

科学研究費助成事業（特別推進研究）公表用資料
〔平成28年度研究進捗評価用〕

平成25年度採択分
平成28年 5月 30日現在

研究課題名（和文） **時空階層性の物理学：単純液体から
ソフトマターまで**
研究課題名（英文） **Physics of structural and dynamical
hierarchies: from simple liquids to soft matter**
課題番号：25000002
研究代表者
田中 肇 (TANAKA HAJIME)
東京大学・生産技術研究所・教授



研究の概要：液体状態は、気体や固体（結晶）状態とならび、我々人類にとって最も重要な物質の存在様式である。しかしながら、液体状態、そしてそれが凍結した状態であるガラス状態の物理的理解は、気体や結晶状態に比べて著しく遅れているのが現状である。本研究では、液体にまつわる様々な未解明問題、ソフトマターにおける液体の役割を解明し、時空階層性という観点から、単純液体・ソフトマターの物理学に新しい展開をもたらすことを目指す。

研究分野：化学物理・生物物理

キーワード：ガラス転移、液体・液体転移、水の異常、結晶化、ソフトマター

1. 研究開始当初の背景

(1) 液体状態は、乱雑な構造、多体相互作用、多様な自由度間の結合のため、物理的な取り扱いが極めて困難であり、その基本的理解は、気体・結晶状態に比べ大きく遅れていた。
(2) また、ソフトマターの動的挙動が、流体の存在によりどのような影響を受けるかという問題は、「生体における水の動的側面での役割」という根源的な問題を明らかにする上でも避けては通れない基本問題である。しかしながら、階層間の動的な結合に起因した困難さの故、未解明のままであった。

2. 研究の目的

本研究では、単純液体ならびにソフトマターを対象として、液体の基本的性質にかかわる、以下に示す6つの未解明問題について、これらの系が共に内包する時空階層性に焦点を当て研究を行う：(1) 水型液体の熱力学・運動学的異常の解明、(2) 単一成分液体の液体・液体転移現象の起源解明とその応用、(3) ガラス転移現象の解明、(4) 液体の階層性と結晶化の素過程（結晶核形成）の関係の解明、(5) 液体・ガラス状物質の非線形流動・破壊現象の解明と制御、(6) 液体が流体力学的相互作用を介してソフトマター・生体系の動的挙動に及ぼす影響の解明。これらの研究を通して、現象を支配する統一的な物理描像を描くとともに、単純液体・ソフトマターの物理学に新しい展開をもたらすことを目指す。

3. 研究の方法

理論的研究、分子動力学等の粒子レベルシミュレーション、粗視化モデルを用いた数値的研究、コロイド分散系の一粒子レベル3次元実時間観察、熱・構造・ダイナミクス解析手法などを用いた実験的研究の有機的な連携により、液体、ソフトマターについて、【多体相関】【時空階層性】【動的対称性の破れ】という基本概念を柱とし、新たな物理描像を確立することを目指す。

4. これまでの成果

(1) 水型液体の静的・動的異常性の起源は、長年世界中の研究者が研究してきた、科学における重要未解明問題の一つである。我々は、新たな微視的構造秩序変数を導入することで、水における2つの局所的状態の存在とその揺らぎにより、水の熱力学的・動的異常を統一的に説明できることを明確に示すことに成功した。我々は、この発見により、水の異常性の起源をめぐる長年の論争に決着をつけられるものと考えている。
(2) 熱力学的には準安定であるものの、力学的には安定な新たな結晶相（0型氷と命名）を発見し（図1参照）、その結果、低温での氷の均一核形成は、従来の常識に反し、我々が日常目にするI型の氷が直接形成されるのではなく、上記の準安定な0型氷がまず核形成し、それがI型の氷に変換していくことを発見した。この新たな氷はその構造に五員環を内包し、上記の水の局所秩序構造と構造的整合性を持つことが、核形成障壁を下げる要因であることも明らかとなった。この発見は、水の氷への結晶化に関する従来の常識を覆

すばかりでなく、これまで長年の謎であった氷の均一核形成線の相図上の位置について、明確な説明を与えるものであり、高層大気での氷の形成など、自然現象の理解へ大きく貢献するものと期待される。

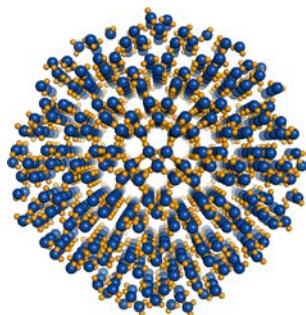


図1：0型氷の構造：酸素原子は青、水素原子は黄色で表されている。

(3) 液体・液体転移の研究において、これを支配する秩序変数は、数分子から形成される局所安定構造の数密度である有力な実験的証拠を発見し、液体・液体転移の秩序変数に初めて微視的に迫ることに成功した。また、14種類の水溶液系において、液体・液体転移現象の存在を確認し、その普遍性を示すとともに、純粋な水に液体・液体転移が存在することが示唆された。

(4) 物質のガラス形成能について、結晶化に対するフラストレーションが過冷却液体の構造化（結晶前駆体形成）を阻害し、それが、液体・結晶界面張力、すなわち、結晶化に対する自由エネルギー障壁の増大をもたらすことを発見した。

(5) アモルファス物質において、弾性率の空間不均一性に、従来知られていなかった長距離相関が存在すること、また、それによりフォノンが過剰に散乱されることを発見した。

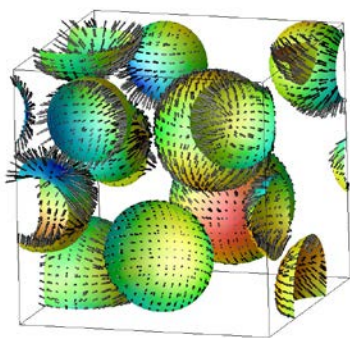


図2：相分離中の液滴の様子：液滴の界面の色は、界面上の濃度差を表す。赤/青色は、それぞれの液滴に対し、高い/低い濃度差を表す。矢印は液滴の界面上の流れ場を示す。

(6) 液体混合系の相分離構造の粗大化は、液滴の乱雑な熱運動による衝突・合体によりもたらされるという常識に反し、実は、液滴

の大きさの乱雑性に起因した化学ポテンシャル勾配による流体運動の駆動により決定論的に起きていることを発見した(図2参照)。(7) 粒子の回転運動により生じた流体の渦場を介した動的な相互作用だけで、結晶・ガラス状態などの様々な物質の状態を実現できることをシミュレーションにより見出した。このような流れ場の自己組織化は、流れだけで実現される点で、通常の自己組織化とはまったく異なり、これまで自己組織化に不可欠と考えられてきた静的な相互作用は、必ずしも必要ないことが明らかになった。

5. 今後の計画

(1) 我々の研究により、水型液体の異常性、液体・液体転移、ガラス転移、液体の結晶化の背景に、構造の局所的な秩序化という共通の物理があることが明らかになってきた。今後は、これらの現象を液体の時空階層性という観点から体系化し、統一的に理解するという当初の目的の達成を目指す。

(2) 破壊現象に代表される非線形流動挙動、液体を介した流体力学的相互作用の影響下でのソフトマター・生体系の動的挙動などを、統一的に理解するには、流体の満たすべき運動量保存則や応力テンソルの時間発展を記述する構成方程式の支配下での系の自己組織化という新しい観点が重要であることを示してきた。今後は、非平衡過程において時間発展の経路を支配する物理的因子を明らかにすることを旨とする。

6. これまでの発表論文等 (受賞等も含む)

- [1] R. Shimizu and H. Tanaka, A novel coarsening mechanism of droplets in immiscible fluid mixtures, *Nature Commun.* 5, 7407 (2015).
- [2] Y. Goto and H. Tanaka, Purely hydrodynamic ordering of rotating disks at a finite Reynolds number, *Nature Commun.* 6, 5994 (2015).
- [3] J. Russo, F. Romano and H. Tanaka, New metastable form of ice and its role in the homogeneous crystallization of water, *Nature Mater.* 13, 733-739 (2014).
- [4] J. Russo and H. Tanaka, Understanding water's anomalies with locally favoured structures, *Nature Commun.* 5, 3556 (2014).
- [5] K. Murata and H. Tanaka, General nature of liquid-liquid transition in aqueous organic solutions, *Nature Commun.* 4, 2844 (2013).

ホームページ等

<http://tanakalab.iis.u-tokyo.ac.jp/>