

科学研究費助成事業（特別推進研究）公表用資料

〔令和4（2022）年度 中間評価用〕

令和4年3月31日現在

研究期間：2020-2024
課題番号：20H05619
研究課題名：非平衡ソフトマター・アモルファス物質の物性解明への力学的自己組織化からの挑戦

研究代表者氏名（ローマ字）：田中肇（TANAKA Hajime）

所属研究機関・部局・職：東京大学・先端科学技術研究センター・名誉教授

研究者番号：60159019

研究の概要（4行以内）：

「系全体にパーコレートした力学的ネットワークの自己組織化」という全く新しい運動学的視点から、熱力学的・運動学的アプローチを融合することで、ソフトマターやガラス・ゲルに代表される非平衡な固体が示す普遍的かつ特異な力学的・熱的物性発現の物理的機構の解明を目指す。

研究分野：ソフトマター物理・液体物理

キーワード：非平衡固体 / 運動量保存則 / アモルファス物質 / ソフトマター / 力学・熱物性

1. 研究開始当初の背景

ソフトマター、アモルファス物質に代表される周期構造を持たない物質は、結晶とは大きく異なる特異な力学的性質（弾性、降伏・破壊挙動、成型加工性）、熱的性質（比熱、熱伝導特性）を持ち、様々な分野で人類に大きく貢献してきた。これまでの不規則系の構造の研究は、粒子の重心配置構造を軸に行われてきたが、いまだにその構造的特徴は未解明であり、混沌とした状態が続いている。そのため、構造・物性相関の基礎的理解は、結晶に比べ大きく遅れている。我々は、この問題の解決の鍵は、「一見動きがなく固体的に見える構造においても、非平衡状態においては、運動量保存則が系の状態の決定に深く関わっている」点にあると確信するに至った。

2. 研究の目的

そこで、「力の伝達経路のトポロジー」に着眼して、これまで考えられてこなかった非周期構造材料の構造化における熱力学的因子と運動学的力学因子の協奏という新たな観点から、ソフトマターやガラス・ゲルに代表される非平衡な固体の構造、さらには、これらの物質が示す普遍的かつ特異な力学的・熱的物性発現の物理的機構の解明に挑戦する。これにより、非周期構造材料にまつわる長年の未解明問題の物理的理解の深化、さらには、不規則構造を持つ高機能材料の開発に新しい潮流をもたらすことを目指す。

3. 研究の方法

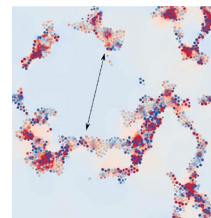
(1) ソフトマターの力学的自己組織化：コロイド分散系の相分離ならびにゲル化について、3次元共焦点顕微鏡による一粒子分解能観察と、多体的な流体力学的相互作用を正しく取り入れたシミュレーションを用い、これらの非平衡過程における力学的自己組織化の背後にある普遍的な物理的原理の解明を目指す。

(2) 力学的トポロジーと流動・破壊：流動下でコロイド・粉体粒子が形成する力鎖のネットワークのトポロジーと流れの関係に着目し、コロイド分散系の非線形レオロジーに、従来と異なる新たな視点から迫る。

(3) 相互作用ネットワークトポロジーに基づくアモルファス物質の物性解明：非晶質固体の構造の固さの起源となる自己組織化の原理を明らかにすべく、非晶質固体中の空間的な力学的ネットワークの特性を、実験・シミュレーションにより明らかにすることで、アモルファス物質特有の弾性発現の機構、破壊機構、さらには、低温における熱伝導や比熱の異常などの長年の未解明問題に挑戦する。

4. これまでの成果

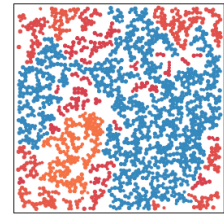
(1) ソフトマターの力学的組織化と力学的最適設計：コロイド分散系や単純な一成分からなる流体が気体相と液体相に相分離する際にみられる、ネットワーク状の粘弾性相分離構造（右図参照）の成長過程について研究を行い、約四十年ぶりに新しい相分離粗大化の基本法則を発見した⁷。また、球対称性のため、これまで直接観察が困難であった球形コロイド粒子の回転運動に挑戦すべく、偏芯コロイドの合成を行い、高密度のコロイド分散系において個々の粒子の回転運動の観察にはじめて成功した⁶。



(2) 力学的トポロジーと流動・破壊：コロイド分散系やたんぱく質溶液の相分離に伴うゲル化については、従来知られていたゲル化の様式に加え、希薄コロイド分散系において、力学的な力に強く影響されない新しいゲル化の様式を発見した¹¹。この成果は、コロイド分散系のみならず、生体の細胞内で起きる相分離に伴うゲル化現象の理解について基礎的な知見を与える。また、細胞運動における力学の役割の解明⁵、異方性分子の創発的弾性の制御に関しても重要な進展があった¹。

(3) 相互作用ネットワークトポロジーに基づくアモルファス物質の物性解明：ガラスのような乱れた構造をもつ物質に固さがあらわれる物理的な機構を解明した。液体を冷やしてガラス転移点に近づけると、遠方

まで力が伝わるようになること、そしてその起源が、系全体にわたる力を支えるネットワークの形成 (右図参照) にあることを明らかにした¹²。また、一般に低温では分子運動が遅くなるため結晶化しにくくなるというのが常識であるが、時としてガラス状態にある物質が結晶化することがある。コロイド分散系の結晶化過程の一粒子レベルでの実時間観察と数値シミュレーションにより、どのような条件下で、またどのような機構で低温高速結晶化が実現するのかを明らかにした⁴。さらに、我々は、コロイド分散系のガラス状態について、粒子の密度を均一化するという全く新しい方法で、非常に高い安定性を実現することに成功した³。この原理は、ガラス状態を「力学的に均一化」する、すなわち、粒子間にかかる力がどの粒子に対しても釣り合った力学的に均一な状態にするという力学的安定化法であり、従来の熱力学的な安定化法とは本質的に異なる全く新しい物理原理を提供する。



5. 今後の計画

(1) ソフト・バイオマターの力学的自己組織化：コロイド分散系、高分子溶液系の相分離シミュレーションと実験を比較検討することで、多体的流体力学的相互作用の役割、力学的自己組織化を伴う粗大化の機構を明らかにする。また、重力下でのコロイドゲルの崩壊のダイナミクスに、シミュレーション、並びに、一粒子レベルで実験的に迫ることで、ゲルの力学的不安定化の機構を微視的レベルで解明したいと考えている。さらに、駆動回転粒子系の流体中での新規な非平衡相分離現象について、とくにレイノルズ数が1を超えるような領域での乱流の影響を明らかにする予定である。

(2) 力学的トポロジーと流動・破壊：流動下でコロイド・粉体粒子が形成する力鎖のネットワークのトポロジーと流れの關係に着目して、コロイド分散系の非線形レオロジー、シア・シニング、シックニング現象に、従来と異なる新たな視点から迫る予定である。また、ずり変形と体積緩和の結合に着目して、シア・シニング現象、破壊現象について研究を行うとともに、疲労破壊の機構解明も目指す。

(3) 相互作用ネットワークトポロジーに基づくアモルファス物質の物性解明：過渡的力学平衡下でのアモルファス構造の力学的自己組織化について、理論的・数値的な研究を行い、特に局在振動モードと弾性・破壊特性、比熱・熱伝導特性などとの關係を調べる。また、乱雑構造の中でも、水素結合や共有結合により形成されるネットワーク構造のトポロジーは、水、シリコン、シリカ、カルコゲナイドなど極めて重要な材料の物性と深く関わっている。そこで、熱力学的構造化により形成された正四面体構造が、運動量保存則の下でどのように力学的自己組織化するのかについて、分子動力学シミュレーションを用いて研究する予定である。さらに、超均一性は、構造的な最適パッキングの視点から議論されてきたが、我々は、力学平衡による無秩序状態の自己組織化の結果であると捉えるべきと考えている。この新しい考え方に基づき、超均一状態の力学ネットワークの特徴を調べることで、この状態が、アモルファス状態の過渡的力学平衡についての基準状態となっていることを示せればと考えている。

6. これまでの発表論文等 (受賞等も含む)

1. K. Takae* and K. Kawasaki*, Emergent elastic fields induced by topological phase transitions: Impact of molecular chirality and steric anisotropy, Proc. Natl. Acad. Sci. (in press).
2. A. Furukawa*, Transverse viscous transport in classical solid states, Phys. Rev. Lett. 1217, 245901 (2021).
3. T. Yanagishima, J. Russo, R.P.A. Dullens, H. Tanaka*, Towards glasses with permanent stability, Phys. Rev. Lett. 127 (21), 215501 (2021).
4. Q. Gao, J. Ai, S. Tang, M. Li, Y. Chen, J. Huang, H. Tong, L. Xu*, H. Tanaka*, P. Tan*, Fast crystal growth at ultra-low temperatures, Nat. Mater. 20 (10), 1431-1439 (2021).
5. J. Li, S.K. Schnyder, M.S. Turner, R. Yamamoto*, Role of the cell cycle in collective cell dynamics, Phys. Rev. X 11 (3), 031025 (2021).
6. T. Yanagishima, Y. Liu, H. Tanaka*, R.P.A. Dullens*, Particle-Level Visualization of Hydrodynamic and Frictional Couplings in Dense Suspensions of Spherical Colloids, Phys. Rev. X 11 (2), 021056 (2021).
7. M. Tateno, H. Tanaka*, Power-law coarsening in network-forming phase separation governed by mechanical relaxation, Nat. Commun. 12 (1), 912 (1-12) (2021).
8. Y. Chen, Z. Yao, S. Tang, H. Tong, T. Yanagishima, H. Tanaka*, P. Tan*, Morphology selection kinetics of crystallization in a sphere, Nat. Phys. 17 (1), 121-127 (2021).
9. Y. C. Hu, H. Tanaka*, Physical origin of glass formation from multicomponent systems, Sci. Adv. 6 (50), eabd2928 (2020).
10. R. Shi, H. Tanaka*, The anomalies and criticality of liquid water, Proc. Natl. Acad. Sci. 117 (43), 26591-26599 (2020).
11. H. Tsurusawa, S. Arai, H. Tanaka*, A unique route of colloidal phase separation yields stress-free gels, Sci. Adv. 6 (41), eabb8107 (2020).
12. H. Tong, S. Sengupta, H. Tanaka*, Emergent solidity of amorphous materials as a consequence of mechanical self-organisation, Nature Commun. 11 (1), 4863 (1-10) (2020).

7. ホームページ等

https://www.softmatter.rcast.u-tokyo.ac.jp/Access_J.html