

令和元年5月28日現在

機関番号：11301

研究種目：挑戦的萌芽研究

研究期間：2016～2018

課題番号：16K13844

研究課題名（和文）非平衡現象の変分原理の定式化と応用

研究課題名（英文）Formulation and application of variational approaches to non-equilibrium phenomena

研究代表者

川勝 年洋 (KAWAKATSU, toshihiro)

東北大学・理学研究科・教授

研究者番号：20214596

交付決定額（研究期間全体）：（直接経費） 2,700,000円

研究成果の概要（和文）：非平衡条件下でのソフトマターの動力学を、自由エネルギーと散逸関数を用いた変分原理の形式で定式化することで、非平衡状態の安定性を議論した。具体的な例として、1) 流動場中での生体膜の運動様式、2) 小孔を透過する生体膜の運動、3) ブロック共重合体のメソフェーズの流動誘起による構造変化、4) グラフト鎖で覆われた固体壁面間の摩擦と潤滑現象の4つの問題を解析し、それぞれの現象の運動様式と定常状態を議論した。

研究成果の学術的意義や社会的意義

非平衡状態の安定性についての定量的な評価基準は、まだはっきりと確立されていません。その候補となりえるのが、散逸関数に基づく変分原理です。特にソフトマターのような複雑な内部自由度を持つ系では、通常の単純な流体力学の定式化ができないため、変分原理を用いた定式化が重要になります。本研究では、代表的なソフトマターである生体膜系、高分子メソフェーズ系を例にとり、その重要性を示しました。

研究成果の概要（英文）：We discuss dynamics of soft matter under nonequilibrium state by utilizing variational principle on free energy and dissipation functional. Examples are taken from the following phenomena: 1) dynamics of vesicles in flow field, 2) translocation of a vesicle through a small pore, 3) structural transition of microphase separation of block copolymer, and 4) lubrication of a pair of solid walls covered by grafted polymers. We discussed the dynamics and steady states of these systems.

研究分野：ソフトマター物理学

キーワード：変分原理 非平衡現象 ソフトマター 散逸関数

1. 研究開始当初の背景

近年、ソフトマター（複雑液体）の構造相転移や流動特性に関して、ソフトマターの有する階層構造に着目したマルチスケールモデリングの研究は非常に盛んであるが、これらの研究は「複雑液体の各階層をどのようにつなぐか？」という技術的な側面にばかり注目が集まりすぎており、多階層構造それ自身を積極的に利用して、「全体をひとつのシステムと見ることによってマクロな現象を解明する」というマルチスケールモデルの本来の目的には到達していない。本研究課題では、非平衡条件下に置かれたソフトマターの構造相転移現象を、自由エネルギーと散逸関数を用いた変分原理の形式で定式化することで、非平衡状態の安定性を定量的に議論することを目指している。

2. 研究の目的

非平衡条件下でのソフトマターの動力学を、自由エネルギーと散逸関数を用いた変分原理の形式で定式化することで、非平衡状態の安定性を議論した。具体的な例として、(1) 流動場中での生体膜の運動様式、(2) 小孔を透過する生体膜の運動、(3) ブロック共重合体のメソフェーズの流動誘起による構造変化、(4) グラフト鎖で覆われた固体壁面間の摩擦と潤滑現象(ルブリケーション) の4つの問題を解析し、それぞれの現象の運動様式と定常状態を議論した。

3. 研究の方法

(1) 流動場中での生体膜の運動に関しては、流動場はストークス近似されたナビエ・ストークス方程式で表現し、一方の生体膜はフェーズフィールド法を用いて表現し、両者のカップリングについては膜の曲率の2次オーダーまで理論に取り入れた摂動モデルを構築し、オンサーガーの変分原理を用いて運動方程式を導出した。流動としては、ポアズイユ流を考え、流動場と膜の運動の連立方程式を有限差分法で解いた。

(2) 固体壁の小孔を透過する膜に対してオンサーガー散逸関数を定義して、それを用いて膜の運動方程式を求め、数値シミュレーションにより、自由エネルギーおよび散逸関数の時間変化をトレースした。

(3) 高分子系における非平衡定常系の例として、ブロック共重合体のマイクロ相分離構造のレオロジーを考え、レプテイション理論と自己無撞着場理論とを結合させた高分子粘弾性理論を用いて定式化した。

(4) グラフト鎖で覆われた固体壁面間の摩擦と潤滑現象(ルブリケーション)に関して、絡み合い高分子の理論と散逸関数による定式化を導入した。

4. 研究成果

(1) ポアズイユ流中でのベシクルの運動に関して、流速および膜の弾性特性を種々変えることで、膜の様々な定常運動様式をシミュレーションにより求めた。さらにオンサーガー散逸関数の値を求めることで、種々の流動様式が生成される物理的な背景を明らかにすることができ、かつ定常状態で取りえる運動様式を気呈することができた。

(2) 小孔を通過して移動する膜の運動に関するシミュレーションの結果、自由エネルギー局面の測地線に沿う運動(反応座標)と、オンサーガー散逸関数から導かれる正確な運動との間に大きな乖離があることがわかり、反応座標を用いた通常の動力学のモデル化が、ある局面では正しくないことが判明した。また、親ベシクルの内部から子ベシクルが生まれる過程では、親ベシクルの膜の表面張力が重要な駆動因子になっていること、および本研究によって得られたモデル式と実験をフィットすることにより、膜に開けられた穴の周りの線張力を見積もることができることが分かった。また、ベシクルのサイズ、曲げ弾性定数、表面張力、小孔の周囲の線張力などのパラメタによって、子ベシクルの放出過程に準安定状態が生じることが分かった。

(3) ブロック共重合体のラメラ構造に外部からずり流動を印加し、その方向がラメラ層の配向に並行の場合と垂直の場合についての安定性を調べ、流動場に対するラメラ層の配向と流動場の速度によって、系の安定性がどのように変わるのかが解明できた。

(4) グラフト鎖で覆われた固体壁面間にずり変形を掛けた時のスティック・スリップ現象を、鎖の絡み合いの緩和と鎖の配位の変化を基に再現することに成功した。この現象に対して、散逸関数を用いた定式化を実行し、定常状態が出現する条件に付いて明らかにする処方箋を開発した。

5. 主な発表論文等

[雑誌論文](計2件)

Petch Khunpetch, Xingkun Man, Toshihiro Kawakatsu, and Masao Doi, "Translocation of a vesicle through a narrow hole across a membrane", J. Chem. Phys., 148(No.13) (2018) 134901-1-7, 査読あり。

DOI: 10.1063/1.5013677

Yutaka Oya and Toshihiro Kawakatsu, "Onsager's variational principle for the dynamics of a vesicle in a Poiseuille flow"; J. Chem. Phys., 148 (No.11) (2018) 114905-1-8, 査読あり。  
DOI: 10.1063/1.4999049

〔学会発表〕(計 14 件)

森井洋平、川勝年洋、「高分子等の複雑流動のマルチスケールモデリング」、新化学技術推進協会 先端化学部会 講演会、新化学技術推進協会会議室(東京都)、2019年3月26日(火)。

川勝年洋、「両親媒性分子膜の粗視化モデル」、「ベシクルの変形の物理と数理」勉強会、東北大学理学部数理科学記念館(仙台市)、2018年10月6日(土)。

Toshihiro Kawakatsu, "Lecture 1: Fundamentals/Methodology: Multiscale Simulation Methods in Complex Fluids" & "Lecture 2: Applications: Dynamics of Polymer/Surfactant Systems", 2018 International Symposium on Multiple Scale Modelling of Complex Fluids, Guangzhou University (China), 2018年9月26日(水)。

富吉良徳、川勝年洋、「複雑流体の流動誘起相分離現象に関するオンサーガーの変分原理」、日本物理学会 2018年 秋季大会、同志社大学・京田辺キャンパス(京都府)、2018年9月11日(火)。

Toshihiro Kawakatsu, " Multiscale Modeling on Complex Multiphase Flows ", Nano-structured soft matter: a synergy of approaches to amphiphilic and block copolymer systems, University of Lincoln(UK), 2018年6月26日(火)。

川勝年洋、「高分子場シミュレーションの現状と展開」、茨城県中性子利用促進研究会 平成 29 年度小角散乱分科会、エッサム神田ホール1号館(東京都)、2017年12月8日(金)。

川勝年洋、「高分子と界面活性剤の示すメソスケール構造と微分幾何」、離散幾何解析とその周辺 2017、CIC 東京(東京都)、2017年12月2日(土)。

川勝年洋、「高分子/界面活性剤系の相分離にともなう構造形成過程」、日本物理学会 2017 年秋季大会、岩手大学上田キャンパス(盛岡市)、2017年9月22日(金)。

Toshihiro Kawakatsu, "Mesoscopic simulations on phase separation of polymer/membrane systems", The 9th Conference of the Asian Consortium on Computational Materials Science (ACCMS9), Kuala Lumpur(Malaysia), 2017年8月9日(水)。

川勝年洋、「平均場理論解説」、第 22 回高分子計算機科学研究会講座、東京工業大学蔵前会館ロイヤルブルーホール(東京都)、2017年6月20日(火)。

富吉良徳、川勝年洋、「高分子融溶体の固体壁近傍における slip-stick 挙動」、日本物理学会 第 72 回年次大会、大阪大学吹田キャンパス(吹田市)、2017年3月20日(月)。

川勝年洋、「高分子濃厚系の相分離構造の動力学」、高分子学会東北支部講演会、東北大学片平キャンパス(仙台市)、2017年2月7日(火)。

Toshihiro Kawakatsu, "Dynamics of dense polymer blends and blockcopolymer systems", CECAM Workshop on " Multiscale Simulation Methods for Soft Matter Systems ", Technische Universitaet Darmstadt(Germany), 2016年10月6日(木)。

森井洋平、川勝年洋、「不均一な絡み合い高分子系の動的な自己無撞着場理論」、日本物理学会 第 72 回年次大会、金沢大学角間キャンパス(金沢市)、2016年9月16日(金)。

〔図書〕(計 0 件)

〔産業財産権〕

出願状況(計 0 件)

該当なし。

取得状況(計 0 件)

該当なし。

〔その他〕

該当なし。

## 6. 研究組織

### (1)研究分担者

研究分担者氏名：今井 正幸

ローマ字氏名： IMAI, masayuki

所属研究機関名：東北大学

部局名：大学院理学研究科

職名：教授

研究者番号(8桁): 60251485

### (2)研究協力者

なし。

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。