

令和元年6月11日現在

機関番号：13901

研究種目：若手研究(A)

研究期間：2016～2018

課題番号：16H06018

研究課題名(和文)変形可能な超粒子分散系におけるパッシブ・アクティブダイナミクスの統一的研究

研究課題名(英文)Passive and active dynamics in soft deformable particles

研究代表者

川崎 猛史 (Takeshi, Kawasaki)

名古屋大学・理学研究科・助教

研究者番号：10760978

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 7,100,000円

研究成果の概要(和文)：本研究では、柔らかいモデル粒子を用い、エマルションやコロイドなど想定した、熱揺らぎに駆動される「パッシブな粒子」や、細胞など自己駆動する粒子を想定した「アクティブな粒子」の高密度分散系における流動特性や振動特性を明らかにすることを目的として研究を進めた。その結果、パッシブな粒子系においては、複雑な非線形流動現象に対する粒子の柔らかさの重要性を明らかにした。さらには、周期剪断下にある柔らかい粒子を用いることにより新しいタイプの非平衡相転移を発見した。一方、アクティブな粒子系においては、粒子の柔らかさと自己駆動力との線形応答関係を利用することにより、固体の振動特性を抽出する新手法を開発した。

研究成果の学術的意義や社会的意義

高分子、エマルション、コロイド分散系をはじめとするソフトマターは、基礎科学のみならず、食品、医療、化粧品業界等にとっても重要である。従来研究では、熱揺らぎによるブラウン運動や、一様外場中における応答など、個体の自己駆動がない「パッシブな系」が用いられてきた。一方近年、細胞や生物の群れなど、自らエネルギーを生み出し自己駆動する「アクティブな系」も研究対象となっている。その両者において、個体は複雑な内部自由度を有しており、その変形が重要になるが、従来研究は粒子の変形や柔らかさを無視したものが殆どである。本研究では、いくつかの未解明問題における粒子の柔らかさの重要性を明らかにした。

研究成果の概要(英文)：In this study, we use soft model particles to investigate the "passive system," which is driven by thermal fluctuations or external forces such as emulsions and colloids, and "active system" such as cells and biological species which are self-driven systems. The purpose of this study was to clarify the flow characteristics and vibration properties of high-density passive and active particle systems. As a result, we clarify that the softness of the particles is related to the origin of the complex nonlinear flow phenomenon in the passive system. Besides, we find a new type of non-equilibrium phase transition by using soft particles under periodic shear. In the active system, we develop a new method to extract the vibrational properties of solids by using the linear response between the softness of the particles and the self-driving force.

研究分野：ソフトマター

キーワード：レオロジー ジャミング転移 ガラス転移

様式 C - 19、F - 19 - 1、Z - 19、CK - 19 (共通)

1. 研究開始当初の背景

高分子、エマルション、コロイド分散系をはじめとするソフトマターは、基礎科学のみならず、我々の日常生活を支える食品、医療、化粧品業界等にとっても重要である。従来の研究では、熱揺らぎによるブラウン運動や、一様外場中における応答など、個体の自己駆動がない「パッシブな系」において盛んに研究が行われてきた。一方近年、細胞や生物の群れなど、自らエネルギーを生み出し自己駆動する「アクティブな系」が研究対象として注目されるようになってきた。その両者において、個体は複雑な内部自由度を有しており、その変形が重要になることが多い。ところが、多くの従来研究は、粒子の変形や柔らかさを無視したものが殆どである。一方、柔らかい粒子の分散系におけるレオロジー実験結果と剛体球系のモデル計算との不整合が報告されるなど、粒子の柔らかさがマクロな物性に及ぼす影響を明らかにすることはパッシブ、アクティブ両系において喫緊の課題である。

2. 研究の目的

本研究では、柔らかいモデル粒子を用い、エマルションやコロイドなど想定した自己駆動しない「パッシブな系」や、生物や細胞などを想定した自己駆動する「アクティブな系」の高密度分散系における流動特性や振動特性を明らかにすることを目的とする。特にパッシブな系に関しては、ジャミング転移密度近傍において顕著に見られる降伏転移（弾性体から塑性体への遷移）と、粒子軌道の可逆性に関する非平衡相転移との関係について注目する。また、近年注目されているシアシックニングと呼ばれる非線形流動現象を、可能な限り簡単なモデルを用いることで実験結果を再現し、その物理的起源を明らかにする。一方、パッシブな系で用いたモデルに自己駆動力を与えた際の力学応答から、パッシブな系とアクティブな系の振動特性や流動特性に関する類似点および相違点を明らかにすることを目的とする。

3. 研究の方法

本研究開始当初は、小粒子を数珠上に並べ柔らかい粒子（超粒子）を構成し、このような粒子の分散系（サスペンション）系におけるレオロジー計算を行った。しかし流動特性においては、表面の変形より、等方ポテンシャルで表される中心力が支配的であることが明らかとなったため、本研究成果は主に、粒子表面の変形は無視した、柔らかい等方ポテンシャルを用いた、粒子運動は分子動力学法を用い数値的に計算した。

4. 研究成果

(1) コロイド分散系の不連続シアシックニングの機構解明：
水などの単純な流体においては、剪断流の速さ（剪断率）に対して、粘性率が一定となるニュートンの粘性法則が成立する。ところが、コロイド粒子などが溶媒中に分散したサスペンション系における流動曲線（粘性率の剪断率依存性）は、ニュートンの粘性法則から大きく外れる非常に複雑な振る舞いをみせる（この様な流体を非ニュートン流体という）。その中で、粘性率が剪断率と共に減少するシアシックニングは、流動場による粒子構造の破壊と関係しており比較的理理解が進んでいる。ところが、粘性率が剪断率と共に上昇するシアシックニングの理解は発展途上である。近年、シアシックニングを説明するモデルが考案されたが、コロイドの粒子間斥力、粒子間摩擦力、熱揺動力、流体力学的相互作用、電気的相互作用など、扱われる力が多岐にわたり、現象の本質を理解するのが難しい。そこで我々は、従来研究に比して極めて簡単な動力学モデル（粒子間相互作用、粒子間摩擦力、熱揺動力のみを考慮）を提案し、その数値計算をもって実験で見られる多くの流動曲線を半定量的に再現することに成功した。このことから、実際の実験系において、シアシックニングが、粒子に働く熱揺動力、粒子のやわらかさ、粒子間摩擦力との競合によって引き起こされることを明確化した。さらに、この単純なモデルが、実験におけるシアシックニングやニュートン流体領域を含む広い範囲の流動特性をカバーすることを見出した。[Phys. Rev. E 誌に掲載：発表論文]。

(2) 高密度分散系の粒子軌道に関する新しいタイプの非平衡相転移の発見：
周期剪断下にある粒子系に対する剪断振幅を増大させると、粒子軌道は可逆軌道から不可逆軌道へと変化する。特に希薄な系の場合、不可逆軌道を示す粒子数は剪断振幅に対して臨界点を境に連続的に増大する非平衡相転移（吸収状態転移の一種）が発見されている。ところが、高密度系での振舞いは余り理解されていなかった。我々は高密度系での上記問題を分子動力学法により取り組んだ結果、降伏現象を起源とする、不連続型の吸収状態転移を発見した[Phys. Rev. E 誌に掲載：発表論文]。

一方、上記の研究を含め現状においては、低密度と高密度の極端な場合においては、詳しく調べられているが、これらの間の広い密度領域における俯瞰的な理解はない。また、先行研究では、準静的過程を前提に議論がなされてきたが、特にジャミング転移点近傍において重要になりうる周期剪断の周波数が粒子軌道に及ぼす影響などについての理解も不十分である。そこで我々は、周期剪断下の2次元コロイド分散系に対して、密度および周期剪断の周波数を広く変えながら網羅的に上記の吸収状態転移について調べた。その結果、密度に応じて様々なタイプ（強い不連続型、弱い不連続型、リエントラント型）の可逆・不可逆粒子軌道転移が、準静的極限を含む広い範囲の有限周波数で周期剪断を与えた際に普遍的に観測されることを見出し

た．特に，これら様々なタイプの可逆・不可逆粒子軌道転移と，準静的極限で得られる粒子の配位数といった系の静的な性質や，各粒子軌道の形状（point reversible 軌道や loop reversible 軌道）といった動的な性質との相関が明らかとなった．[学会発表 など多数]

(3) 高密度粒子分散系の振動解析に関する新手法の開発：

アモルファス状態にある高密度粒子系の低周波振動特性は，ガラス転移やジャミング転移の物理の根幹と深く関係している．しかし，基本的な解析手法である基準振動解析などの計算コストの問題があり，理解が不十分である．一方，我々は，粒子直径が周期的に変動させた高密度粒子系における弾性応答について調べた結果，粒径振動の周波数に応じて，得られる各粒子の変位場の応答が，基準振動解析で得られる振動モードの固有ベクトルと高い相関をもつことが分かった．今回の測定は，通常分子動力学法をごく短時間解くだけで済むため計算コストが抑えられる．このため，非常に大きな系での振動特性の計算が可能となり，アモルファス系特有の低周波数領域における局在モード等の理解に繋がることが期待される [Soft Matter 誌に掲載：発表論文]．

(4) 高密度アクティブマターにおけるガラス転移 - 熱平衡系のガラス転移との類似点と相違点の解明：

近年，アモルファス系に関する物性物理学は，自己駆動する細胞など，極めて非平衡度の高い生物系などに対しても拡張されている（高密度アクティブマターと呼ぶ）．アクティブマターとは，自己駆動する細胞など，メソスケールの分子凝集体から構成される非平衡ソフトマターの一例であり，特に，高密度状態においてはガラス的になる．一方，アクティブマターの運動自体は非常に協働的であり，これらのレオロジーも中心的な問題である．特に近年，生体分子が高密度に混みあった，生きた細胞内部のミクロな環境を計測する実験技術が発展し，生きた細胞と死んだ細胞でその力学応答やそれに起因するガラス的性質が大きく異なることが報告されている．この様に，熱平衡系のガラス転移とアクティブマターのそれとの類似点や相違点を徹底的に調べることは極めて重要であり，凝縮系における非平衡物性と機能に関する新しい学理の構築，さらには生体分子内の力学測定など分子科学の先端計測の牽引が期待される．本研究では，熱平衡系における Langevin 方程式における，白色ノイズである熱揺動力を有色ノイズ（記憶時間が有限）に変化させた粒子の低温かつ高密度分散系におけるガラス的挙動を調べた．すると記憶時間が極めて長い系においては，低温系において共同的な集団運動が誘起され，これが系の緩和を引き起こすことが分かった．このことは，極低温状態においてもガラス転移が起こらないことを示唆するものであり，アクティブな系におけるガラス転移の有無については今後の研究で詳しく調べていく予定である．なお本研究に関しては，2 件の学会発表[] を行っており，論文は準備中である．

5．主な発表論文等

[雑誌論文] (計 12 件)

Takeshi Kawasaki and Kang Kim,
Classification of mobile- and immobile-molecule timescales for the Stokes-Einstein and Stokes-Einstein-Debye relations in supercooled water,
Journal of Statistical Mechanics: Theory and Experiment (in press) (査読有り)

Takeshi Kawasaki and Kang Kim,
Spurious violation of the Stokes-Einstein-Debye relation in supercooled water,
Scientific Reports 9, 8118 (2019). (査読有り)

Akira Onuki and Takeshi Kawasaki (責任著者),
Theory of applying shear strains from boundary walls: linear response in glasses,
The Journal of Chemical Physics 150, 124504 (2019). (査読有り)

Ryoji Miyazaki, Takeshi Kawasaki, and Kunimasa Miyazaki,
Slow dynamics coupled with cluster formation in ultrasoft-potential glasses,
The Journal of Chemical Physics 150, 074503 (2019). (査読有り)

Keisuke Fujii, Takeshi Kawasaki, Yuki Inaba, and Yoshinobu Kawahara,
Prediction and classification in equation-free collective motion dynamics,
PLOS Computational Biology 14, e1006545 (2018). (査読有り)

Takeshi Kawasaki(責任著者) and Ludovic Berthier,

Discontinuous shear - thickening in Brownian suspensions,
Physical Review E 98, 012609 (2018). (査読有り)

Hayato Shiba, Peter Keim, Takeshi Kawasaki,
Isolating long-wavelength fluctuation from structural relaxation in two-dimensional glass:
Cage - relative displacement,
Journal of Physics: Condensed Matter 30, 094004 (2018) . (査読有り)

Takeshi Kawasaki (責任著者) and Kang Kim,
Identifying timescales that support violation or preservation of Stokes-Einstein relation in
supercooled water,
Science Advances, 3 e1700399, (2017) . (査読有り)

Elsen Tjhung and Takeshi Kawasaki (責任著者),
Excitation of vibrational soft modes in disordered systems using active oscillation,
Soft Matter 13, 111 -118 (2017) . (査読有り)

Hayato Shiba, Yasunori Yamada, Takeshi Kawasaki, and Kang Kim,
Unveiling Dimensionality Dependence of Glassy Dynamics: 2D Infinite Fluctuation Eclipses
Inherent Structural Relaxation,
Physical Review Letters 117, 245701 (2016) . (査読有り)

Ryoji Miyazaki, Takeshi Kawasaki, and Kunimasa Miyazaki,
Cluster Glass Transition of Ultrasoft -Potential Fluids at High Density,
Physical Review Letters 117, 165701 (2016) . (査読有り)

Takeshi Kawasaki and Ludovic Berthier,
Macroscopic yielding in jammed solids is accompanied by a non-equilibrium first-order transition
in particle trajectories,
Physical Review E 94, 022615 (2016) . (査読有り)

[学会発表](計 18 件)

(主なものを抜粋)

小野嘉己, 川崎猛史, 宮崎州正

"アクティブマターのガラス転移と動的不均一性"

(日本物理学会 2019 年度年会, 16pG213-7, 2019 年 3 月 16 日 九州大学).

Takeshi Kawasaki

A non-equilibrium phase transition in particle trajectories near the jamming transition

[招待有り]

Soft Matter Physics: from the perspective of the essential heterogeneity

川崎 猛史

第 13 回凝縮系科学賞受賞講演: 過冷却液体の構造とダイナミクスに関する理論的研究

[招待有り]

第 12 回領域横断研究会

川崎 猛史, 永澤謙太郎, 宮崎州正

ジャミング転移点近傍における粒子軌道の可逆性に関する非平衡相転移

第 32 回分子シミュレーション討論会

Takeshi Kawasaki

A non-equilibrium phase transition in particle trajectories near the jamming transition

[招待有り]

International mini-workshop on Nonequilibrium transport and phase transition in novel materials

2018 年 11 月 26 日

Takeshi Kawasaki

The reversible-irreversible transitions in particle trajectories near the jamming transition ,
Physics of Jammed Matter
2018 年 10 月 27 日

川崎猛史, Ludovic Berthier,
ブラウン粒子の不連続シアシックニング
日本物理学会 2018 年度秋季大会, 10pM102-10 2018 年 9 月 9 日

小野嘉己, 川崎猛史, 宮崎州正
"ガラス転移点近傍におけるアクティブマターの動的相関長"
(日本物理学会 2018 年度秋季大会, 9aM102-3, 2018 年 9 月 9 日 同志社大学).

Takeshi Kawasaki,
Classification of the reversible-irreversible transitions in particle trajectories near the jamming transition
Rheology of disordered particles – suspensions, glassy and granular materials: part II 2018
年 6 月 28 日

Takeshi Kawasaki,
Discontinuous shear-thickening in Brownian suspensions [招待有り]
Rheology of disordered particles – suspensions, glassy and granular materials: part II 2018
年 6 月 19 日

Takeshi Kawasaki and Kang Kim,
Identification of the time-scales that support violation or preservation of Stokes-Einstein
relation in supercooled water
Unifying Concepts in Glass Physics VII 2018 年 6 月 15 日

Takeshi Kawasaki and Kang Kim,
Identification of the time-scales that support violation or preservation of Stokes-Einstein
relation in supercooled water
Designer soft matter 2018 2018 年 6 月 6 日

Takeshi Kawasaki,
Identification of the time-scales that support violation or preservation of Stokes-Einstein
relation in supercooled water
Joint EMLG/JMLG Meeting 2017 2017 年 9 月 11 日

永澤謙太郎, 宮崎州正, 川崎猛史
ジャミング転移点近傍にある周期剪断下高密度分散系における粒子軌道の可逆・不可逆転移
Reversible-irreversible transitions in particle trajectories in oscillatory sheared systems near
the jamming transition"
日本物理学会 2017 年度年次大会 岩手大学
発表者

川崎 猛史
周期剪断を与えた高密度分散系の粒子軌道に関する可逆・不可逆非平衡相転移" [招待有り]
特別講演会「粒子系の構造形成と不均一変形のダイナミクス 2017 年 1 月 23 日

Takeshi Kawasaki,
Macroscopic yielding in jammed solids is accompanied by a nonequilibrium first-order transition in
particle trajectories [招待有り]
Nara Workshop on Nonlinear Dynamics 2016 Dec. under HAS-JSPS Joint Research Project
2016 年 12 月 8 日

川崎 猛史
周期振動下高密度分散系の粒子軌道に関する可逆・不可逆不連続転移
第 30 回分子シミュレーション討論会 2016 年 12 月 2 日

Takeshi Kawasaki
Macroscopic yielding in jammed solids is accompanied by a non-equilibrium first-order transition in
particle trajectories
Avalanches, plasticity, and nonlinear response in nonequilibrium solids 2016 年 3 月 7 日

〔図書〕(計 0 件)

〔産業財産権〕

出願状況(計 0 件)

取得状況(計 0 件)

〔その他〕

ホームページ等

<https://researchmap.jp/7000019476/?lang=japanese>

6. 研究組織

(1) 研究分担者

なし

(2) 研究協力者

研究協力者氏名：金 鋼 氏

ローマ字氏名： Kang Kim

研究協力者氏名：芝 隼人 氏

ローマ字氏名： Hayato Shiba

研究協力者氏名：ルドヴィック ベルティエ氏

ローマ字氏名： Ludovic Berthier

研究協力者氏名：宮崎 州正 氏

ローマ字氏名： Kunimasa Miyazaki

研究協力者氏名：小貫 明 氏

ローマ字氏名： Akira Onuki

科研費による研究は、研究者の自覚と責任において実施するものです。そのため、研究の実施や研究成果の公表等については、国の要請等に基づくものではなく、その研究成果に関する見解や責任は、研究者個人に帰属されます。