

科学研究費助成事業（科学研究費補助金）研究成果報告書

平成24年5月31日現在

機関番号：24403

研究種目：基盤研究(C)

研究期間：2009～2011

課題番号：21540324

研究課題名（和文）アルファヘリックス分子鎖における非平衡下での振動励起伝播と超高速 X 線分光の理論

研究課題名（英文）Nonequilibrium transport of vibrational excitation in alpha-helix molecular chain and ultrafast X-ray spectroscopy

研究代表者

田中 智 (TANAKA SATOSHI)

大阪府立大学 大学院理学系研究科・教授

研究者番号：80236588

研究成果の概要（和文）：アルファヘリックスに代表される 1 次元分子鎖が両端で異なる温度の熱浴と相互作用している非平衡定常状況下において、分子鎖を通して流れるエネルギー流、振動励起子の非平衡流れを微視的力学原理に基づき明らかにした。非平衡定常状態を全系のリウビル演算子に対するゼロ固有状態として求めることに成功し、現象論的なランダウアー公式を微視的力学原理に基づき導き出した。更にその適用限界を明らかにすることに成功した。

研究成果の概要（英文）：We have investigated a nonequilibrium transport in a molecular chain, such as alpha-helix, which is interacting with different thermal baths at the both molecular ends. An energy flow and vibrational exciton current under nonequilibrium steady state are obtained based on the microscopic dynamics as a zero eigenstate of a Liouville operator. The phenomenological Landauer formula has been derived from our theory and the limit of the phenomenological formula has been revealed.

交付決定額

(金額単位：円)

| | 直接経費 | 間接経費 | 合計 |
|---------|-----------|-----------|-----------|
| 2009 年度 | 1,500,000 | 450,000 | 1,950,000 |
| 2010 年度 | 1,000,000 | 300,000 | 1,300,000 |
| 2011 年度 | 1,000,000 | 300,000 | 1,300,000 |
| 年度 | | | |
| 年度 | | | |
| 総計 | 3,500,000 | 1,050,000 | 4,550,000 |

研究分野：数物系科学

科研費の分科・細目：物理学・物性 I

キーワード：光物性、非平衡統計力学

1. 研究開始当初の背景

アルファヘリックスに代表される 1 次元分子鎖を通じた振動励起伝播過程を明らかにすることは、生体機能の本質を理解する上で重要である。特に、非平衡状況下で 1 次元分子鎖を通してどのようにエネルギーや物質の流れが生じるかを明らかにすることが重要である。しかしながら、これを明らかにするためには分子鎖および多自由度環境系との相互作用を微視的力学原理に基づいて

解析しなければならない。研究開始時点において、このような理論研究は存在していなかった。

2. 研究の目的

微視的力学原理に基づき 1 次元分子鎖中での励起エネルギー伝播過程を明らかにし、1 次元分子鎖内での励起子伝播過程を観測するための分光手段を理論的に提案することを目的とした。そのために以下の 3 点につ

いて明らかにすることを目的とした。

(1)微視的力学原理に基づいて、異なる熱浴と相互作用する1次元分子鎖の非平衡定常状態を求めること。

(2)非平衡定常状態におけるエネルギー流、粒子流を明らかにし、非平衡定常状態における輸送過程を明らかにすること。

(3)非平衡定常状態におけるエネルギー流、粒子流を観測するための非線形X線分光理論を構築すること。

3. 研究の方法

上記目的を達成するために用いた基礎理論は、イリヤ・プリゴジンと本研究の研究協力者であるテキサス大学オースティン校のトミオ・ペトロスキー博士が構築した非平衡統計力学におけるリウビル演算子の複素固有値問題の理論形式である。この理論によれば、連続スペクトルを有する熱力学系では、共鳴特異性によって全系のリウビル演算子の固有値が複素固有値をとることが示されている。これによって、系全体が非平衡状況下においても、一定の定常状態に緩和していくことが保証される。この非平衡定常状態は、リウビル演算子のゼロ固有状態として現わされる。この理論を、本研究で扱う分子鎖と異なる熱浴の結合系に対して適用し、非平衡定常状態をリウビル演算子のゼロ固有状態として導き出すとともに、エネルギー流、粒子流などの物理量を、定常状態に対するオブザーバブルの期待値として求める。また、非線形応答理論については、この定常状態における粒子の流れに関する多時間相関関数を用いて記述する。

4. 研究成果

(1)両端において異なる温度の熱浴と結合する分子鎖中の1つの励起子について、量子リウビル方程式に射影演算子法を適用することにより、1励起子分布関数に対する運動論的方程式を得た。この運動論的方程式の時間発展を司る衝突演算子の複素固有値問題を解き、非平衡状況下における衝突不変量を求めた。この衝突不変量に、相関を生成する演算子を作用させることにより、励起子と熱浴、また励起子状態間の相関を含む形式で、リウビル演算子のゼロ固有状態として非平衡定常状態の表現を得た。これにより、微視的な力学原理に基づき、非平衡定常状態の具体的な表現を得ることに成功した。また、分子鎖内で励起子間相互作用がある場合についても、非平衡定常状態の具体的な表現を得ることができることを示した。

(2)この非平衡定常状態における分子鎖のエネルギーの時間変化から、非平衡定常状態におけるエネルギー流を導き出した。得られたエネルギー流の表現は、一般に熱浴の平均温度が分子鎖内の励起子エネルギーと同程度もしくは低く、両者の温度差が大きい場合、現象論的なランダウー公式に還元できないことを示した。これは、この場合には、透過関数が分子鎖準位の構造に強く依存し、温度変化に対して状態分布が著しく変化することによるものであることを示した。

さらに、この非平衡エネルギー流は、分子鎖内での粒子伝導によって担われていることを励起子流の解析を行うことで明らかにした。これらの非平衡定常状態での流れは、分子状態および熱浴の状態との相関に対応していることを明らかにした。すなわち、エネルギー流は、励起子と熱浴の間の1次の相関で表される一方、励起子流は2次の相関で表され、励起子流はランダウー公式の形式では表現することができないことを明らかにした。

さらに、分子鎖内の非平衡定常状態での輸送過程に対する粒子間相互作用の効果を明らかにした。分子鎖中に複数の励起子が存在する系に対し、非平衡定常流に対する斥力的、引力的励起子間相互作用の効果を調べた。粒子間相互作用の結果、熱整流効果が逆転すること、また、斥力相互作用が却って非平衡定常流を促進することを見出した。

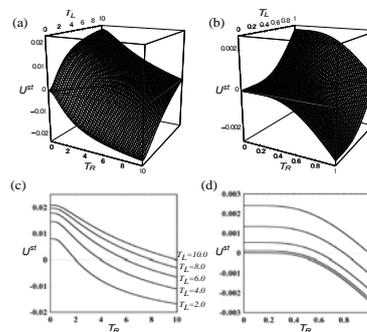


図1.分子鎖を流れる非平衡定常エネルギー流

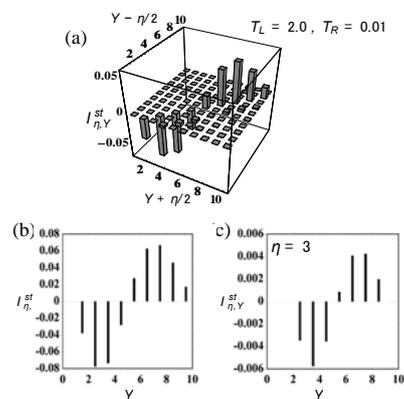


図2.分子鎖を流れる非平衡定常励起子流

(3)本研究で用いたリウビル演算子の複素固有値問題の解として、非平衡定常状態を求める方法では、良く用いられている現象論的なマスター方程式の方法と異なり、熱浴系まで含めた全系のリウビル演算子の固有状態として非平衡定常状態を記述するため、分子鎖の状態だけでなく、分子鎖と熱浴間の状態相関、あるいは、空間的に離れた熱浴間の長距離相関などを明らかにできるという利点がある。分子鎖内では励起子がバリスティックに伝導し、熱平衡状態においても量子相関による長距離相関が存在するが、非平衡定常状態においては、これに加えて散逸を引き起こす共鳴特異性による長距離相関の効果が現れることを示した。この長距離相関は、非平衡状態における散逸構造の出現機構と関連したものであることが明らかになりつつある。

これらの空間的相関は、分子鎖の長さに相当する空間分解能を持つ、X線の非線形応答により観測できると考えられ、非平衡定常状態における非線形応答理論を多時間相関関数の方法を用いて、構築中である。

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5件)

- ① S. Tanaka, K. Kanki, T. Petrosky, Nonequilibrium transport on a quantum molecular chain in terms of the complex Liouvillian spectrum, 査読有, Physical Review E 83, 2011, 051118--051118-17
DOI: 10.1103/PhysRevE.83.051118
- ② B. A. Tay, K. Kanki, S. Tanaka, T. Petrosky, Band structure and accumulation point in the spectrum of quantum collision operator in a one-dimensional molecular chain, 査読有, Journal of Mathematical Physics 52, 2011, 023302-1--023302-19
DOI: 10.1063/1.3553201
- ③ K. Kanki, S. Tanaka, B. A. Tay, T. Petrosky, Accumulation Point in the Spectrum of the Collision Operator for a One-Dimensional Polaron System, 査読有, Progress of Theoretical Physics Supplement 184, 2010, 523-532
<http://ptp.ipap.jp/cgi-bin/link?PTPS/184/523/>
- ④ T. Petrosky, N. Hatano, K. Kanki, S. Tanaka, Hofstadter's Butterfly Type of Singular Spectrum of a Collision Operator for a Model of Molecular Chains, 査読有,

Progress of Theoretical Physics Supplement 184, 2010, 457-465

<http://ptp.ipap.jp/cgi-bin/link?PTPS/184/457/>

- ⑤ S. Tanaka, K. Kanki, T. Petrosky, Emergence of quantum hydrodynamic sound mode of a quantum Brownian particle in a one-dimensional molecular chain, 査読有, Physical Review B 80, 2009 094304-1--094304-20
DOI:10.1103/PhysRevB.80.094304

[学会発表] (計19件)

- ① 山田修久、周期外場による不可逆崩壊過程のコヒーレント制御(2)固有関数展開による時間発展、日本物理学会第67回年次大会、2012年3月24日、関西学院大学
- ② 神吉一樹、1次元ポーラロン系における衝突演算子の特異なスペクトルと輸送係数、日本物理学会第67回年次大会、2012年3月25日、関西学院大学
- ③ 田中智、非平衡定常状態における1次元分子鎖の非線形光学応答、日本物理学会第67回年次大会、2012年3月27日、関西学院大学
- ④ 橋本一成、1次元量子ローレンツ気体における非流体力学的領域での波束のダイナミクス、日本物理学会第67回年次大会、2012年3月27日、関西学院大学
- ⑤ 橋本一成、1次元量子ローレンツ気体におけるリウヴィル演算子の複素固有値問題の非流体力学的状況における解、日本物理学会2011年秋季大会、2011年9月22日、富山大学
- ⑥ 山田修久、周期外場による不可逆崩壊過程のコヒーレント制御、日本物理学会2011年秋季大会、2011年9月23日、富山大学
- ⑦ 橋本一成、Complex Eigenvalue Problem of Liouvillian for Weakly Coupled One-dimensional Quantum Lorentz Gas, The 11th Tamura Memorial Symposium, 2011年12月3日、大阪府立大学
- ⑧ 山田修久、Complex Eigenvalue Problem of Floquet Hamiltonian of Driven Friedrichs Model, The 11th Tamura Memorial Symposium, 2011年12月3日、大阪府立大学
- ⑨ 田中智、Nonquilibrium transport of one-dimensional molecular chain, The 11th Tamura Memorial Symposium, 2011年12月4日、大阪府立大学
- ⑩ 橋本一成、1次元量子ローレンツ気体におけるリウヴィル演算子の複素固有値問題、日本物理学会第66回年次大

- 会、2011年3月26日、新潟大学
- ⑪ 山田修久、周期外場によって駆動される共鳴状態の複素固有値、日本物理学会 第66回年次大会、2011年3月28日、新潟大学
 - ⑫ 巽良輔、一次元分子鎖内の非平衡輸送過程：粒子間相互作用の効果、日本物理学会 第66回年次大会、2011年3月28日、新潟大学
 - ⑬ S. Tanaka, Nonequilibrium Transport of a Quantum Particle in One-Dimensional Molecular Chain, The 13th Slovenia-Japan seminar on nonlinear science and Waseda AICS symposium on nonlinear and nonequilibrium phenomena in complex systems, 2010年11月4日、早稲田大学
 - ⑭ 巽良輔、リウビル演算子の複素固有値問題から見た1次元分子鎖の非平衡輸送と共鳴輻射場による制御、日本物理学会 2010年秋季大会、2010年9月24日、大阪府立大学
 - ⑮ 神吉一樹、1次元ポーラロン系における衝突演算子の固有値の集積点と緩和現象に及ぼす効果、日本物理学会 2010年秋季大会、2010年9月24日、大阪府立大学
 - ⑯ T. Petrosky, タンパク質分子鎖における不可逆衝突演算子のバルタン星人型異常スペクトル、日本物理学会 2009年秋季大会、2009年9月25日、熊本大学
 - ⑰ 神吉一樹、一次元電子格子系におけるリウビル演算子の複素スペクトルに現れるバンド構造、日本物理学会 2009年秋季大会、2009年9月25日、熊本大学
 - ⑱ 田中智、1次元タンパク質分子鎖内の振動励起伝播を記述する不可逆衝突演算子の異常スペクトルに現れたホフスタッダのバタフライ様構造、日本物理学会 2009年秋季大会、2009年9月25日、熊本大学
 - ⑲ S. Tanaka, Theory of non-equilibrium relaxation process of a nanoscale quantum system interacting with different thermal reservoirs, 湯川国際セミナー『非平衡物理のフロンティア・基礎理論、ガラスと粉体物理および計算物理』、2009年8月15日、京都大学

6. 研究組織

(1) 研究代表者

田中 智 (TANAKA SATOSHI)
大阪府立大学大学院理学系研究科・教授
研究者番号：80236588

(2) 研究分担者

神吉 一樹 (KANKI KAZUKI)
大阪府立大学大学院理学系研究科・助教
研究者番号：10264821

(3) 研究協力者

トミオ・ペトロスキー (TOMIO PETROSKY)
テキサス大学オースチン校複雑量子系研究所・上級研究員

[その他]

ホームページ等：特に無し