

自己評価報告書

平成 23 年 4 月 1 日現在

機関番号：82626

研究種目：新学術領域研究

研究期間：2008～2012

課題番号：20111002

研究課題名（和文） 創発化学の自己組織化的デザイン

研究課題名（英文） Self-Organization for Design of Emergent Chemistry

研究代表者

山口 智彦 (YAMAGUCHI TOMOHIKO)

独立行政法人産業技術総合研究所・ナノシステム研究部門・副研究部門長

研究者番号：40357132

研究分野：化学物理

科研費の分科・細目：自己組織化

キーワード：化学物理、自己組織化、ナノ材料、パターン形成、ゆらぎ

1. 研究計画の概要

分子ナノシステムの創発化学における自己組織化の役割を明らかにする。すなわち、分子から分子ナノシステムへの創発と、分子ナノシステムの機能の創発、という2つの大きな学理的課題を体系化するための熱力学的基礎研究を行う。

具体的には、エントロピー生成を基軸に据え、自己組織化を熱力学的立場から一元的に捉える学理の充実を図る。平行して、時空間的ゆらぎの下でのコロイド系の秩序化条件を実験的に探り、熱力学的議論と対照して、数理科学的アプローチの有用性と限界を意識した研究を展開する。

2. 研究の進捗状況

(1)エントロピー生成を基軸に据えた熱力学的学理の充実：本研究者らが開発した **r-GS** モデルをもとに、「系が存在することによる環境への影響」と「環境を介した系自身へのフィードバック」が議論できる階層的な数理モデルを構築した。系の働きかけにより外部環境が揺らぎ、固定境界条件下では得られない特異なパターンが形成する条件のあることが示された。これは不安手定常点まわりのコヒーレンス・レゾナンスによる過渡的な創発現象である可能性が示唆された。パターン形成を非平衡熱力学的視点から定量的に議論するために、エントロピー流およびシステム全体のエントロピー変化という熱力学的指標に着目した。エントロピーの収支バランス（熱力学的視点）に基づいて定量的に議論するための基盤として、平衡状態にある物質ではなく非平衡条件下にある系の状態によ

って定義される新しい化学ポテンシャルの概念を提案した。

(2)コロイド系の秩序：分子からのボトムアップ的な創発現象の例として、フラーレン溶液を基板上で蒸発乾固させたときのパターン形成について検討を行い、高分子を含まない純フラーレン溶液のみからでも大域的な脱ぬれパターンが形成されることを見出した。フラーレン微結晶がラセン状に配列する興味深い現象も見出され、マクロスケール（数百 μm ～ mm ）の巨視的な対数ラセン構造の形成過程をリアルタイムで観測することにも成功した。このメカニズムの解明が進行中である。さらに大きな構造要素を持つ例として板状シリカコロイドやミセル系についても検討を加え、異なる系の創発現象における共通因子の抽出を試みている。

3. 現在までの達成度

②おおむね順調に進展している。

（理由）

エントロピー生成を基軸に据えた熱力学的学理の充実については、新しい化学ポテンシャルの導出により、エントロピーバランスという概念が入れ子になった開放系にも適用可能になり、平衡近傍からの古典熱力学を拡張できる素地ができた。また分子・コロイド系の実験では、フラーレン微結晶の対数ラセン配列のようにユニークな事例が見出され、そのメカニズムについても解析が進んでいる。

さらに学理としては、創発現象の起こる場として「開放的な動的界面」の重要性を指摘することができた。このキーワードはまさに創発化学の「自己組織化的デザイン」の要で

あり、本領域における多数のチームとの交流成果の賜物である。

4. 今後の研究の推進方策

本研究においては、分子・コロイド粒子・ミセル系のように要素のサイズを変化させた場合の実現象としての創発現象と、数理モデルに基づいたエントロピー的考察とのすり合わせを進めてゆく。

領域全体においては、創発現象のエンジンとしての開放的な動的界面の役割をよりわかりやすいメッセージに託し、その重要性を領域内外の関係者と共有してゆく。

5. 代表的な研究成果

(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 Y.-J. Chen, Y. Nagamine, T. Yamaguchi, and K. Yoshikawa, Anomalous roughening of curvature-driven growth with a variable interface window, *Physical Review E*, 査読有, 2010, 021604-1-5.
- ② H. Mahara and T. Yamaguchi, Calculation of Entropy Balance Equation in a Non-equilibrium Reaction-Diffusion system, *Entropy*, 査読有, 12, 2010, 2436-2449.
- ③ H. Mahara and T. Yamaguchi, Entropy balance in distributed reversible Gray_Scott model, *Physica D*, 査読有, 2010, 729-734.
- ④ K. Suzuki, R. A. Jahan, H. Mahara, H. Hashimoto, T. Iwatsubo, S. Nishimura, and T. Yamaguchi, Self-organization of Multilayered Oil Droplet in Water, *Chemistry Letters*, 38, 査読有, 2009, 20-21.
- ⑤ H. Mahara, K. Suzuki, R. A. Jahan, and T. Yamaguchi, Coexisting stable patterns in a reaction-diffusion system with reversible Gray-Scott dynamics, *Physical Review E*, 査読有, 2008, 066210-1-6.

[学会発表] (計 5 件)

- ① T. Yamaguchi and H. Mahara, Reversible Gray-Scott model as a tool of thermodynamic investigation in Non-Equilibrium Chemical Systems, International workshop on Far-From Equilibrium Dynamics, 2011年1月7日, 京都大学.
- ② T. Yamaguchi and H. Mahara, Entropic Viewpoint for Emergence in Chemical Systems, 9th iCeMS Symposium, 2010年12月3日, 京都大学.
- ③ T. Yamaguchi, Emergence in Chemistry: a

Dissipative Process towards Hierarchic Composite Materials, Symposium on New Trends in Science and Technology, Kyungnam Federation of Science and Technology, 2009年11月06日, Inje University (Korea).

④ 山口智彦, 散逸系における時空間階層構造の自己組織化, 化学工学会 第41回秋季大会, 2009年09月18日, 広島大学.

⑤ 山口智彦, 自己組織化と階層, 第33回結晶成長討論会, 2008年09月01日, 仙台,

[図書] (計 1 件)

国武豊喜(監修)、下村正嗣(編集幹事)、山口智彦(編集幹事)、エヌ・ティー・エス、自己組織化ハンドブック、2009年、940頁.