

科学研究費助成事業 研究成果報告書

平成 27 年 6 月 19 日現在

機関番号：32661

研究種目：基盤研究(C)

研究期間：2012～2014

課題番号：24540398

研究課題名(和文) 自己駆動ナノマシンの走性と動的相転移で創発する新奇な自走ダイナミクス

研究課題名(英文) Novel dynamics and directed transport of self-driven nanomachines

研究代表者

川口 高明 (KAWAGUCHI, Takaaki)

東邦大学・医学部・教授

研究者番号：10273913

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 3,800,000円

研究成果の概要(和文)：本研究では、自己駆動力をもつナノマシンにおいて創発する新奇な自己駆動及び自走現象・有方向性運動について、統計物理学の理論と数値シミュレーションの方法をもとに調べた。一般にナノマシンは分子機械とも呼ばれ、ナノスケールでの直進運動等の機械的動作が可能ないように創製された物質系を指すが、本研究で対象としたのは自己駆動力を発生させて、方向性のある自走が可能ナノマシンである。本研究では、このナノマシンにおける単体における自己駆動機構と自走の素過程、及び創発する新奇な自走ダイナミクスについての詳細を理論的に解明した。

研究成果の概要(英文)：Novel directed motion and transport of nanomachines on a solid surface are studied by numerical simulations and theoretical analyses based on a model at nanoscale. The directed motion is induced by introducing the spatiotemporal modulation into nanomachines. It is found that the dynamical states where the directed motion occurs are classified into two characteristic regimes, i.e., locking regime and unlocking one. The adiabaticity of motion of the nanomachine against the spatiotemporal modulation is essentially important to understand the dynamical behaviors of the present system. For the directed motion under adiabatic conditions, the time-averaged velocity of the nanomachine is locked to a fundamental value. The velocity locking occurs when the amplitude of the spatiotemporal modulation is larger than a certain threshold value. Using a scaling analysis of the threshold of modulation amplitude, we reveal the universal nature of the directed motion.

研究分野：統計物理学

キーワード：ナノマシン 有方向性運動 自走 自己駆動

1. 研究開始当初の背景

本研究で取り上げるナノマシンは人工分子の一種で、外部から光または電磁波等の外場を受けると分子の内部運動が励起し、それにより自己駆動力が発生すると考えられている。この自己駆動によって、ナノマシンは走性をもち、方向性をもつ自走が可能であると予想していた。さらに、新奇な自走現象も併せて予想されていたが、その自己駆動機構及び有方向性運動に関する物理的素過程などはほとんど理解されていなかった。そのような状況下で、上述のような自己駆動ナノマシンの理論研究が物理学的に急務となっていた。そこで、本研究は、その要請に応える統計物理学的立場から計画された理論研究である。

本研究の代表者は研究開始当初までナノスケールで現れる新奇な界面・表面現象等を調べてきており、その過程でいくつかの新奇な物理現象を明らかにしていた。このような研究経験を背景にして、かつ当時の最新の研究動向に刺激されて、本研究を計画及び遂行した。

2. 研究の目的

本研究では、着目する走性現象を、直接的な外力が無い状態において、外部から電磁波でエネルギーを受けて生じる、方向性のある自己駆動及び自走現象と定めて、問題を明確化する。これをふまえて、いくつかの重要な諸問題を主に分子動力学シミュレーションによる理論的方法で解明することを目的とした。詳しくは、下記のような解明を目指す。

一つには、ナノマシンの機構・現象解明を行う。特に、自己駆動の機構、自走の素過程に着目し、ナノマシンにおいて方向性をもつ駆動力と自走運動を発生する非自明な現象について、その物理機構と素過程を解明する。

さらに、マシンの内部自由度の時間空間変調が、特異な自走状態を引き起こすが、これに伴って特異な物理現象・効果が変調および表面のパラメータ条件に依存して現れ得る。それらの物理機構と特性を解明する。

3. 研究の方法

最初の段階で自己駆動ナノマシンのモデル構築を進めた。理論モデル構築は研究活動の最初に行ったが、研究期間中でもモデルの再検討を随時行った。

シミュレーションからデータ解析までを行えるシミュレーション環境も構築した。そして、機器整備と併行して、検討した理論モデルをもとに、分子動力学シミュレーションのためのプログラム開発を行った。なお、シミュレーションのアルゴリズム及びデータ解析手法の改良は、必要に応じて随時行った。

研究の流れの概略は、次のようになる。まず、ナノマシン内の分子運動の時間発展を解析して、自己駆動の物理機構を明らかにした。そして自己駆動で起こる自走の素過程を統

計物理的手法で解明した。次に、ナノマシンの有方向性運動に関するダイナミクスを解明した。ここで、多様な自走状態に着目し、これらの発生機構と動特性を明らかにして、本研究対象であるナノマシンの自走現象の新奇性と多様性を理解した。そして、研究の過程で見えてくる本研究対象のナノマシンの有方向性運動の動特性の普遍的な側面も明らかにした。最後に、新奇性と普遍性などの視点から、研究成果の総括を行った。

4. 研究成果

ナノスケールでの力学的システムに関連して、様々なナノマシンが研究されている。その際、ナノマシンが有効性運動を制御された方法で行うことが重要となる。これについて、本研究では、直接の外力を加えない状況において、ナノマシンに一方向性の運動を実現させる一方法およびその物理的素過程と特性を詳細に調べた。これはナノマシンの基礎研究のみならず、統計物理学上の諸問題と密接に関係する重要な研究テーマである。以下に本研究におけるいくつかの成果を取り上げて説明する。

まず、理論モデルの構築を行うにあたって、空間的な対称と周期性をもつナノスケール固体表面を想定して、その固体表面上に分子ナノマシンが存在し、表面に沿って運動することを基本的な状況として考えた。まず、比較的単純な分子系を想定した離散的格子モデルをもとに拡張した。固体表面層は完全に周期性をもっており、モデルにおいては周期ポテンシャルで記述することができる。ナノマシン本体において、隣接する格子点間の相互作用し、さらに個々の格子点において固体表面とも相互作用しているとする。ナノマシンと固体表面間の相互作用を記述するのが周期ポテンシャルとなり、いくつかのタイプが検討され採用した。

ここで、ナノマシンは構成要素としての原子の間隔が、外部からの電磁波照射などの方法によって時間空間的変調を受ける。この際、原子間隔の変調は、マシン全体を伝搬する変調波となる。その変調波の振幅、時間周期、波長が制御パラメータとなる。このように、方向性を定める外力という形式では、このナノマシンは駆動されていない。この時間空間変調を受けたナノマシンのモデルについて、その運動方程式をもとに、分子動力学法で数値的にシミュレーションを実行した。併せて、解析的な方法も援用して得られた研究結果を次に説明する。

特定の領域に変調パラメータを絞ってシミュレーションを行い、ナノマシンに自己駆動力および方向性の定まった運動が発生することを明らかにした。

図1には3つの変調周期Tにおける変調振幅と規格化したナノマシン速度の関係をグラフとして表している。ここで変調振幅はある意味変調の強度を与えるものであるの

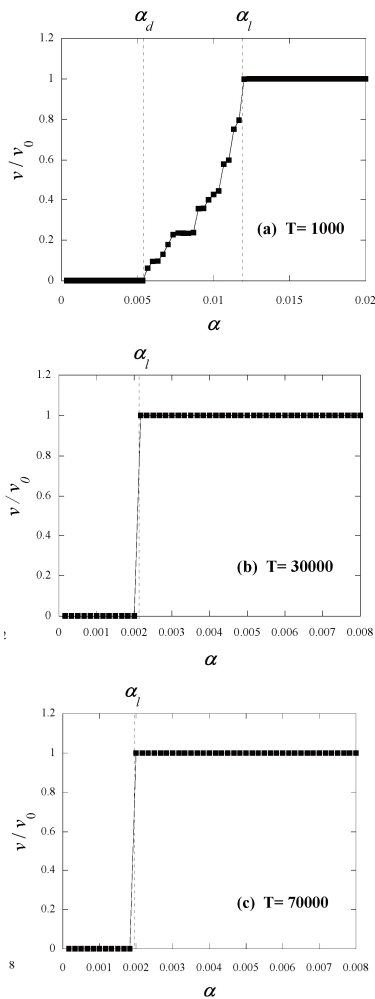


図 1

で、重要な量である。図 1(a)には、2つの特徴的な変調振幅の閾値 (α_d, α_l) が存在する。小さな変調振幅の場合、マシンは全体としては並進運動をできず、有方向性運動は現れない。変調振幅が大きくなって $\alpha < \alpha_l$ となると、有方向性運動が現れるが、変調振幅の増加とともに増大する傾向が見られる。さらに $\alpha > \alpha_l$ となると、速度は v_0 (=表面ポテンシャル周期/変調周期) にロッキングされることが分かった。

次に、図 1 (b), (c)においては、変調周期を図 1(a)より大きくした場合を示す。ある変調振幅を境にして、規格化した変調速度はゼロから 1 へ突然変化する。図 1(b)と(c)の結果は本質的に同様な振舞をしており、速度が変化する変調振幅の閾値もほとんど同じである。そこで、変調周期を大きくしていった場合、いわゆる変調としてはゆっくりとしたものとなり、ある程度ゆっくりとした変調では動的特性は変わらなくなるが、それは早い変調の場合とは定性的にも異なっている。

詳細な解析の結果、変調周期 T がある程度大きい場合、時間空間変調を受けたナノマシンは断熱変化をしていることが明らかになった。変調の影響によって、ナノマシンの感じる有効ポテンシャルも時間空間変化する

が、これに対して変調周期が大きい場合は、ナノマシンが断熱的に追従し、結果として速度のロッキングが起こる。このナノマシンの断熱的变化には、表面ポテンシャル上でのマシンの格子緩和が重要である。格子緩和の特徴的な時間スケールが、変調周期よりも短いことが断熱状態を実現するためには求められる。さらに、図 1 の結果より、断熱的にナノマシンが変化している場合においても、有方向性運動を行うためには、変調振幅は有限の大きさをもつ必要があり、それには閾値が存在していることも明らかになった。

数値シミュレーションの結果をうけて、解析的理論研究からも有方向性運動の発生機構を理解した。これは断熱状態において有効な理論であるが、適用方法によっては、準断熱状態の有方向性運動についてもある程度の理解が得られる。ただし、図 1 で見られたような変調振幅の閾値の変調周期依存性などは、解析的理論から考察することが困難である。つまり、本研究で考察するナノマシンの有方向性運動においては、非常に複雑なダイナミクスを示し、時間空間変調下での格子緩和の異常性が影響することで、現象の理解には複雑性と困難が伴っているが、それが多様なダイナミクスを生み出していることが明らかになった。

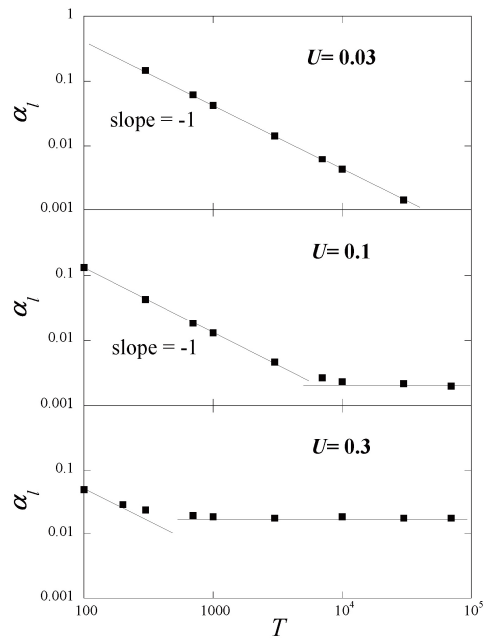


図 2

上述のような有方向性運動の複雑な振舞に対して、普遍的な特性を理解することを試みた。そのために、まず、表面ポテンシャル強度 U をいくつか選び、規格化した速度が 1 にロッキングされるときの変調振幅の閾値を詳細に調べた。図 2 に 3 つの表面ポテンシャル強度における変調振幅の閾値 (α_l) の変調周期 (T) 依存性を示す。 $U=0.03$ の場合、

変調周期 T が増大すると、変調振幅の閾値 α_l は T に逆比例して減少する。この傾向を示す領域は、表面ポテンシャル強度が大きくなると狭くなることが分かった。 T が大きくなると、閾値 α_l は一定値に漸近する。 $U=0.1$ と 0.3 では、閾値 α_l の T 変化に対する振舞についてクロスオーバーが現れる事が特徴である。

図 2 に示された特性をもとに、変調振幅の閾値 (α_l) のスケーリング解析を行った。これをもとに、このナノマシンの示す有方向性運動の本質および普遍的性質を考察できた。

スケーリング解析のために、まず、変調振幅の閾値 (α_l) のスケーリング関数として、次式が適用できることが分かった。

$$\alpha_l(T, U) = U^{-(\beta+1)} g\left(\frac{T}{U^\beta}\right)$$

ここで、関数 $g(x)$ は次の条件を満たす。

$$g(x) \rightarrow \begin{cases} \frac{1}{x} & x \rightarrow 0 \\ \text{const.} & x \rightarrow \infty. \end{cases}$$

これらの関係式をもとに、図 3 に変調振幅の閾値 (α_l) のスケーリングプロットを複数の表面ポテンシャル強度について示す。

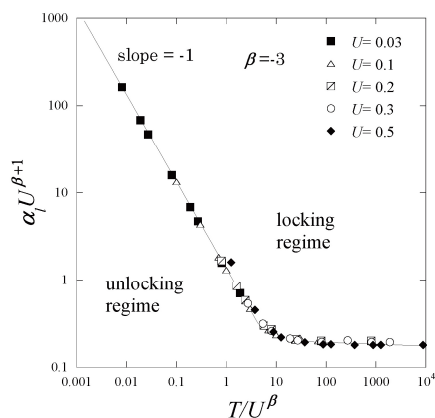


図 3

図 3 において、すべての数値データは非常に良くスケーリングされている。ここでスケーリングの指数は $\beta = -3$ である。本質的に重要な点は、図 2 に見られたクロスオーバーがこの解析から理解できることである。ナノマシンに有方向性運動が発生する条件は、図中にロッキング領域として表記されている。非ロッキング領域も表示されており、これらロッキングの有無をスケーリング曲線が分けていることが分かる。このスケーリング解析によって、様々な結果が導き出される。例えば、変調周期がある程度大きい場合でも、変調振幅が小さい条件下では表面ポテンシャル強度によっては速度ロッキングした有方向性運動を示せないことが理解できた。

また、速度ロッキング効果は時間空間変調の特徴的な時間スケールに影響を受けることも変調パラメータ変化に対する詳細な解

析から理解できた。

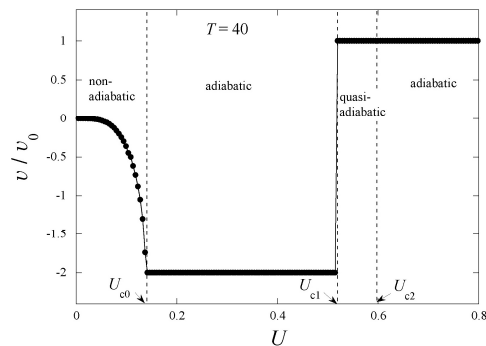


図 4

図 4 には、別の見方で動的な状態を識別する一種の相図を示す。ここでは、表面ポテンシャル強度 U によって、ナノマシンの有方向性運動の断熱、準断熱、および非断熱状態の違いを速度ロッキングの振舞から整理したものである。ここでは、ナノマシンの格子緩和に関して、準断熱状態の概念を導入することによって、理解が困難であった本系のダイナミクスが統一的に理解できることが明らかになった。

本研究において考察したナノマシンにおいて、ナノマシンの構成要素としての原子が周期的な表面ポテンシャル障壁を感じながら、それを乗り越えることが有方向性運動の発生に必要なことが分かった。本研究によって、自己駆動力の発生および有方向性運動の発現のために必要な条件などについて、時間空間的変調と表面ポテンシャルの両面からの普遍的な理解がなされた。また、相転移現象との関係についての考察も行われた。これらの結果をもとに、本研究対象とした時間空間的変調を受けたナノマシンについて、自己駆動から自走・有方向性運動の素過程・物理機構にわたる統一的な理解を得ることができた。

5. 主な発表論文等

(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 3 件)

Directed motion of particles on a surface, Takaaki Kawaguchi, JPS Conference Proceedings, 査読有, Vol. 5, pp.011025-1-6 (2015).

Directed motion and novel dynamics of interfacial systems, Takaaki Kawaguchi, Hiroshi Matsukawa, JPS Conference Proceedings, 査読有, Vol. 1, pp.012059-1-4 (2014).

Complex dynamics and directed

transport of particles at a nanoscale interface , Takaaki Kawaguchi , Hiroshi Matsukawa, AIP Conference Proceedings, 査読有, Vol. 1518 , pp.737-740 (2013).

東邦大学・医学部・教授
研究者番号：10273913

(2)研究分担者
該当なし

(3)連携研究者
該当なし

〔学会発表〕(計 6件)

位相モデルにおける一方向性運動の発現, 川口高明, 日本物理学会 第70回 年次大会, 早稲田大学(東京都・新宿区), 2015年3月21日.

Directed motion of particles on a surface , Takaaki Kawaguchi, Computational Science Workshop 2014 , Epochal Tsukuba, (Tsukuba-shi , Tsukuba) 2014年8月21日.

固体表面におけるナノマシンのダイナミクス, 川口高明, 松川宏, 日本物理学会 秋季大会, 徳島大学(徳島県・徳島市), 2013年9月28日.

Directed motion and novel dynamics of interfacial systems , Takaaki Kawaguchi, Hiroshi Matsukawa, The 12th Asia Pacific Physics Conference of AAPPS , Makuhari Messe, (Chiba-shi, Chiba) 2013年7月16日.

Complex dynamics and directed transport of particles at a nanoscale interface , Takaaki Kawaguchi, Hiroshi Matsukawa, The 4th International Symposium on Slow Dynamics in Complex Systems , 東北大学(宮城県・仙台市), 2012年12月3日.

ナノ界面の新奇なダイナミクスと摩擦・潤滑現象, 川口高明, 松川宏, 日本物理学会 秋季大会, 横浜国立大学(神奈川県・横浜市), 2012年9月19日.

〔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〕

ホームページ等
該当なし

6. 研究組織

(1)研究代表者

川口 高明 (KAWAGUCHI , Takaaki)