使用した PEG の慣性半径とほぼ一致し、殆どの点で実験結果をうまく説明できることが分かった。

2. 液晶乱流における Directed Percolation 普遍性の初の実験検証

Directed Percolation(DP)は、吸収状態（入ったら 2 度と出られない状態）への相転移であり、詳細釣り合を破ることから非平衡相転移の典型例であるが、これまで理論的、数値的に長い研究の歴史があるものの実験的な検証がないという状態が 30 年近くにわたって続いていた。我々は、液晶電気対流における 2 つの乱流状態の転移が、DP 転移であると考え、徹底的な検証実験を行った。その結果、12 個の臨界指数と 8 個のスケーリング関係式が実験精度の範囲内で全て理論的予測と一致することを実証した。液晶対流における乱流状態は、DSM1 (Dynamic Scattering Mode)と DSM2 と呼ばれる 2 種類があり、後者は前者に比べて位相欠陥である Disclination の密度が高く、その転移は連続転移であることが知られていた。我々は、位相欠陥の密度と相関時間の違いを利用して DSM1 と DSM2 状態の違いを識別し、クラスターサイズ分布や時間分布、相関関数、臨界クエンチ実験、さらには紫外パルスレーザー照射による active 状態の励起を行い、Critical Spreading による動的な臨界指数の測定などにより、包括的に DP 相転移が実在することを実証した。

TABLE II: Summary of the measured critical exponents^a.

Exponent	DSM1-DSM2	DP[25, 26]
density order parameter β	0.59(4)	0.583(3)
correlation length ^b	ν_{\perp} 0.75(6) 0.78(9)	0.733(3)
correlation time	ν_{\parallel} 1.29(11)	1.295(6)
inactive interval in space ^b	μ_{\perp} 1.08(18) 1.19(12)	1.204(2) ^c
inactive interval in time	μ_{\parallel} 1.60(5)	1.5495(10) ^c
density decay	α 0.48(5)	0.4505(10)
local persistence	θ_1 1.55(7)	1.611(7) [51]
ageing in autocorrelator	b 0.9(1)	0.901(2)
	λ_C/z 2.5(3)	2.583(14)
survival probability	δ 0.46(5)	0.4505(10)
cluster volume	θ 0.22(5)	0.2295(10)
cluster mean sqr. radius	ζ 1.15(9)	1.1325(10)

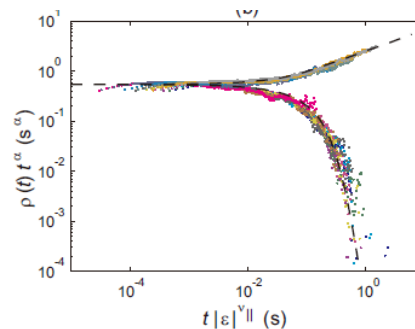


図 2 (左) 実験で得られた臨界指数、(右)臨界クエンチの実験と普遍スケーリング

3. 垂直加振された Wet Granular 系における界面不安定性

ジャミング点近傍のコロイドやコーンスターチ、粉体粒子と液体の混合系 (Wet Granular または Dense Suspension) は、外場や流動場の下で最初 Shear Thinning を起こし、高いシア状態では Shear Thickening を起こすことが知られており、それに対応して様々の不安定現象が観測されることが期待される。我々は、粉体粒子の粒径、液体の粘性、充填率などを変えて加振速度を変化させることにより流体界面に起こる不安定性の全体像を明らかにした。

<参考文献>

- 1) H-R. Jiang, H. Wada, N. Yoshinaga, and M. Sano, Phys. Rev. Lett., Vol. 102, 208301-1 – 208301-4 (2009).
- 2) K. A. Takeuchi, M. Kuroda, H. Chaté, and M. Sano, Phys. Rev. E, Vol. 80, 051116-1 – 051116-12 (2009).
- 3) H. Ebata, S. Tatsumi, and M. Sano, Phys. Rev. E, Vol. 79, 066308-1 – 066308-6 (2009).