

無細胞発現系溶液の相分離ダイナミクスと塩依存的な形状緩和過程

(九州大学大学院理学府物理学専攻) 加藤修三, 前多裕介
(University of Minnesota) David Garenne, Vincent Noireaux

【はじめに】

細胞内溶液(細胞質)はタンパク質や DNA/RNA 等から成る多成分溶液であり, 自由エネルギー変化に伴い相分離を示す. 相分離は独立した濃度の相構造を形成することから, 細胞内の時空間的な反応制御を実現する物理現象であることが示唆されている[1]. しかしながら, 細胞特有の物理条件: 膜による区画, 構成依存的な粘弾性, 生化学反応が相分離に与える寄与は未解明である. 本研究ではバクテリア細胞質と生化学バッファーから成る無細胞発現系溶液を用いて細胞質の相分離を再構成し, そのダイナミクスと物性を解析した.

【結果と考察】

無細胞発現系溶液は大別してタンパク質 9-10 mg/ml, 塩 5-50 mM, 枯渇剤 PEG 2%(w/v) から構成され, PEG 濃度 6%または脱水濃縮 2.8 倍以上において相分離を示す. 形成した相は蛍光タンパク質を区画し, 脂質膜と濡れを示す特徴がある[2]. 我々は相分離のダイナミクスを定量するため, 半径 68 μm 高さ 50-70 μm の円柱状マイクロウェルに溶液を封入し, 蒸発駆動の相分離過程を観察した. 臨界濃度に達すると上層膜のメニスカス形状に沿って相分離し, この時液滴の平均サイズは PEG 濃度依存的に増加することがわかった(図 1a). 次にバルクの液滴融合における形状緩和を解析すると, 溶液中の塩濃度依存的に緩和時間が変化することが明らかになった(図 1b). 一価塩(KCl, NaCl)では緩和時間が減少する一方で, 二価塩 (MgCl₂)では緩和時間が増加し 40 mM 以上では形状が完全に緩和しない. この結果は液滴が静電複合体であり, 塩濃度により粘弾性が変化することを示唆する. 本発表では相分離ダイナミクスと液滴の物性に関して定量的結果を示し, その物理的解釈を議論する.

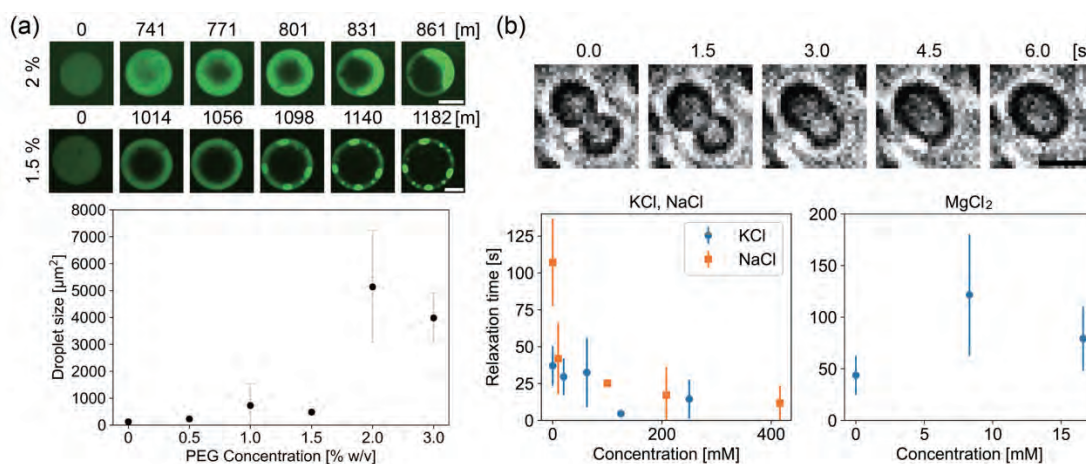


図 1. (a) マイクロウェル内の無細胞発現系溶液の相分離ダイナミクスと PEG 濃度依存的な液滴平均サイズ (Scale bar: 50 μm). (b) 液滴融合における形状緩和過程と塩濃度依存的な緩和時間 (Scale bar: 5 μm).

【参考文献】

- (1) J. Berry, *et al.*, *Rep. Prog. Phys.* **81**, 046601 (2018).
- (2) S. Kato, *et al.*, *Biomacromolecules* **22**, 3451–3459 (2021).

Tunability of reactivity ratios in copolymerization

(北海道大学化学反応創成研究拠点) Li, Wei; Rubinstein, Michael

【はじめに】

Statistical copolymers, with their sequential distribution of the monomeric units obeying statistical laws, find important applications in broad-spectrum surfactants and underwater adhesion. Monomer reactivity ratios govern the sequential distribution in the copolymer that further dictates its performance. A recent experimental study reported an interesting sequential distribution variation in copolymers prepared via free radical polymerization, suggesting a systematic tunability of reactivity ratios through varying the concentration of monomer content. To understand the underlying mechanism, we constructed a coarse-grained model and explored effects of key control parameters through molecular dynamics simulations.

【結果と考察】

Our model system consists of two types of monomers, A and B, and the solvent particle C. We depict the reactivity between two monomers by their bonding probability at contact. We showed that the attraction between monomers and solvent particles reduces the monomer diffusivity and hence, affects its incorporation in the copolymer. However, the influence decreases with increasing the monomer concentration (Figure 1). A mean-field model concerning pairwise interactions is derived to describe such dependence.

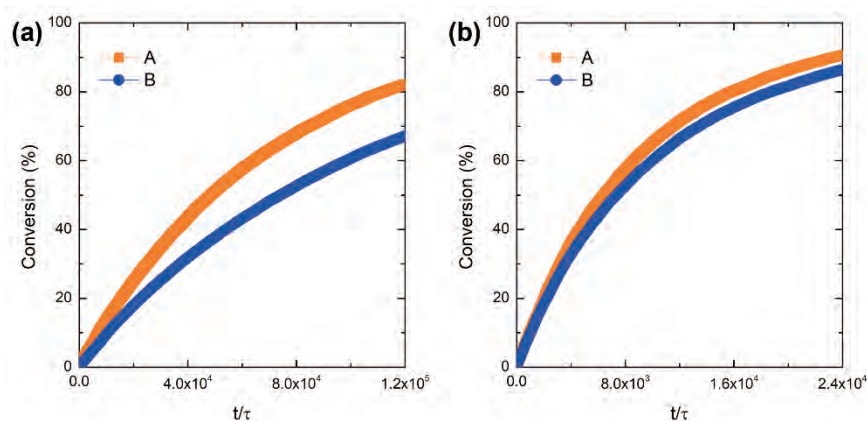


Figure 1. Time evolution of monomer conversion ratio at (a) 0.1M and (b) 0.5M monomer concentrations.

【参考文献】

- (1) Panganiban, Brian, et al. "Random heteropolymers preserve protein function in foreign environments." *Science* 359.6381 (2018): 1239-1243.
- (2) Fan, Hailong, et al. "Adjacent cationic–aromatic sequences yield strong electrostatic adhesion of hydrogels in seawater." *Nature communications* 10.1 (2019): 1-8.

Geometry-Induced Dynamics of Confined Chiral Active Matter

(Dept. Phys., Kyushu Univ.) Archit Negi, Kazusa Beppu, Yusuke T. Maeda

【はじめに】

Active matter refers to the broad class of systems that have a huge number of constituent elements, which consume energy for motion or for exerting forces. Due to its ability to form self-sustained structures, active matter has numerous potential applications, and to fully realize that potential, control over its dynamics is required. Geometric confinement is a promising control mechanism [1], and so is chirality; individual elements in chiral systems tend to perform circular motion, and their dynamics is considerably different from linear systems [2]. However, most of the current studies on chiral active matter are bulk matter studies. This work aims to elucidate how chiral active matter can be further controlled by physically confining it and how its dynamics changes with system parameters.

【結果と考察】

We perform numerical simulations of chiral active matter confined to a circular space using a modified Vicsek model [3], where the particle position (\mathbf{r}) and orientation (θ) is given by:

$$\dot{\mathbf{r}}_m = v(\theta_m(t)) + \frac{2\kappa}{l^2} \sum_{r_{mn} < \epsilon} (\mathbf{r}_m - \mathbf{r}_n) e^{-\left(\frac{r_{mn}}{l}\right)^2} - \kappa_b \frac{\mathbf{r}_m}{|\mathbf{r}_m|} \Theta(r_m - R)$$

$$\dot{\theta}_m = \omega - \gamma_p \sum_{r_{mn} < \epsilon} \sin(\theta_m - \theta_n) - \gamma_w \sin 2\left(\theta_m - \varphi_m - \frac{\pi}{2}\right) \Theta(r_m - R) + \eta_m$$

In this model, the particles have a constant speed (v_0), chirality (ω), polar interaction with other particles (γ_p) that are within their radius of interaction (ϵ), nematic interaction at the boundary (γ_w), soft repulsion between the particles (κ) and between the particles and the wall (κ_b) and some random noise (η_m) in the orientation realignment. Simulations are done for a wide range of system parameters of particle number (N), ω , γ_p ,

and γ_w . Chiral systems in the low γ_p , γ_w regime, depending on N and ω , show ordered steady states of boundary flow, flocking and a global oscillation phase. Our numerical results show that chirality is a major factor in generating a collectively ordered phase.

【参考文献】

- (1) K. Beppu, et al, Proc. Natl. Acad. Sci. USA **118**, e2107461118 (2021)
- (2) D. Lewis, et al, Phys. Rev. Research **1**, 023026 (2019)
- (3) T. Vicsek, et al, Phys. Rev. Lett. **75**, 1226 (1995)

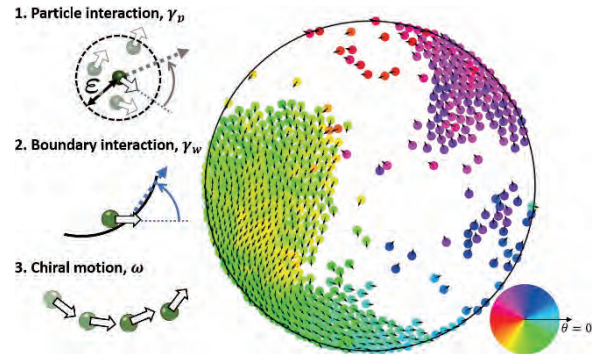


Fig. 1: Multiple flocks steady state in a chiral active matter system, particle color denotes orientation, $N=700$, $\omega=0.1$, $\gamma_p=0.1$, $\gamma_w=1.0$

単成分ソフトコア粒子からなるガラスの緩和と結晶化動力学

(東京大学大学院総合文化研究科) 高羽 悠樹、池田 昌司

【はじめに】

一般に乱れた配置のまま固まった状態のことをガラスと呼ぶ。ガラスは構造をほとんど変えないので固体的なもののように思えるが、その正体は低温に深く過冷却された液体である。そのため、ガラスは最終的には構造を変えて結晶化すると信じられている。一般に過冷却液体の結晶化のダイナミクスは古典核生成理論を土台とした結晶化理論でよく理解されており、ガラスの結晶化もこれに従うと考えられてきた[1]。しかし、近年ガラスの結晶化が数値実験を用いて観察され、高温での結晶化とは定性的に異なる結晶化ダイナミクスが報告され始めている[2]。一方で、ガラスの結晶化の定量的な理解はいまだ進んでいない。例えばその結晶化時間の温度依存性については慣習的な結晶化理論の予測が存在するのみである。つまり、結晶化時間は凝固点のほかにより低温側でも発散を示して、その発散は液体の平衡緩和時間の温度依存性に従うという予測があるのみである。本研究では分子動力学計算を用いて3次元ソフトコア粒子系の過冷却液体のダイナミクスを広い温度範囲にわたり観察することで、結晶化時間の温度依存性を評価した。

【結果と考察】

平衡液体の計算から求められた緩和時間 $\tau_{\alpha,eq}$ がスーパーアレニウスの温度依存性を示したのに対して、結晶化の計算から求められた結晶化時間 τ_{cry} は低温でアレニウス温度依存性を示していた (Fig. 1)。また、結晶化時間は平衡液体の緩和時間よりもずっと小さな値を持っていた。これは、従来の結晶化理論の予測に反する結果である。また、低温で結晶化時間をアレニウスの式 $\tau_{cry} \sim e^{k_B T / \Delta E}$ でフィッティングして、典型的なエネルギースケール ΔE を計算すると $\Delta E = 0.16$ と非常に小さい値であった。このエネルギースケールは高温の液体の緩和時間の温度依存性が示すものよりもずっと小さい。つまり、低温での結晶化は高温の液体が経験するよりもずっと小さなエネルギー障壁を超えて進行している可能性をこの結果は示唆している。当日の発表ではこの結晶化動力学と非平衡状態のエージング動力学との関連についても考察する。

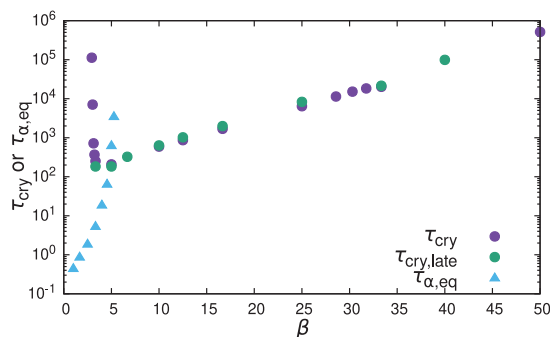


Fig.1 結晶化時間 τ_{cry} と平衡緩和時間 $\tau_{\alpha,eq}$ の関係

【参考文献】

- (1) A. Cavagna, Physics Report **476**, 51-124 (2009)
- (2) E. Sanz et al., Proc. Natl. Acad. Sci. U.S.A. **111**, 75-80 (2014)

Directional quenching により形成される相分離パターンの非平衡転移

(都立大物理) 石川 陸矢, 谷 茉莉, 栗田 玲

【はじめに】

非平衡系の転移やパターン形成においては、必ずしも安定な状態が実現されているとは限らない。たとえば、流体において、攪乱がなければ層流が実現される状態であっても、攪乱によって乱流に転移する場合があることが知られている(1)。我々はこのような現象の一つとして、冷却領域を一軸方向に広げていく directional quenching (DQ) 相分離におけるラメラ・コラムパターン転移に注目した。DQ 相分離では、冷却領域 front 移動速度 V によってランダムドロップレット、ラメラ、コラムパターンが形成される(2)。本研究では、DQ 相分離に攪乱を導入した際の転移やパターンを詳細に調べた。

【結果と考察】

攪乱として、部分的にスリットが存在するパターンを初期条件として DQ 相分離のシミュレーションを行なった。本研究では、相分離の時間発展方程式として知られている Cahn-Hilliard 方程式を用いた。その結果、スリットの幅 h および V を変化させた時にパターンが転移することがわかった。さらに、 h を変化させることで連続転移的な挙動から不連続転移的な挙動に変化することがわかった。また、DQ によって形成されるコラムパターンの幅 λ は V に依存することもわかった。連続転移および不連続転移的な挙動の変化は、 h と λ の関係によって決まっていると考えている。本発表ではこれらの詳細について報告する。

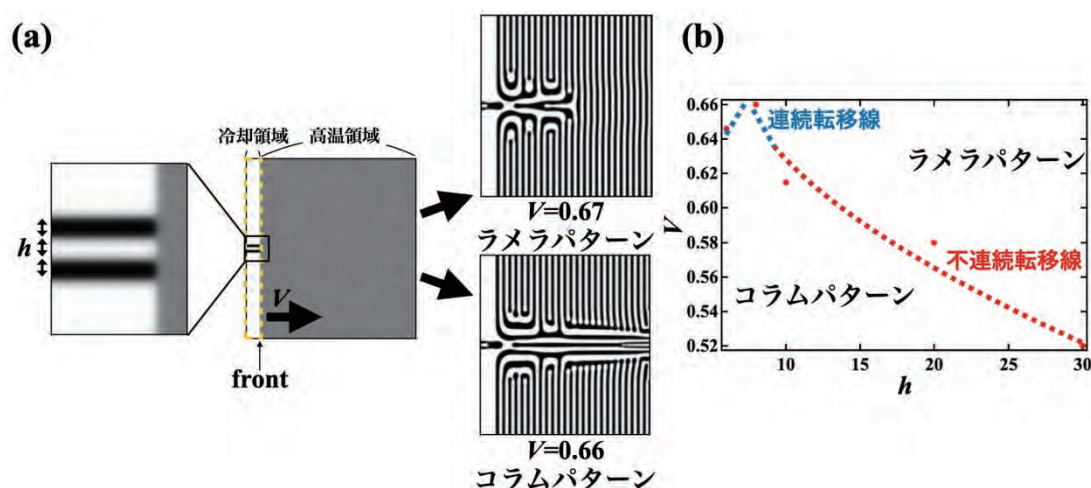


図:(a) 部分的にスリットが存在するパターンを初期条件に DQ 相分離を行なった場合に形成されるパターン。(b) パターンの状態図。

【参考文献】

- (1) M. Sano and K. Tamai, *Nat. Phys.* **12**, 249–253 (2016)
- (2) H. Furukawa, *Physica A.* **180**, 128 (1992).

回転液晶液滴の流体相互作用

(九大院理) 齊藤圭太、木村康之

【はじめに】

マイクロスケールでの物体操作は、局所構造が重要であるソフトマターの物性研究では有用である。光ピンセットをはじめとする光操作技術の発展により、精密な物体操作が可能となってきた。例えば、複屈折粒子である液晶液滴に円偏光を照射すると、粒子回転が誘起され、物体の回転操作が可能となる^[1]。さらに、この回転粒子が誘起する流動場により、流体中での粒子輸送も可能となる。流体中の粒子制御を行うためには、粒子間の流体相互作用を解明することは重要である。そこで本研究では、円偏光駆動液晶液滴を作成し、液滴の回転が他粒子の運動に与える影響を調べた。

【結果と考察】

実験は焦点での光強度パターンが制御可能なホログラフィック光ピンセット (HOT)^[2]を用いて、ネマチック液晶 (NLC) 液滴に自転運動を誘起した。高効率な回転を実現するために、NLC 液滴の回転メカニズムの検討を行い、液滴内の液晶配向が bipolar の場合に、エネルギー効率が低いことがわかった^[3]。この bipolar 液滴を用いて、粒子間距離 l を変化させながら、回転数と重心位置の変化を測定し、回転粒子間の流体相互作用を調べた (図 a)。図 b に示すように、 l の減少に伴い、回転周波数 ν は減少し、その減少は $1/l^2$ に従うことがわかった。一方、回転による重心位置の変化は、 l の減少とともに増加し、粒子が流体から受ける力は、 $1/l^2$ に比例することがわかった (図 c)。Ronte-Prager-Yamakawa (RPY) 近似を用いた流体相互作用と仮定して、実験結果と比較を行ったところ、両者は概ね一致することがわかった。さらに、複数回転粒子による流動場の構築とその応用についても発表する。

【参考文献】

- [1] M. E. J. Friese, *et. al.*, *App. Phys. Lett.* **78**, 547 (2001).
 [2] J. E. Curtis, *et. al.*, *Opt. Commun.* **207**, 169 (2002).
 [3] K. Saito and Y. Kimura, *Sci. Rep.* **12**, 16623 (2022).

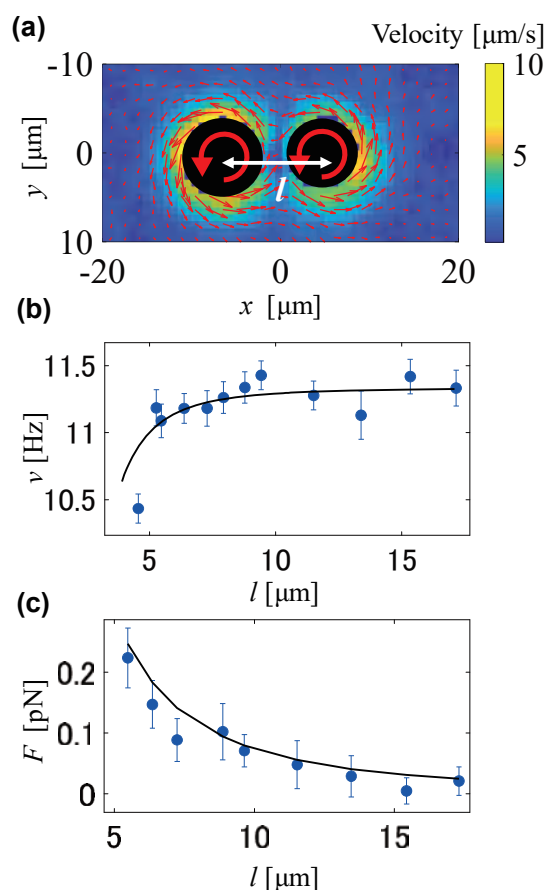


図. 液晶液滴回転子間の流体相互作用. (a) 2個の同方向回転 NLC 液滴で誘起される速度場 (PIV). (b) 回転周波数 ν の粒子間距離 l 依存性. 実線は RPY 近似による理論曲線. (c) 粒子が流体から受ける力 F の l 依存性. 実線は RPY 近似による理論曲線.

泡沫の塗り広げにおける厚みの速度依存性の観察

(都立大物理) 遠藤雅也, 谷茉莉, 栗田玲

【はじめに】

液体中に気体が込み入って含まれている状態のことを泡沫と呼ぶ。泡沫は流体である気体と液体で構成されているにもかかわらず弾性的な性質を持ち合わせている。日常生活において泡沫はとても身近なものであり、ボディソープや洗顔フォーム、食器洗剤などのように塗り広げるようにして使われることも多い。

泡沫が基板表面を移動する時には、表面の粗さによって、表面付近の泡は滑ったり、ピン留めされて動いたりとは異なる挙動を示すことが知られている[1]。しかし、3次元的な構造から2次元的な構造へと塗り広げられる際の変形ダイナミクスや構造変化などについての研究は今まで報告されていない。そこで我々は、3次元的な泡沫を板によって塗り広げた時に生じる泡沫のマクロな変形原理の解明を目的として、ミクロな構造変化との関係性を調べる研究を行った。

【結果と考察】

これまでの我々の研究により、塗り広げられる泡沫の厚みは塗り広げる速度が大きいときに、塗り広げる板の高さよりも低くなることがわかっている。このことから、泡沫は塗り広げられる際に板との間にメニスカスを形成しており、液体の挙動と類似している可能性が考えられる。液体の塗り広げについては、Landau-Levich-Derjaguin モデル[2]により、塗り広げられた液膜の厚みは塗り広げる速度に依存することがわかっている。今回は、塗り広げられる泡沫の厚みに着目し、液体の塗り広げと同様に、塗り広げられた泡沫の厚みが速度に依存するのを実験的に調べた。

基板上に一定量の泡沫を乗せてアクリル板によって塗り広げた。その結果、液体に類似した挙動を示し、液体と同様に塗り広げる速度が大きいほど塗り広げられる泡沫の厚みも増加したが、液体の場合とは異なる冪指数が得られた。これは、泡沫固有のパラメータである液体分率(泡沫の体積に対する液体の割合)や気泡サイズなどが影響していることが考えられるほか、塗り広げられる際に気泡がスリップしていることが原因となっている可能性がある。本講演ではこれらの結果、考察の詳細について発表する。



図：塗り広げられる泡沫の様子

【参考文献】

- [1] Manon Marchand, Frédéric Restagno, Emmanuelle Rio, and François Boulogne, Roughness-Induced Friction on Liquid Foams, *Phys.Rev.Lett* 124, 118003 (2020).
 [2] P.G. de Gennes, et al. *Capillarity and wetting phenomena: Drops, bubbles, peals, waves.* Springer, 2004.

液晶乱流系の時空間構造と非平衡輸送

(九大院理) 田中健太郎, 木村康之

【はじめに】

負の誘電異方性を有するネマチック液晶にある閾値以上の交流電圧を印加すると、電気流体力学効果から様々な電気対流パターンが現れる。特に、液晶の配向軸がセル平面と垂直であるホメオトロピック配向系では、フレデリクス転移による液晶配向の自発的対称性の破れから、南部-ゴールドストーンモードが存在し、「ソフトモード乱流」と呼ばれる時空間カオスが発生することが知られている[1]。また、ある周波数でリフシツ転移が起き、その前後でソフトモード乱流は等方的な乱流である”オブリク・ロール(OR)” (図1) と異方的な乱流である”ノーマル・ロール(NR)” (図2) の異なるパターンを示す。

本研究では、差分画像解析法の1つであるDDM(動的差分顕微鏡法)を用いて、パターン揺らぎの中間相関関数を求めることで、NRとORにおけるソフトモード乱流のパターンダイナミクスの情報を得た。さらに、ソフトモード乱流中に数ミクロンサイズの粒子を分散させ、乱流によって駆動される粒子の非熱的ブラウン運動を解析することでも、ソフトモード乱流のダイナミクスに関する情報を得た。

【結果と考察】

ORではパターンの2次元パワースペクトルが等方的なリング状(図1の内挿図)となるため、角度方向に平均して中間相関関数を算出した。得られた中間相関関数は短時間領域では代数的に減衰し、長時間領域では指数減衰する“2重緩和”を示した。この結果は画像ゆらぎ相関測定による既報[2]と一致した。

一方、高周波数電場下で出現するNRでは、その2次元パワースペクトルは異方的になり(図2の内挿図)、角度範囲を限定して平均することで中間相関関数を算出した。その結果、ORと同様の2重緩和を示すことがわかり、基本的に双方のダイナミクスには違いがないことが分かった。

また、OR中に蛍光シリカ粒子を分散させ、粒子追跡法によりその平均2乗変位MSDの時間 t 依存性を測定したところ、 $MSD \propto t^{1.5}$ 、 $MSD \propto t^2$ となり、2つの異常拡散モードがあることが分かった。

【参考文献】

- [1] Y. Hidaka, K. Tamura and S. Kai. Prog. Theor. Phys. **161**, 1 (2006).
 [2] T. Narumi, *et al.*, Phys. Rev. E **87**, 012505 (2013).

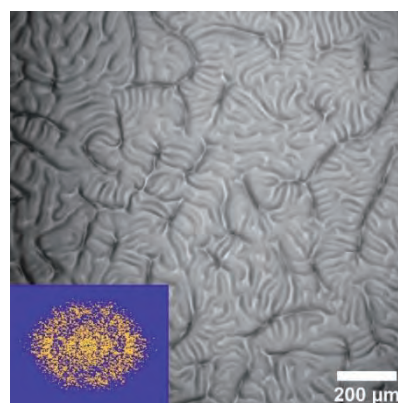


図1. ORパターンと2次元パワースペクトル。

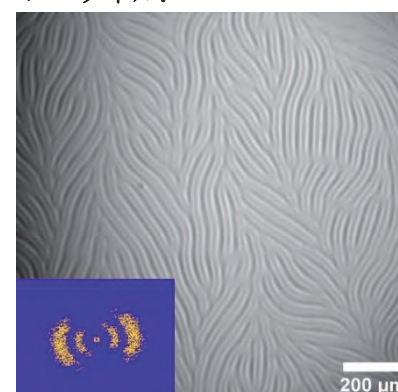


図2. NRパターンと2次元パワースペクトル。

水中で自走するコレステリック液晶液滴の運動

(九大院理) 津田健吾, 木村康之

【はじめに】

細胞や生物個体、樟脳船、アルコール液滴など自ら推進力を生み出し自律的に運動する物体、およびその集団は「アクティブマター」と総称され、その運動メカニズムの統一的な理解を目指した研究が近年進められている。例えば、溶液中を自己駆動する液滴系では、変形と運動の結合により液滴が様々な特徴的な運動を示すことが理論的・実験的に明らかになっている[1]。本研究では内部に秩序構造を持つ油滴であるコレステリック液晶液滴を界面活性剤 TTAB 水溶液中に分散し、その自発的な運動を研究した。

【結果と考察】

実験では、ネマチック液晶にキラル剤を添加することで作成したコレステリック液晶を用い、キラリティーとサイズの両方を変化させつつ運動モード変化を調べた。既報ではキラリティーが高い系での特徴的な運動が報告されている[2]が、本研究ではキラリティーが低い系を用いてネマチック液晶液滴との運動の差異に注目した。その結果、液晶液滴の溶解に伴い、(1)液滴サイズが時間とともに単調に減少すること、(2)サイズの減少に伴い、ランダム運動、らせん運動、直線運動と運動モードが変化することがわかった。ことに中程度のサイズの液滴では、図1に示すようならせん運動を行う。この際の液滴の平均2乗変位 MSD、および瞬間速度ベクトルの角度相関関数 $C(t) = \langle \mathbf{v}(t+t_0) \cdot \mathbf{v}(t_0) / (|\mathbf{v}(t+t_0)| |\mathbf{v}(t_0)|) \rangle$ を各々図2、図3に示す。MSD では短時間、長時間ともに t^2 に比例し、中間の時間領域では振動運動に対応した振動が現れた。 $C(t)$ はらせんの振動周期に合わせた振動が現れた。初期のキラル剤の仕込み濃度による運動モードの変化についても発表では議論する。

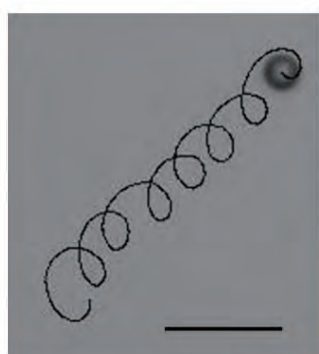


図1 コレステリック液晶液滴の二次元軌跡(スケールバー30 μm)

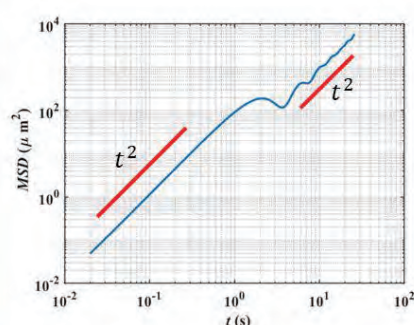


図2 平均2乗変位(MSD)

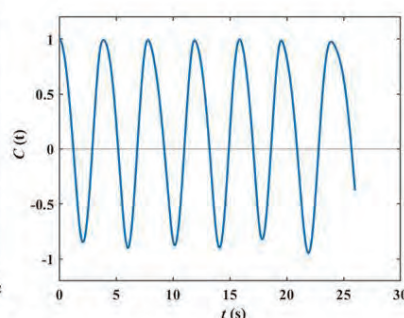


図3 速度の角度相関

【参考文献】

- [1] Y. Sumino, et al. Phys. Rev. Lett. **94**, 068301 (2005).
- [2] T. Yamamoto and M. Sano, Soft Matter **13**, 3328 (2017).

シリコンオイルコーティングされた粉体の 圧縮速度による破壊挙動の変化

(都立大物理) 越智 友都, 谷 茉莉, 栗田 玲

【はじめに】

粉体に液体が加わると、液架橋により粒子間の実効的な相互作用が大きくなり、力学的特性が大きく変化する(1). 我々は濡れた砂よりも安定的に力学的特性を制御できる粉体としてシリコンオイルコーティングされた砂に着目した(2). これまでの研究ではシリコンオイルコーティングされた砂と同サイズのコーティングされていない砂を混合し、その質量比 α を変化させて充填率や安息角の測定を行うと、これらの値が混合比 α によって大きく変わることがわかっている. 今回、我々は、円筒状のランダム最密充填状態の粉体を、上部から一定速度で圧縮し、垂直抗力を測定した. 本実験では、この混合粉体系の内部構造をより正確に考察するために新たなパラメータとして圧縮速度を導入した.

【結果と考察】

我々は、混合粉体系を圧縮した際のカ-圧縮深さのグラフがS字カーブになり、プラスチックやゴムの応力-歪み曲線に類似していることを発見した. 力測定と同時観察を行った結果、極大値の時はまだ粉体系は崩壊しておらず、極小値になるあたりでひび割れが起こることがわかった. 発表では、圧縮速度 $v=0.1$ mm/s と $v=1.0$ mm/s の時の結果も示しメカニズムについて説明する.

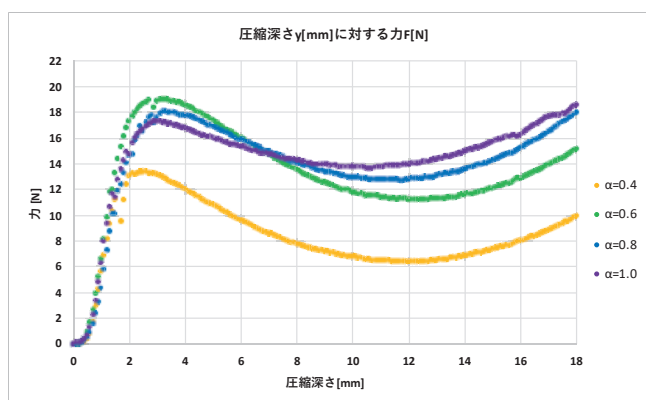


図 . 圧縮深さに対する力(圧縮速度 $v=1.0$ mm/s,混合比 $\alpha=0.4,0.6,0.8,1.0$)

【参考文献】

- (1) N. Mitarai and F. Nori, *Advances in Physics* **55**, 1 (2006).
- (2) M. Tani, H. Fujio, and R. Kurita, *J. Phys. Soc. Jpn.* **90**, 033801 (2021).

lock-exchange 条件における流動場の実験観察

(都立大物理) 井出薫, 谷茉莉, 栗田玲

【はじめに】

自由表面を有する流体の研究において、静止した状態の液体が流動し、液体の表面が不安定化する挙動は、代表的な問題として広く取り扱われている。これはダムの放水、雪崩や溶岩流などの流れにも関係するため、物理・数学・地学などの分野で、実験やシミュレーションにより、広く研究されてきた(1,2)。実験研究は液体を壁で仕切り、それを引き抜く「lock-exchange」と呼ばれる系で多く実験が行われてきた(1)。しかし、この方法は壁を引き抜く際に液面に人為的攪乱を与えてしまう。流体は乱流や気象現象において初期値鋭敏性が見られるという報告があり、初期状態の人為的攪乱は流体の挙動に影響している可能性がある。一方、静止状態から液体が不安定化する様子を調べた実験研究は実験難易度が高いためにほとんど行われてこなかった。

【結果と考察】

人為的攪乱を伴わない流動液体の観察方法としては、これまでに、ゼラチンゲルを用いた lock-exchange の実験系が提案されている(3)。我々はこの系を拡張し、人為的攪乱を伴わず、静止状態から液体が流動する現象を観察する実験系を構築した。

アクリル板を用いたギャップ 2.0 mm の疑 2 次元セルに 5 wt% のゼラチン溶液 1 mL (粒径 1 μm のラテックス粒子 10 μL を混合した) を斜めに固め、面加熱ヒーターにより様に温めて、ゼラチンを液体状態に変化させ、液体が流れる様子を観察した。また、ゼラチン内部のラテックス粒子に対して PIV 解析を行うことで、ベクトル場を解析し、液体内部の流動場を観察した。

上記の実験により、右図のように、融けて流れたゼラチンの表面が大きく波打つ様子が確認された。サーモカメラでセル表面の温度の時間変化を測定したところ、セルの温度分布に若干のムラはあるものの、ゼラチン表面が大きく流動する頃には、ゼラチン全体がゾルゲル転移温度以上に達していることがわかった。そして、PIV 解析から、内部の流速は小さく、表面付近の流速が大きいことが判明した。

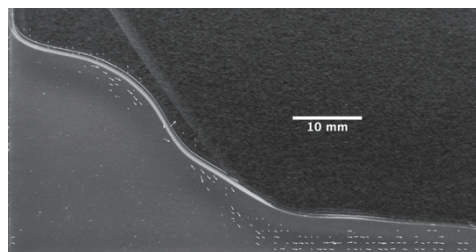


図:ゼラチン表面が波打つ様子

そこで、波打ちが生じた表面付近のラテックス粒子の流速を測定し、Nusselt flat film solution という定常液膜流の理論式(4)から導かれる平均流速の理論値と比較したところ、オーダーが一致した。この結果から、表面の波打ちが生じる現象は、表面付近のゼラチンの流速が大きく、その液膜流が重力と粘性散逸の効果により不安定化した可能性があると考えられる。

本講演では、上記の結果と考察について報告する。

【参考文献】

- (1) J. C. Martin, *et al.*, *Philosophical Transactions of the Royal Society of London. Series A, Mathematical and Physical Sciences*, **244** 312-324 (1952).
- (2) S. Shao and E.Y.M. Lo, *Advances in Water Resources* **26**, 787-800 (2003).
- (3) K. U. Kobayashi and Rei Kurita, *Physical Review Fluids* **4**, 013901 (2019).
- (4) 藤井哲「膜状凝縮熱伝達」(九州大学出版会).

散逸粒子動力学法による膜融合を引き起こすベシクルの形状解析

(東薬大生命) 土屋開音, 森河良太, 野口瑠, 高須昌子

【はじめに】

ナノサイズのベシクルは、高い溶解性、低い毒性、薬物放出のための高い感受性など様々な利点を有しており、Drug Delivery System(DDS)の有用なツールになりうる。T.Yueらは散逸粒子動力学(DPD)法を用いて、細胞膜を模した脂質二重層とベシクルの相互作用を解析したが[1]、ベシクルの初期形状は球形に限定されており、初期形状が相互作用に及ぼす影響については解析していなかった。一般に、ナノ粒子の形状は、細胞内への取り込みやすさを決定する要因のひとつとして知られているため[2,3]、ベシクルの形状変化は薬物送達を向上させる要因となりうる。そこで本研究は、DPD法を用いて様々な形状のナノサイズベシクルと細胞膜の相互作用について系統的に解析することを目的とする。

【結果と考察】

本研究では脂質分子の疎水基を3個、親水基を1個のDPD粒子で表し、3分子の水を1個のDPD粒子で表すモデルを用いた。またシミュレーションでは、温度・圧力一定の条件下で十分な緩和を行ったベシクルおよび脂質二重層を初期構造に用いた。はじめに球形ベシクルと脂質二重層の融合シミュレーションを行なった。Figはその過程を示しており、ベシクルが脂質二重層へ取り込まれ、ベシクル内の水粒子が流出していく様子を確認することができた。このときベシクルから放出された水粒子の挙動を解析する方法として、水粒子の個数と拡散係数を調べた。当日は球形ではないベシクルの融合シミュレーションから得られた結果についても併せて報告する予定である。

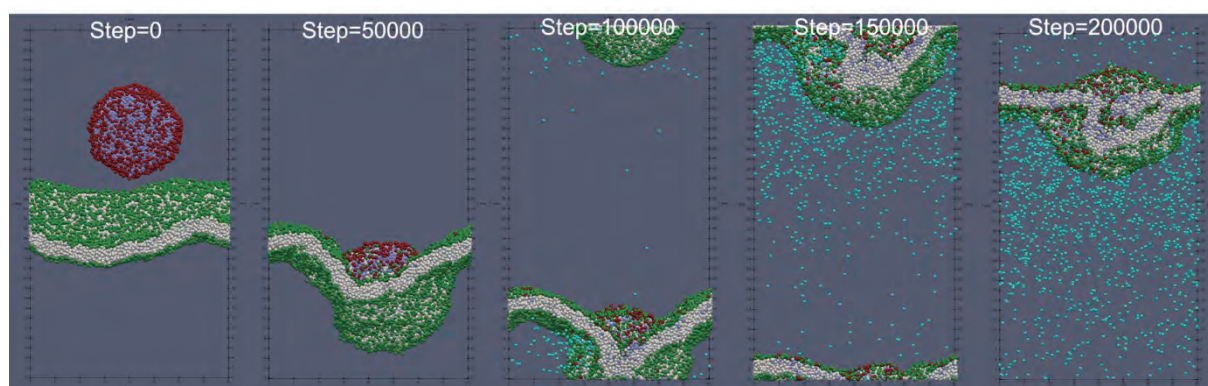


Fig : 膜融合の様子. 赤粒子はベシクル親水基, 紫粒子はベシクル疎水基, 緑粒子は脂質二重層親水基, 白粒子は脂質二重層疎水基, 青粒子はベシクル内の水を表す.

[1] T. Yue, X. Zhang, *Soft Matter*, **9**, 2013.

[2] F. Tian, T. Yue, Y. Li, X. Zhang, *Science China Chemistry*, **57**, 2014.

[3] N. Liu, M. Becton, L. Zhang, X. Wang, *The Journal of Physical Chemistry B*, **124**, 2020.

振動下における濃厚懸濁液のクライミング現象

(筑波大学生命環境) ○杉本卓也, 佐藤駿介, 石橋諒一, 小林幹佳

【はじめに】

高分子溶液や粒子濃厚スラリーあるいはそれらの混合系といったコロイド懸濁液の流動制御は、塗料や電池に利用されるナノ粒子スラリーのように産業分野でも重要な課題である。コロイド懸濁液は一般に、コロイド粒子の濃度や粒子間に働く相互作用に依存して、複雑かつ非線形な流動特性を示す。特に、濃厚コロイド懸濁液では、粘度がせん断速度とともに減少するシェアシンニングを示し、さらにせん断速度を増加させると、あるせん断速度以上でせん断速度とともに粘度が増加するシェアシッキングを示す。前者は流れによる懸濁液構造の破壊、後者は流れによる粒子の接触にともなう摩擦によるものと考えられており、実際に流体力学的な潤滑効果や接触力学を考慮したシミュレーションによって半定量的に再現されることで、近年そのミクロな理解が進んできた。一方で、このようなミクロな理解と産業的に重要なマクロな流動との接続は未だ十分ではない。本研究では、振動条件下で濃厚シリカ-水懸濁液が見せるマクロな流動現象について報告する。

【結果と考察】

濃厚なコロイド懸濁液が、振動条件下においてまるで生き物のように踊るような現象を見せることは知られていた²⁾。最近、我々は濃厚なシリカ-水懸濁液が、振動条件下においてあたかも重力に逆らって容器の壁面を登る、クライミングサスペンションと呼ぶべき特異な流動現象を見出した (Fig. 1)。このクライミングサスペンションは特定の水分量で、ある程度高い振動数以上の振動条件下で発生した。また、レオロジー測定の結果から、クライミングサスペンションを示す懸濁液はシェアシッキングを示し、かつ動的粘弾性測定において高振動数条件下でゲル化する性質をもつことが確認された。シェアシッキングは懸濁液内におけるフォースチェインネットワークの発達に起因すると考えられている。以上から、振動条件下でのフォースチェインの形成と消滅による履歴効果がクライミングサスペンションの発現に寄与していると考えられる。

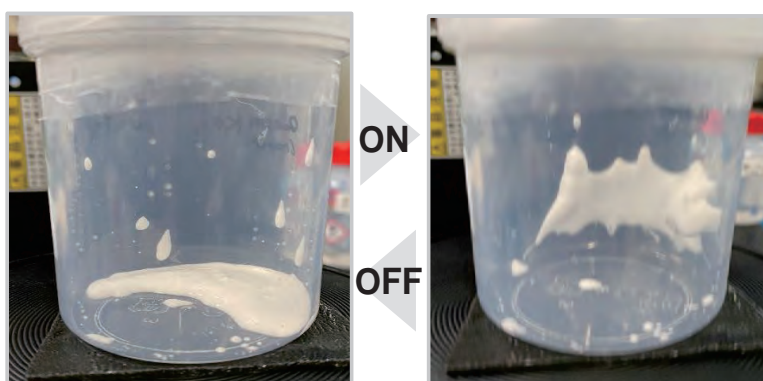


Fig. 1. A suspension of colloidal silica and water climbed the container wall under vibration. The left picture shows the suspension at rest, and right one is under vibration. The climbing suspension is a reversible phenomenon by switching on/off the vibration.

【参考文献】

- (1) R. Mari and R. Seto *et al.*, PNAS, 112(50), 15326-15330, 2015.
- (2) E. Brown, and H. Jaeger, Rep. Prog. Phys., 77(4), 046602, 2014.

2次元空間中の柔らかい粒子が示す融解転移

東北大学情報科学研究科 西川 宜彦

パリ高等師範学校 Werner Krauth

パリ市立工業物理化学学校 A. C. Maggs

【はじめに】

2次元空間中の粒子系は十分低温/高密度で固体相を持ち、高温/低密度での液体相との間に、相互作用や粒子の形に応じた融解転移を示す。融解転移の代表的な理論的シナリオとして、(i)液体相と固体相の間の1次転移と(ii)液晶的な中間相(hexatic相)を経た2度のKosterlitz-Thouless転移の2つが長らく議論され、実験やシミュレーションによる研究が盛んに行われてきた。2011年の大規模なモンテカルロシミュレーションを用いた研究 [1] によって、剛体球では上記のいずれとも異なり、固体-hexatic相間のKT転移とhexatic-液体相間の1次転移を経た融解現象を示すことが分かった。以降、多くの柔らかい粒子の融解現象の研究が行われているが、代表的なモデルである逆ベキ型の相互作用を持つ系とLennard-Jonesモデルの相転移については未だ議論が続けられており、近年でも矛盾した結論を主張する論文がいくつか出版されている [2-5]。そこで我々はGPUを用いて、逆ベキ型の相互作用を持つ系とWeeks-Chandler-Andersen(WCA)モデルの、 10^6 粒子程度までの高精度なモンテカルロシミュレーションを行い、特に状態方程式に注目してその融解転移を調べた。

【結果と考察】

モンテカルロシミュレーションで得られた状態方程式から、相転移近傍での自由エネルギー障壁の大きさを推定し、そのシステムサイズ依存性から相転移の性質の同定を行ない、下の結果が得られた。

(i) 逆ベキ型相互作用 r^m では、hexatic-液体相転移の性質がパラメータ m に依存し、 $m=24$ では一次転移、 $m=12$ 及び $m=8$ ではKT転移であることが分かった。これは臨界値 m_c が $12 < m_c < 24$ であることを意味する。

(ii) WCAモデルでは温度によって相転移の次数が変わり、低温($T=8$)では一次転移、高温($T=100$)ではKT転移であり、臨界点は極めて高温にあることが分かった。高温でのWCAモデルは $m=12$ での逆ベキ型相互作用が支配的であり、(i)での結果と整合する。

我々の結果は[2-5]のいずれの結果も定量的に誤りであることを示す。その理由として、非常に大きな有限サイズ効果と極めて長い平衡化時間について議論する。

【参考文献】

- [1] E. P. Bernard and W. Krauth, Phys. Rev. Lett. **107**, 155704 (2011)
- [2] S. C. Kapfer and W. Krauth, Phys. Rev. Lett. **114**, 035702 (2015)
- [3] A. Hajibabaei and K. Kim, Phys. Rev. E **99**, 022145 (2019)
- [4] Y.-W. Li and M. P. Ciamarra, Phys. Rev. E **102**, 062101 (2020)
- [5] O. Toledano *et al.*, Phys. Rev. E **103**, 094107 (2021)

散逸粒子動力学法による二重架橋ゲルの構造解析

(東薬大生命) 佐藤秀、森河良太、野口瑤、高須昌子

【はじめに】

高分子ゲルは三次元網目構造を持つ高分子と溶媒から成る物質である。高分子の網目構造がフリーラジカル重合によってできた共有結合と、モノマー分子間の水素結合により形成されているゲルが報告されている[1]。本研究では散逸粒子動力学(DPD)法を用いたシミュレーションにより、共有結合と水素結合が高分子の網目構造に与える影響を調べることを目的とする。まず、共有結合のみの網目構造を得るために、フリーラジカル重合を模したシミュレーションを行なった[2]。その後、ランダムに粒子のペアを選び、それらを水素結合を模したボンドで結合した。粒子の種類は開始剤分子、架橋剤分子、モノマー分子、溶媒分子の4種類あり、それぞれ1つのDPD粒子として粗視化した。

【結果と考察】

20×20×20のセルに24000個のDPD粒子をランダムに配置して初期構造とした。DPD粒子の内、12000個が溶媒粒子、148個が開始剤粒子、架橋剤粒子を任意の数 N_c として、残りの粒子をモノマー粒子とした。平衡化のための計算を 1×10^5 ステップした後、フリーラジカル重合を模したシミュレーションを 1×10^6 ステップ行い、共有結合のみの網目構造を得た。それぞれのシミュレーションはNPT一定かつ、周期境界条件を適用して行なった。シミュレーションの結果から、反応率を調べた(図1)。架橋剤粒子の数によらず、反応率は0ステップから 4×10^5 ステップまでの間に大きく増加していることがわかった。次に、シミュレーション終了時の最大クラスターに対してボックスカウント法を行い、フラクタル次元 D の解析を行なった。その結果、図2のように架橋剤粒子の数 N_c が多くなるとフラクタル次元は大きくなることがわかった。水素結合をモデルに加えた際のゲルの構造については当日発表する。

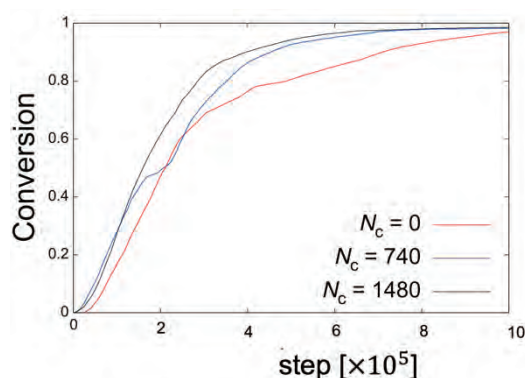


図1. 架橋剤粒子の数 N_c ごとの反応率

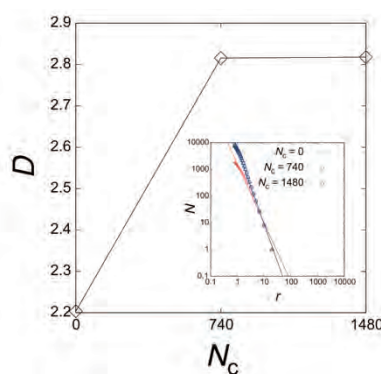


図2. 架橋剤粒子の数 N_c とフラクタル次元 D の関係

【参考文献】

- [1] Zhang, N. X, Wang, J. Y, Sun S, Hou, L, Wu, P, Wu L. Z, Zheng Q, *Macromolecules*, **51**, 2018.
- [2] X. Yong, O. Kuksenok, A. C. Balazs, *Polymer*, **72**, 2015.

濃厚なシリカ-PEG 懸濁液のシェアシックニング

¹ 筑波大学生物資源学類, ² 筑波大学生命環境系

○石橋諒一¹, 杉本卓也², 小林幹佳²

【はじめに】

固体の微粒子が高濃度に分散した懸濁液では、剪断速度の増加につれて粘度が増加する。これをシェアシックニング (ST) という。効率的な工業プロセスの立場からは、懸濁液の ST を防ぐ必要がある。その一方、ST 液を衝撃吸収に利用することも検討されている。いずれにおいても、濃厚な微粒子懸濁液の ST を制御することは重要な課題である。コロイド粒子懸濁液の ST は、粒子間の流体力がブラウン運動や電気二重層 (EDL) による斥力を上回った場合に起きることが指摘されている。Mari ら[1]は、ブラウン運動と EDL 斥力が影響する球粒子懸濁液のシミュレーション結果から、ST が発生する際の剪断応力 σ_c が、 $\sigma_c \approx 5k_B T/a^3 + 0.01F^*/a^2$ となることを示した (k_B : ボルツマン定数, T : 絶対温度, F^* : EDL 斥力の最大値, a : 粒子半径)。本研究では、球状のシリカ微粒子をポリエチレングリコール(PEG)200 に分散させた懸濁液における σ_c を、様々な a および塩濃度において測定し、Mari ら[1]の関係式を検討した。

【結果と考察】

本研究と既往研究の実験値、さらに Mari ら[1]の関係式による計算値を Fig. 1 に示す。Fig. 1 の通り、電解質または酸の添加により EDL 斥力が弱められた系の実験値は、Mari らの式で $F^* = 0$ とした $\sigma_c \approx 5k_B T/a^3$ に近い。一方、電解質が添加されておらず、EDL 斥力が支配的な系では、 $F^* = 0.3$ nN と仮定することで、Mari らの計算結果と実験値とが良好に一致することがわかった。このことは EDL 斥力の予測や制御が、ST 発現の予測や制御に繋がることを示唆している。

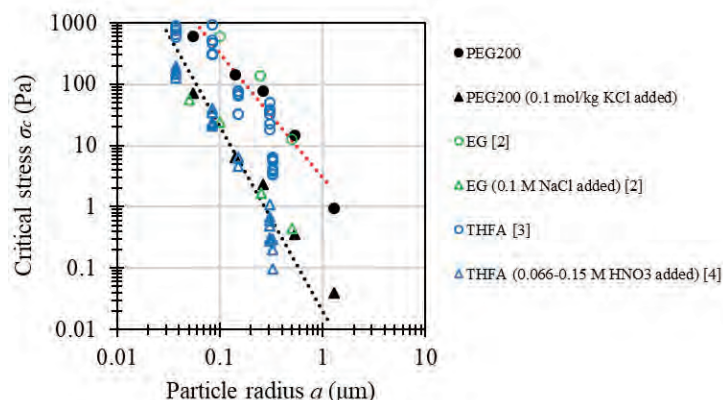


Fig. 1 Critical stress at the onset of shear thickening (σ_c) plotted against particle radius (a) for concentrated silica suspensions, ●: 52 vol% silica + polyethylene glycol(PEG) 200 (this work), ▲: 52 vol% silica + PEG200 + 0.1 mol/kg KCl (this work), ○ from ref. [2], △ from ref. [2], ○ from ref. [3], △ from ref. [4]. The dotted lines are $\sigma_c = 5k_B T/a^3 + 0.01F^*/a^2$ ($T = 293$ K) with $F^* = 0$ for the black line and $F^* = 0.3$ nN for the red line.

【参考文献】

- [1] Mari *et al.*, PNAS, 112, 15326, 2015
- [2] Nakamura *et al.*, Coll. Surf. A, 623, 126576, 2021
- [3] Maranzano and Wagner, J. Chem. Phys., 114, 10514, 2001
- [4] Maranzano and Wagner, J. Rheol., 45, 1205, 2001

粒子追跡法による Tetra-PEG ゲルのゾル-ゲル転移挙動の観察

遠藤 周*、榎 靖幸**、安中 雅彦**

(九州大学大学院理学府化学専攻*、九州大学大学院理学研究院化学部門**)

【はじめに】

ゾル-ゲル転移点近傍における臨界挙動はパーコレーション理論により説明される。様々な系においてゾル-ゲル転移の臨界指数が実験的に求められ、理論との比較が行われているが、指数の値は実験系に依存して幅があり、その原因について未だはっきりした説明は与えられていない。末端に官能基を有する 4 本の PEG 鎖をもつ星型ポリマーの末端間架橋反応により合成される Tetra-PEG ゲルは、架橋点間分子量が一定の均一なゲルであり、従来のゲルと比較すると、構造が明確であるという特徴がある。本研究では、Tetra-PEG ゲルのゾル-ゲル転移の臨界挙動を調べることを目的とする。ゾル-ゲル転移では、弾性率や最長緩和時間などのレオロジー的な量の臨界挙動が議論される。通常のレオロジー測定では、系に巨視的な変形を与える必要があるため、臨界点近傍では網目構造を破壊してしまう恐れがある。このため、本研究では、試料に懸濁した微粒子のブラウン運動によりレオロジー的性質を検出する、粒子追跡法を用いてゾル-ゲル転移挙動の観察を行った。

【結果と考察】

分子量が 20 kg/mol で末端にアミノ基または N-ヒドロキシスクシンイミジル基を持つ 2 種類の Tetra-PEG 溶液を混合することで、末端間架橋によりゲルを調製した。総ポリマー濃度を一定にして、2 種類のポリマーの比率を変えることにより、ゲル化の進行度を制御した。種々の混合比の試料について、懸濁させた蛍光ポリスチレン粒子の平均二乗変位($\Delta x^2(t)$)をそれぞれ求め、曲線を平行シフトさせると、Fig. 1 のようにプレゲル領域とポストゲル領域でそれぞれ重ね合わせることができた (time-cure superposition⁽¹⁾)。一般化 Stokes-Einstein 関係式より、系のコンプライアンス $J(t)$ は $\langle \Delta x^2(t) \rangle = J(t)kT/3\pi a$ の関係がある (a はプローブ粒子径) ので、臨界ゲルにおけるべき乗則 $J(t) \propto t^n$ の指数 n を $\langle \Delta x^2(t) \rangle$ の傾きから求めることができる。また、重ね合わせにおける横軸と縦軸のシフトファクター (それぞれ a_t と b_t) は最長緩和時間 τ の逆数と平衡弾性率 G_e に比例するので、ここから τ と G_e に対する臨界指数 (それぞれ y と z) を求めることができる。Fig. 1 の測定条件で得られた指数は $n=0.78 \pm 0.02$ 、 $y=3.3 \pm 0.1$ 、 $z=2.4 \pm 0.1$ であった。また、 $z/y=0.75$ であり、ここからパーコレーション理論における関係式 $n=z/y$ が成立することが示された。

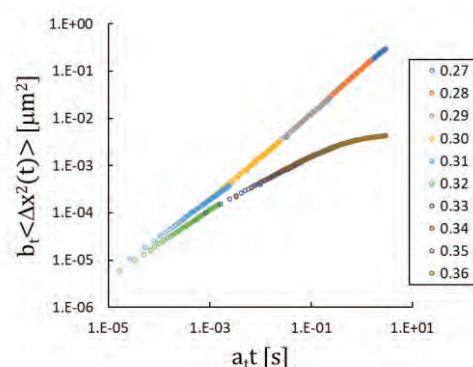


Fig.1 粒子の平均二乗変位の重ね合わせ
(time-cure superposition)

【参考文献】

(1) Larsen, T. H. and Furst, E. M. *Phys. Rev. Lett.* **100**, 146001 (2008).

ソフトアクチュエータの開発を目指した多糖高分子ゲルの高強度化

(山形大院理工) 藤原尚史、[○]吉田一也

【はじめに】

従来のアクチュエータとしては、モーターやエンジンなどが代表例として挙げられる。特にモーターはおもちゃから電気自動車まで幅広い方面で応用がなされている。しかし、モーターが動作する際には特有の音が発生し、典型的な「機械音」となってしまう。家庭用のペットロボットなど、より実物に近い生物規範型のソフトロボットの開発には、大きな障壁となる。また、モーターは基本的に硬く、ソフトロボットの胴体を構築するには適さない。

そこで、多糖高分子を含む、温度変化に応じて静音で動作するゲルアクチュエータの開発に着目した。多糖高分子は天然にも多く存在し、石油由来の高分子とは異なり環境負荷が低いとされている。また、我々ヒトを含めた多細胞生物は、おおよそ細胞外マトリクスの中に細胞が入り込んでいるような構造である。この細胞外マトリクスは高分子ネットワークの中に水を含んだゲルである。ゲルをアクチュエータへ活用することで、より実物に近い生物規範型のロボット開発へとつながる。

本研究においては、多糖高分子ヒドロキシプロピルセルロース(HPC)をアクチュエータとして駆動するための高分子として設定する。HPC は下限臨界溶液温度(LCST)を持ち、温度変化に応じて水との親和性が変化する。架橋し水を含んだ場合は温度変化によりゲル自体の膨潤/収縮が制御できる。このような多糖高分子を活用したゲルアクチュエータの実用性を高めるため、二種類の高分子ネットワークを組み合わせるダブルネットワーク(DN)構造を構築することで(1)、高強度化を試みる。

【結果と考察】

本研究では、HPC/*N,N*-ジメチルアクリルアミド(DMAAm)のDNゲルを第一段階として、HPC/キトサンの多糖高分子を組み合わせたゲルの作製を試みている。

HPC/DMAAmのDNゲルでは、最大圧縮応力がHPC単一のゲルに比べて、5倍程度を実現し、高強度化に成功した。また、温度変化に伴う重量変化(膨潤率変化)においては、室温での重量を1とした場合、高温時に0.7倍程度まで減少した。この結果により、HPCに加えてDMAAm高分子を組み合わせた場合でも、アクチュエータとしての機能を保てること示された(2)。

さらに、HPC/キトサンのDNゲルは図1のように作製できた。今後、物性を調べ、アクチュエータとしての機能を検証する。

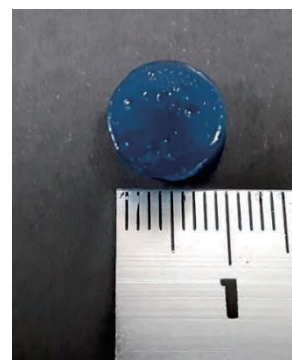


図 1. HPC/キトサンゲル。

【参考文献】

- (1) J. P. Gong *et al.*, *Adv. Mater.* **15**, 1155–1158 (2003).
- (2) N. Fujiwara and K. Yoshida, to be submitted.

液晶ナノエマルジョンの磁場による複屈折誘起

(京大院理)松村 大毅, 柳島 大輝, 山本 潤

【はじめに】 液晶ナノエマルジョン(Liquid Crystalline Nano Emulsion :LCNE)は数 100nm の半径を持つミセルの内核に液晶分子の入ったミセルを水中に分散させたものである。ミセル中の液晶分子がネマティック(N)相状態となっても、ミセル中の N 相の異方軸は、水溶液中でランダムな方向を向くため、マクロには複屈折を示さず、溶液は透明である。一方、磁場、電場、光場などで液晶の方向をそろえてやることできれば、巨視的に異方性を示し複屈折を誘起できる。本研究は、LCNE に磁場を印加することで複屈折が誘起されることをはじめて確認した。また、磁気誘起複屈折のダイナミクスを観測し、メカニズムについて考察した。

【結果と考察】 7cb と界面活性剤(PEO-PCNEPHMA)を用いて LCNE を作成した。動的光散乱(DLS)測定で半径を測定したところ、 $3.0 \times 10^2 \text{nm}$ であった。

磁場とそれぞれ 45 度の角度をなすように、2 枚の偏光板をクロスニコル配置で設置して磁場を印加した(図 1)。図 2 に、磁場印加直後の透過光強度の時間変化を示す。印加された外部磁場が LCNE 中の N 液晶分子に磁気異方性に起因した回転トルクを与えることで、各 LCNE の異方軸が磁場方向に揃うために、透過光強度が変化したと考えられる。

LCNE 中の N 相のダイレクターの回転は、いくつかのダイナミクスが考えられる。例えば、ミセル全体が水中で回転する方法と、液晶がミセルの内部でミセルに対して回転する方法の 2 つがあると考えられる。ミセルが回転するとすると、その方向の確率密度 $P(\theta, \phi, t)$ は

$$P(\theta, \phi, t) \approx \frac{1}{4\pi} \left(1 + \frac{\Delta\chi B^2}{36\mu_0\eta D_r} (1 - e^{-D_r t}) (3 \cos^2 \theta - 1) \right)$$

で緩和する。水の粘性率やミセルサイズを代入して見積もられる緩和時間 $\tau_{theory} = \frac{1}{D_r} = 0.13 \text{ sec}$

は実験結果と一致しない。また、 τ_{theory} は半径の 3 乗に比例するが、半径 200nm の LCNE でも透過光強度の計測を行ったところ、0.56sec の緩和時間を得、大きな半径依存性は確認されなかった。したがって、液晶はミセル内部で磁場方向へと配向を変化させている可能性がある。

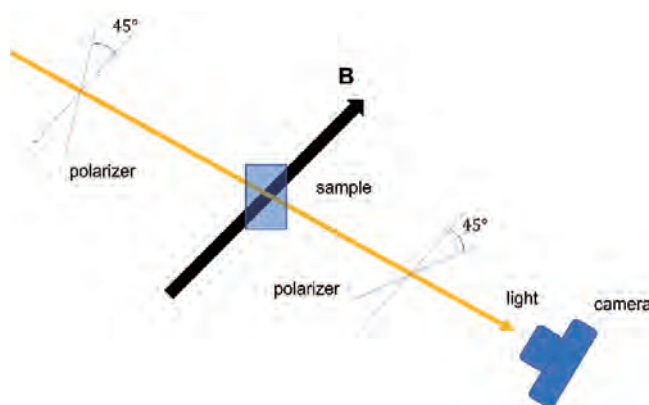


図 1 実験系の概要

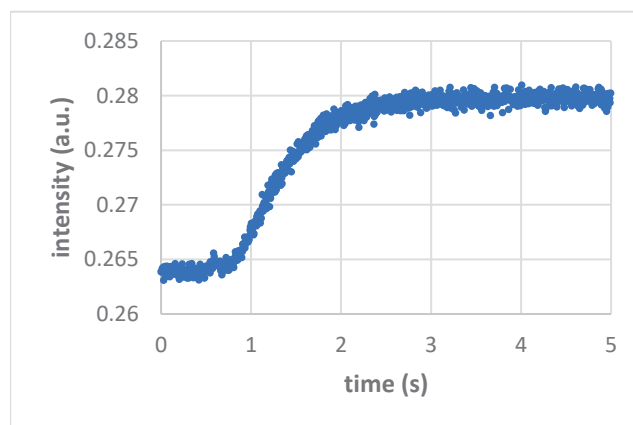


図 2 透過光強度の時間変化 温度 30°C 緩和時間は 0.64sec 磁場は 0.5 秒後に印加開始

Newtonian Event-Chain モンテカルロ法の平衡緩和 —高密度 2 次元剛体球系で生じるホッピング鎖の拡散特性—

(名工大院工) 麦田 大悟, 磯部 雅晴

【はじめに】

分子シミュレーションでは、完全に平衡状態に達した系における物性を把握することが重要である。しかし、高密度系や大規模系における緩和は非常に長い時間を要することがあるため、これまで効率の良い手法の開発が盛んに行われてきた。近年、イベント駆動型分子動力学法(EDMD)(1)の要素を取り入れた Event-Chain モンテカルロ法 (ECMC)(2)である、Newtonian Event-Chain モンテカルロ法 (NEC)(3)が提案された。NEC は拡散効率や融解過程での緩和効率において、他のアルゴリズムと比較して明確な優位性を示した。しかし、その効率の差異がどのような微視的メカニズムから生じるのか未だ分かっていない。

【結果と考察】

アルダー転移点以上の高密度 2 次元剛体球系において、EDMD、Straight-ECMC、NEC を用いて拡散特性を調べたところ、全ての手法で粒子占有率依存性が見られた。この原因を調べたところ、図 1 のような局所拡散の生じ方が原因であることが分かった。また、局所拡散が生じている領域のミクロな解析の結果、これはガラス系でよく見られるホッピング鎖運動(4, 5)により生じていることが分かり、この運動が生じる頻度について手法間の違いが見られた。講演では、粒子占有率依存性、方法論依存性を系統的に調べ、NEC の拡散効率の優位性の原因について考察する。

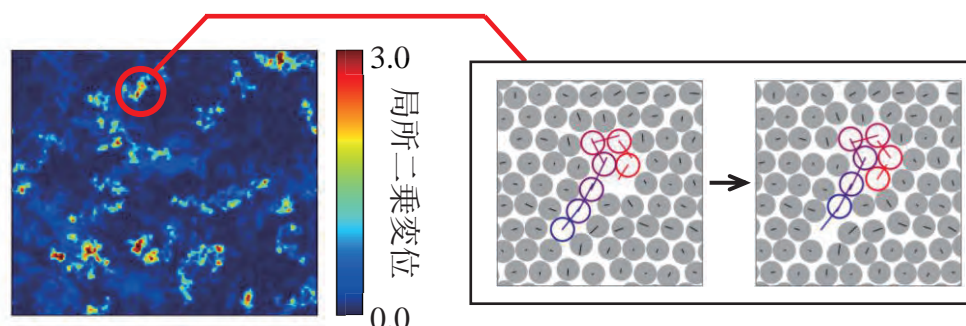


図 1 粒子占有率 0.74、粒子数 256^2 の系における、NEC による $10^4 N_{\text{disp}}/N$ 間の局所二乗変位(左)と $300 N_{\text{disp}}/N$ 間の粒子変位(右)。ただし、 N_{disp} は系全体の粒子の変位回数であり、 N は粒子数である。ホッピング鎖運動による局所的な拡散が生じていることが分かる。

【参考文献】

- (1) B. J. Alder and T. E. Wainwright, *J. Chem. Phys.* **31**, 459 (1959).
- (2) W. Krauth, *Front. Phys.* **9**, 229 (2021).
- (3) M. Klement and M. Engel, *J. Chem. Phys.* **150**, 174108 (2019).
- (4) H. Miyagawa, Y. Hiwatari, B. Bernu and J. P. Hansen, *J. Chem. Phys.* **88**, 3879 (1988).
- (5) C. T. Yip, M. Isobe, C.-H. Chan, S. Ren, K.-P. Wong, Q. Huo, C.-S. Lee, Y.-H. Tsang, Y. Han and C.-H. Lam, *Phys. Rev. Lett.* **125**, 258001 (2020).

液-滴相分離によって生じる細胞内凝集体のマイクロレオロジー

(九州大学大学院理学府) 富田 海理, 藤原 誠, 水野 大介

【はじめに】

最近、タンパク質や核酸の非膜凝集体が細胞内における生化学反応の制御に果たす役割が注目を集めている。これらの凝集体の多くは、細胞質が複数の異なる液体相に相分離(液-液相分離)して生じた“液滴”と考えられているが、その力学的な性質が実測されたことはない。本研究では、細胞培養液に亜ヒ酸を添加しタンパク質のミスフォールドを促進することによって生じる細胞内凝集体の物理的特性をマイクロレオロジー (MR) 計測することで、その力学的安定性や出現機構を考察する。

【結果と考察】

図1にオートファジーの選択的基質タンパク質である p62 を GFP とつないで安定発現させた細胞の蛍光顕微鏡画像を示す。亜ヒ酸(As)を細胞培養液に添加することで、新たにミスフォールドした蛋白質が凝集し、巨大化した p62 凝集体が誘導される¹。GFP に対する抗体を修飾したコロイド粒子をこの凝集体(p62 体)内部に導入して、MR 計測を行った。図2に示す通り、通常の細胞質では揺らぎのパワースペクトル($\omega PSD/2k_B T$) と応答関数 α'' が一致せず、揺動散逸定理(FDT)が破れている。他方、液滴内部では FDT が成り立つ熱平衡状態であった。高周波域では通常の MEF 細胞質のパワースペクトルよりも約1桁大きく、傾きも細胞質にみられる $\omega PSD/2k_B T \propto \omega^{-0.5}$ よりも大きかった。これは液-液相分離された凝集体内では、液体的な速いダイナミクスが維持されていることを示す。他方低周波域では、弾性プラトーの出現に伴い(図3)揺らぎが抑制された(図2)。これは液-液相分離によって形成された濃厚相において、タンパク質分子のゲル化を反映していると推測される。

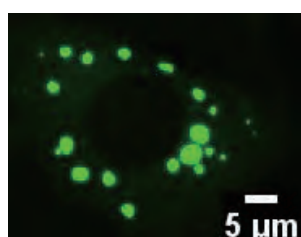
As 10 μ M 添加後 3 時間

図1 細胞内 p62 凝集体

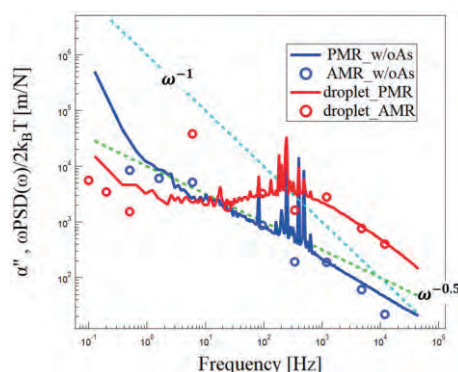


図2 p62 体内部の揺らぎ

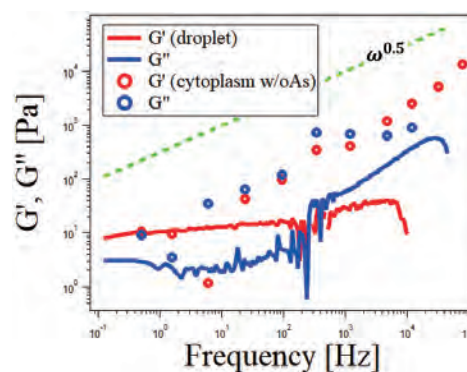


図3 p62 体内部の粘弾性

【参考文献】

- (1) Y. Ichimura, et al. Phosphorylation of p62 activates the keap1-nrf2 pathway during selective autophagy, Molecular cell, 2013.

水-有機溶媒混合系における電気二重層容量測定

(¹九大院理, ²九工大情工) 岩崎 暖人¹, 木村 康之¹, 植松 祐輝²

【はじめに】

電解液に電圧を印加したとき、電解液中のイオンが移動してバルクの電位差を打ち消す。この際、電極と溶液の固液界面近傍で正負の電荷が向き合った、電荷を蓄えることのできる液相が形成される。これを電気二重層と呼ぶ。電気化学はきわめて広

範囲にわたる学問であるが、その中でも電気二重層は、様々な現象に影響を与えることから電気化学において広く注目されている。特に、電極における化学反応が起こらない分極性電極を用いた場合には、電気二重層の形成に伴って平衡状態が達成される。この平衡状態では、電気化学の諸現象をソフトマター物理の枠組みで議論することが可能であると考えられ、電気二重層の構造理解は非常に関心の高い問題となっている。

【結果と考察】

本研究では、水と1-プロパノール(POH)混合溶媒系の電気二重層容量測定を通して、固液界面付近の溶媒組成を検討した。混合溶媒系において電解質や溶媒を選ぶと、電気二重層構造について相転移や局所的な電荷分布といった現象が生じることが報告されている[1]。測定には交流インピーダンス法を用いて測定した。この際、電圧を印加すると極小を持つ電位-電気二重層容量の曲線が得られる[2]。本研究では、この極小の値と溶媒組成の関係を中心に議論する。図1はテトラブチルアンモニウムクロリド(TBAC) 100mM について単位面積当たりの静電容量を水の体積分率に対してプロットしたグラフである。理論計算(橙線)は、デバイ・ヒュッケルの理論式に、水/1-POH 溶液の組成による誘電率変化の実験データ[3]を入力した。このように、組成の中間領域では静電容量の値が変化していないことが分かった。このことから、極小付近の電位では電気二重層がバルクの組成とは異なる組成で構成されていたことが示唆される。

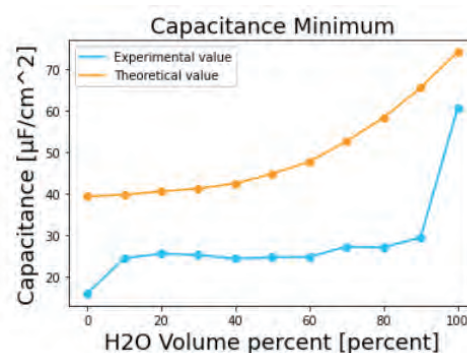


Fig1. Capacitance Minimum in the system

【参考文献】

- [1] S.Yabunaka and A.Onuki , *Phys. Rev. Lett.*,2017,**119**,118001
- [2]. G.Valette , *J. Electronal. Chem.*, 1989, **269**, 191-203
- [3]. T.Sato, A.Chiba and R.Nozaki , *J. Chem. Phys.*,2000, **113**, 9748

高分子をグラフトしたベシクルの膜流動特性

(東北大学大学院 理学研究科) 佐久間 由香

【はじめに】

細胞膜は、脂質二分子膜にタンパク質や糖鎖などの機能性分子が埋め込まれた構造をとっており、それらの機能性分子は膜の流動性を介して細胞外の様々な分子と相互作用することで生体機能を発現している。このため、細胞膜の流動性は細胞機能の発現を理解する上で重要なパラメータである。こうした背景から、脂質から成るシンプルなモデル細胞膜(ベシクル)を用いた膜粘度の測定がなされてきた。しかし実際の細胞膜は脂質の不均一分布や膜から糖鎖などの高分子が伸びているなど複雑な構造を持つ。これまでは、複雑な構造を持つベシクルの膜粘度を測定する適当な手段がなかったために、複雑な構造が膜の流動性にどのような影響を与えているかについてはあまり調べられてこなかった。

最近、我々はマイクロインジェクションを用いた新しい膜粘度測定手法を開発した。本手法では、マイクロインジェクションによりベシクル膜面上に誘起される流動パターンを流体力学モデルと比較することで膜粘度を得る。流動パターンから直接粘度を見積もることができ、複雑な構造を持つ膜にも適用できる。そこで本研究では、マイクロインジェクションを用いた膜粘度測定手法で複雑な構造を持つベシクルの膜粘度を測定し、その構造が膜粘度に及ぼす影響を調べた。

【結果と考察】

はじめに、飽和脂質 DPPC, 不飽和脂質 DOPC, コレステロールの三成分ベシクルが、液体秩序相(liquid ordered: L_o)と液体無秩序相(liquid disordered: L_d)に相分離している領域で、脂質の混合比をさまざまに変えた組成に対して膜粘度を測定した。この結果、 L_d 相の面積が半分以下のときには L_d 相の面積に応じて膜粘度が指数関数的に変化することがわかった。一方、 L_d 相の面積が半分以上のときにはベシクルの膜粘度は L_d 相の粘度で決まり、ほぼ一定値を示すことがわかった。このように、脂質が不均一に分布した膜は、その組成によって膜粘度が大きく変化することが明らかになった。

次に、ベシクルの膜粘度が L_d 相の膜粘度で決まる組成のベシクルに高分子(PEG)をグラフトして膜粘度を測定し、高分子が膜の流動性に及ぼす影響について調べた。 L_d 相の PEG 密度が小さく PEG が mushroom 形状のときには PEG 濃度の一次関数で膜粘度が上昇するが、 L_d 相の PEG 濃度が上がって PEG が brush 形状に転移すると PEG 同士の相互作用を反映して、膜粘度は PEG 濃度に対して非線形に上昇することがわかった。PEG と周囲の流体との相互作用を考慮した簡単なモデルから、PEG が mushroom 形状をとるときには、脂質膜に結合した水分子が作る層が PEG をグラフトした膜の流動性に影響を与えていることがわかってきた。

【参考文献】

- (1) Henle and Levine. 2010. *Phys. Rev. E*. 81, 011905
- (2) Sakuma et al., 2020. *Biophys. J.* 118, 1576–1587

溶液物性制御に基づく遊泳バクテリアのアクティブ乱流状態の解析

(九大院理) 松浦 海人、前多 裕介

【はじめに】

周囲のエネルギーを消費し、自己駆動する要素の集団をアクティブマターと呼ぶ。アクティブマターの集団運動は、粒子間相互作用と自己駆動力によって自己組織化する性質があり、パターン形成を空間的・時間的に制御するという戦略がとりわけ注目を集めている。集団運動の一つに局所的に群を形成しつつも不規則な乱れを生むアクティブ乱流と呼ばれる構造があり、高密度なバクテリア懸濁液はそのモデルとして広く研究が行われている。我々は以前にアクティブ乱流を大小様々な渦構造の集団とみなすことで、秩序渦の幾何的制御とキラル対称性の破れの検出などに成功しているが^[1,2]、新たな制御方法の開拓もまた重要な課題である。そこで本研究は懸濁液の溶液物性により乱流状態を制御する条件を明らかにするため、バクテリアを非毒性の液晶^[3]や粘弾性高分子溶液^[4]に分散させ、乱流ダイナミクスの空間構造と時間的持続性に関する解析を行った。

【結果と考察】

バクテリアに *E. coli* の直進性変異体である PR4979 株を、懸濁媒体は非毒性の液晶溶媒である水性クロモグリク酸 2 ナトリウムを TB 培地に溶解させたものを使用し、集団運動を観察した。系に液晶の方向を制御するラビング処理を施さずに集団運動を観察した結果、バクテリアの運動によって生じた配向が可視化された (図 1)。先行研究^[3]と同様に位相欠陥の生じるアクティブ乱流が発生していたが、液晶内では急速に運動性が不活性化してしまいアクティブ乱流の継続的な観察は困難であった。そこで液晶に替えて粘弾性的性質を持つ *E. coli* のゲノム DNA を懸濁液に加え、溶液物性を変化させた系を構築した。しかし先行研究^[4]と異なりアクティブ乱流状態に顕著な変化が見られなかった。以上の結果は、アクティブ乱流状態の制御には従来知見よりさらに系統的な溶液物性の操作系が必要であることを指摘している。本発表ではこれらの実験の詳細を示し、新たな方針として DNA 溶液の粘弾性を配列設計により系統的に操作した DNA hydrogel を用いた解析結果についても報告する。

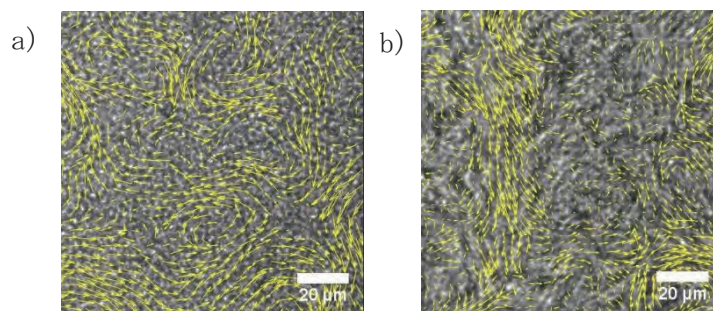


図 1 PIV によって取得した速度場
a) 配向のない流体中のバクテリアのアクティブ乱流
b) 液晶中のバクテリアのアクティブ乱流
それぞれ平均速度は $5.03 \mu\text{m/s}$ 、 $1.28 \mu\text{m/s}$ である。

【参考文献】

- (1) K. Beppu, et al. *Soft Matter* **13**, 5038–5043 (2017)
- (2) K. Beppu, et al. *Proc. Natl. Acad. Sci. USA* **118**, e2107461118 (2021)
- (3) C. Peng, et al. *Science* **354**, 882–885 (2016)
- (4) Z. Xing, et al. *Proc. Natl. Acad. Sci. USA* **115**, 8137–8142 (2018)

数値シミュレーションによる樹皮パターン形成

東京大学 大学院農学生命科学研究科 修士1年 上信陽太郎
山口哲生

【はじめに】

樹木を包み外界から保護する重要な組織である樹皮には、さまざまなパターン（模様）が見られる。一般的に樹皮パターンは、樹幹が肥大成長することで、樹皮に接線方向に成長応力が加わり、軸方向に裂けることによって形成されると考えられてきた。しかしながら、これだけでは縦割れ模様以外に対する説明は不可能である。また、樹皮パターンのバイオメカニクスの観点の先行研究は極めて少ないことがわかった。本研究では、さまざまな樹皮パターンに対し、樹幹や樹皮の構造を要素とばねを用いて離散化し、数値シミュレーションによって統一的に表現することを目的とする。

【結果と考察】

樹皮パターンの統一的な数理モデル化の前段階として、断面における樹皮の変形を記述する2次元モデルを作製し、数値計算を行った。その結果、図1(a), (b), (c), (d)のような縦割れ・座屈・剥離・カールを再現することができた。

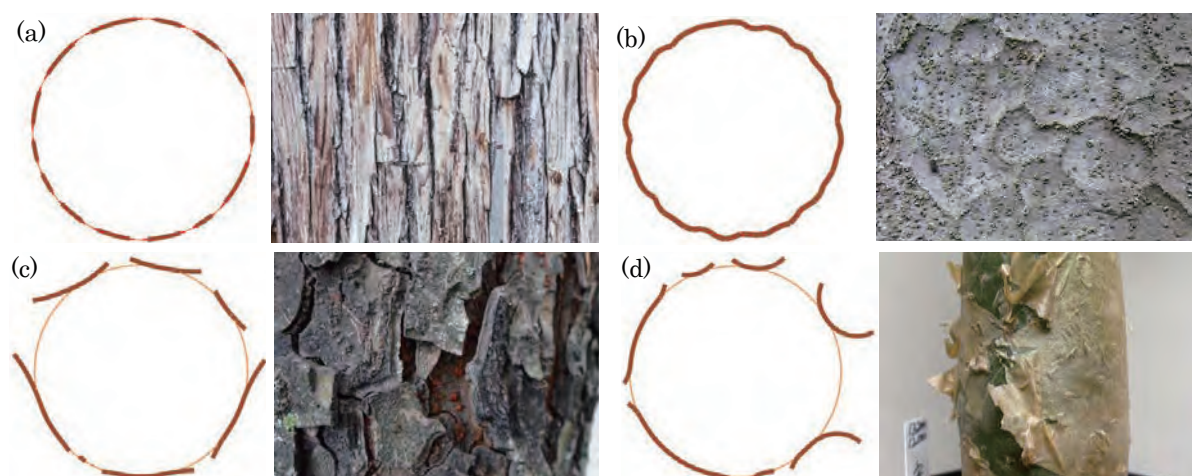


図1：樹木の断面における樹皮の変形 (a)縦模様、(b)座屈、(c)剥離、(d)カール

断面における樹皮パターン、縦割れ・座屈・剥離・カールは3つの特徴的なパラメータ：樹幹の成長速度、樹皮の自然長増大速度、樹皮の自発曲げ曲率の増大速度のバランスによって表現できると考えた。例えば、樹幹の肥大が支配的な状況では縦割れ、割れた部分の自発曲率が増大すると剥離やカール、樹皮の自然長増大が支配的では座屈が起きると考えられる。また、3次元モデルに拡張した場合においても、3つのパラメータのバランスにより3次元特有のパターンである横割れまで説明できると期待される。

【参考文献】

- (1) H. Dale *et al.*, *Annals of Botany*, **114**, 629, (2014).
- (2) T. Sano *et al.*, *Phys. Rev. Lett.*, **118**, 178001, (2017).

土壌からの根の引き抜きに関するモデル実験

(東京大学大学院農学生命科学研究科) 木下茉優, 山口哲生

【はじめに】

植物の根は、土壌中で地上部を支持するアンカーとして機能し、土壌を機械的に補強することができる。この固定力には、根の分岐構造が大きく寄与しているが、どの要素がどの程度寄与しているのかについては、必ずしも明らかではない。もし依存性を明らかにできれば、土壌強化アンカー等の工学的応用に加え、作物の育種や、新たな複合材料開発におけるヒントとなることも期待される。本研究では、根の太さ、弾性率、土の水分条件などが与える影響を、引き抜きモデル実験により検証した。

実験では、根を模した四分岐八の字型の3Dモデルを、異なる太さ、異なる材料(樹脂・ゴム)にて3Dプリンタで造形した(図1(a))。土壌には粒径の異なるガラスビーズを混ぜたものを用い、乾燥状態と約4%含水した湿潤状態において、それぞれモデル根を埋め込み、引き抜き試験を行なって荷重-変位関係を測定した(図1(b))。

【結果と考察】

モデル引き抜き試験では、引き抜き開始後まもなく最大引き抜き荷重 F_{max} に到達し、その後は荷重が単調に減少する荷重-変位曲線が得られた(図2(a))。柔らかいゴムのモデルでは、変形により分岐した根がしぼんだ状態で引き抜かれる様子が観察され、樹脂よりもゴムの方が、ゴムの中でも細くなっていくほどに F_{max} は低くなり、荷重-変位曲線のピーク付近の荷重変動が緩やかになっていく様子が見られた。そして、この F_{max} は材料の弾性率(ヤング率) E および太さ(直径) D からなる曲げ剛性 $I = \pi ED^4/64$ でよく表されることが判明した(図2(b))。この結果は、草本植物と比較して、より大きく重い地上部を支持する必要がある木本植物が固い根を持つという事実と矛盾が無い。さらに、 F_{max} は曲げ剛性の大きなモデルにおいて、湿潤状態の方が乾燥状態に比べて大きくなるが、曲げ剛性の小さいモデルではそれほど差のない結果となった。これらの結果は、海浜植物のように含水率の小さな土壌に生育する草本植物の根系構造との相関を示唆している。

【参考文献】

(1) S. B. Mickovski, et al., *European Journal of Soil Science* 58, 1471-1481 (2007)

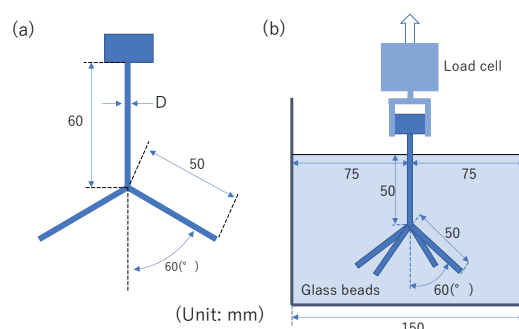


図1 (a)モデル根 (b)引き抜き試験の実験系

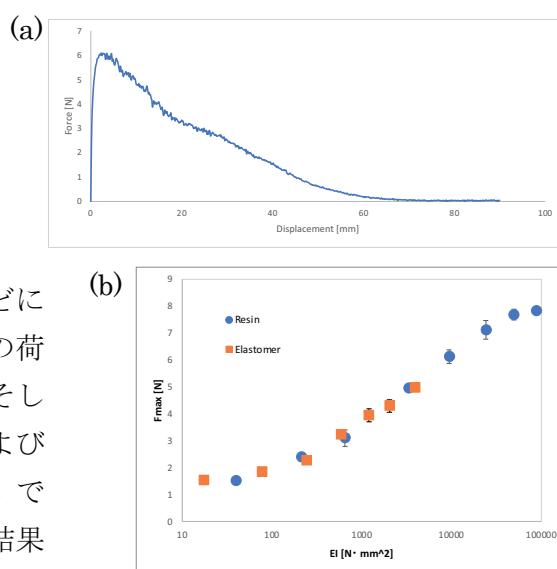


図2 (a)典型的な荷重-変位曲線(樹脂4mm) (b)曲げ剛性と F_{max} の関係

有限厚さのコレステリックブルー相液晶セルのシミュレーション

(九大院理) 福田順一

【はじめに】

キラル液晶が示す複雑な 3 次元秩序相であるコレステリックブルー相は、基礎応用両面の観点から興味を持たれている。電場に対する応答も重要な研究課題であり、対称性の異なる構造への転移や、秩序構造の周期の変化(electrostriction)を起こすことが知られている。最近の研究(1)により、本来は電場を切った状態では安定ではないはずの BP X と呼ばれる構造を、電場を切っても保たせることが可能なことが明らかになった。またそれらの構造は、構造変化の周期に対応したピークを有する反射スペクトルを示すが、ピークの位置は電場の印加方法を変えることによって変化する。このことは、複数の準安定構造が存在しうることを示しており、バルクの秩序構造の考察だけでは理解し難い現象である。それゆえ、液晶セルを構成する 2 枚の表面の存在が、複数の準安定構造の存在に役割を果たしていることが考えられるが、液晶セルの厚さが実験と対応する(文献(1)では $12\mu\text{m}$ 程度)くらいに大きい系の数値シミュレーションは、大規模な計算を要することからほとんど行われていない。本研究では、現実的な厚さのブルー相液晶セルが示す(準)安定構造と電場の関係についての数値計算、および秩序構造の反射スペクトルの計算を行なった(2)。

【結果と考察】

秩序構造の計算には、配向秩序を 2 階のテンソルで表す Landau-de Gennes 理論を用いた。技術的な詳細は文献(3)を参考にしてほしい。秩序構造の計算結果を図に示す。液晶セル表面と液晶との相互作用(アンカリング)により表面近傍の構造が固定されることで、構造の周期が離散的な値しか取れなくなることで、異なる構造の周期を有する複数の準安定な構造が得られることがわかった。秩序構造と反射スペクトルの計算結果(後者は講演で紹介する)は、ブルー相液晶セルの秩序構造、光学特性を理論的に理解するには、セル表面の存在、およびセルの厚さが有限であることを適切に考慮する必要があることを示している。

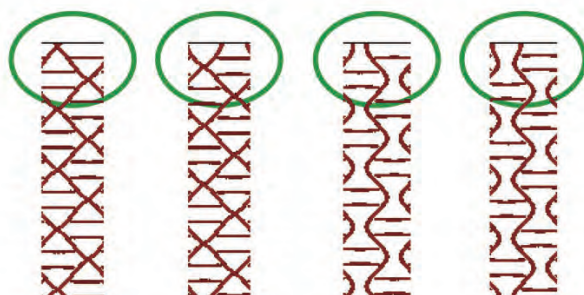


図: 秩序構造の計算例(液晶の配向欠陥を可視化)。左 2 つは BPI と呼ばれる構造、右 2 つは BP X 構造に対応。1 枚のセル表面(上端)近傍の構造のみを示している。緑の楕円は、構造の違いをハイライトしている。

【参考文献】

- (1) D.-Y. Guo et al., Nature Mater. **19**, 94 (2020).
- (2) J. Fukuda, Front. Soft Matter, **2**, 1011618 (2022).
- (3) J. Fukuda, Liq. Cryst. Rev. DOI: 10.1080/21680396.2022.2077256 (2022).

細孔内でのイオン性液晶の相転移と構造変化

(立命館大・理工) 登弘樹・藤本大輔・深尾浩次

【はじめに】イオン性液晶 (ILC) はアルキル鎖のような配向性を有する液晶分子を含むイオン液体である。ILC は多彩な電氣的性質を示すとともに、液晶が示す様々な相転移も示す興味深い系であるため、これまで多くの研究がなされている[1]。Nozaki らは、1-メチル-3 アルキルイミダゾリウムとテトラフルオロホウ酸の塩である ILC に対して、様々な測定手法を用いてアルキル鎖炭素数 n が 12, 14 の場合に、1) 等方液体 (I) 相からの冷却により、スメクチック (Sm) 相から結晶 (Cr) 相への相転移が生じる前に、Sm 相と Cr 相の中間的な秩序を持つ非平衡な構造 (低温スメクチック (LtSm) 相とする) へ変化すること、2) その後の昇温過程で LtSm 相から結晶相が出現した後、Sm 相、I 相へと相転移することを明らかにしている[2]。ここで、炭素数 n のアルキル鎖を含むこのイオン液晶を $[C_n \text{ mim}]BF_4$ と表記する。一方、Suzuki らはアルミナ細孔中のような拘束条件下において、鎖状分子の結晶化に伴う構造形成機構がバルクとは異なることを見出している[3]。これより、拘束条件下において ILC の示す相転移、構造形成のメカニズムがバルクからの本質的な変化を示すことが期待されている。本研究では、細孔内に拘束された ILC が示す様々な相転移挙動を明らかにすることを目的とし、アルミナ細孔内の $[C_{12} \text{ mim}]BF_4$ に対して、示差走査熱量測定 (DSC)、X 線回折測定、誘電緩和測定 (DRS) を行ったので、その結果について報告したい。

【実験】細孔径 10~200 nm のアルミナ細孔 (InRedox 社製) を用い、 $[C_{12} \text{ mim}]BF_4$ を細孔内に拘束した状態で DSC、X 線回折、DRS 測定を行った。DSC 測定には、TA-Instrument 社製 Q200 を用い、温度範囲は $-50\text{ }^\circ\text{C}$ ~ $70\text{ }^\circ\text{C}$ 、昇降温速度は 10 K/min、3 K/min とした。X 線回折測定は、SPRING-8 の BL40B2 において、波長 1.0 Å、カメラ長 340 mm、露光時間 4 s の条件で行った。DRS 測定には、Agilent 社製の LCR メータ E4980A を用い、周波数範囲は 0.2 Hz~1 MHz、温度範囲は $-20\text{ }^\circ\text{C}$ ~ $80\text{ }^\circ\text{C}$ とした。

【結果と考察】図 1 は、 $[C_{12} \text{ mim}]BF_4$ に対して、I 相からの冷却により得られた LtSm 相からの昇温過程における DSC 測定の結果を示す。X 線回折の結果と合わせると、 $-50\text{ }^\circ\text{C}$ では、LtSm 相をとるが、その後の昇温過程において、細孔径 80 nm 以上では、 $0\text{ }^\circ\text{C}$ 付近で LtSm 相が一旦融解したのちに結晶化し、その後、別の結晶相に転移し、さらに $30\text{ }^\circ\text{C}$ 付近で Sm 相への転移することがわかる。しかし、細孔径が 40 nm 以下の場合、 $30\text{ }^\circ\text{C}$ 付近での熱異常は観測されず、 $0\text{ }^\circ\text{C}$ 付近で観測された相転移点は $-5\text{ }^\circ\text{C}$ 付近まで低下している。X 線の回折パターンも、LtSm に特徴的なパターンから、まず小角のブロードなピークが $-5\text{ }^\circ\text{C}$ 付近でより低角でのピークに変化し、広角でのパターンは $15\text{ }^\circ\text{C}$ 付近でブロードなピークのみへ変化するの観測された。このように、相転移の挙動が細孔径に明確に依存することが明らかになった。当日の発表では、これに誘電緩和の結果も加えて、 $[C_{12} \text{ mim}]BF_4$ の細孔内での相転移・構造変化について詳細な議論を行う予定である。

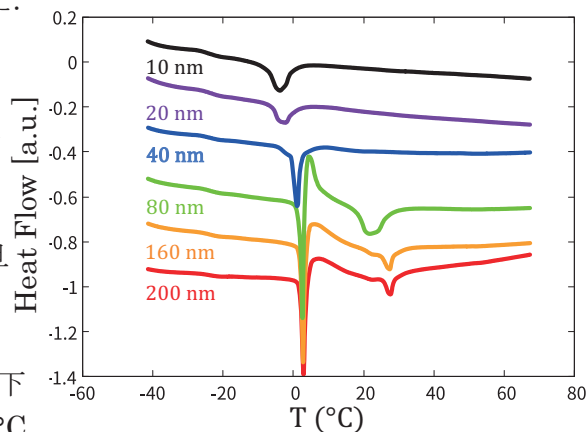


図 1.異なる細孔(10~200 nm 径)内の $[C_{12} \text{ mim}]BF_4$ の全熱流束の温度変化 (等方相から冷却後の昇温過程)

【参考文献】(1) C.M.Gordon et al., J.Mater. Chem. 1998, 8, 2627-2636.

(2) Y. Nozaki et al., J. Phys. Chem. B, 2016, 120, 5291-5300.

(3) Y. Suzuki et al., Soft Matter, 2013, 9, 2621-2628.

木材の塑性流動現象に及ぼす組織構造の影響

(¹ 東大院農、² 産総研)

○今川皓介^{1,2}、関雅子²、阿部充²、三木恒久²、山口哲生¹

【はじめに】

木材は中空の細長い細胞の集合体であり、繊維直交方向に圧縮すると細胞壁の座屈によって中空の細胞が潰れたのち緻密化していく。このとき、水分や適切な添加剤、高温条件によって細胞間を軟化させた状態で圧縮を行うと、細胞が潰れた後、細胞間ですべりが生じ、図1のように横方向に大きく塑性流動する。このような流動を起こしたのち、乾燥させるなどして形状を固定することで、簡単に木材の塑性加工が可能である。この木材の塑性流動現象について、温度条件や添加剤の種類による影響などは検討されているものの^{1,2}、木材の種類によって異なる組織構造の影響については明らかにされていない。本研究では、組織構造の異なる木材について、塑性流動の様子とその場観察を行うことで、組織構造が塑性流動現象に及ぼす影響を明らかにすることを目的とした。

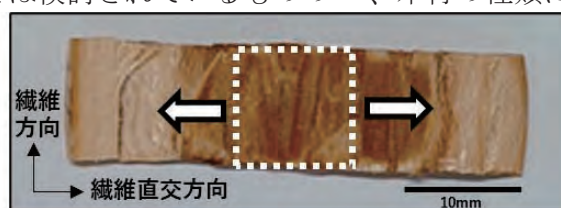


図1：圧縮後の試験体（点線は圧縮前の寸法）

【実験】

約10mm角の木材試料を、熱水とメタノールで6時間ずつ抽出処理したのち、送風乾燥機で緩やかに乾燥させたあと、含水率約27%に調整した。木材試料を150℃に熱した金属板で挟み込み、材料試験機を用いて20mm/minの速度で年輪半径方向に圧縮した。圧縮の際は、側方からマイクروسコープで流動のその場観察を行った。また、圧縮後の試験体について、SEMを用いて表面の観察を行った。

【結果と考察】

圧縮時に側方からマイクروسコープで表面を観察すると、図2のように圧縮方向に対して斜め方向にすべり面を生じて流動する様子が観察された。ヒノキの場合には、試験体の上下に渡って一気にすべり面が生じる傾向があったが、ケヤキの場合には、部分的なすべり面が複数の箇所で発生しながら、ゆるやかに流動する傾向がみられた。ケヤキのSEM観察で、放射組織（圧縮軸と並行な細胞）によりすべり面の生成が妨げられている様子が観察されたことから、ケヤキの持つ太い放射組織によってすべり面が分散され、ゆるやかな流動になったのだと考えられる。

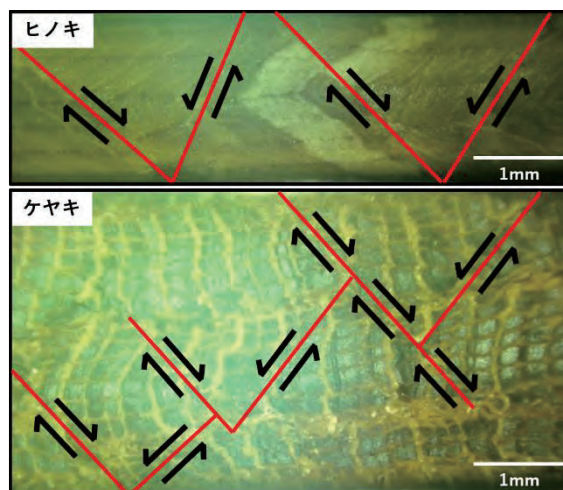


図2：流動の様子（赤線はすべり面）

【参考文献】

- (1) T. Miki, R. Nakaya, M. Seki, S. Tanaka, N. Sobue, I. Shigematsu, K. Kanayama, *Acta Mech* 228, 2751 (2017)
- (2) M. Seki, T. Kiryu, T. Miki, S. Tanaka, I. Shigematsu, K. Kanayama, *BioResources* 11(3), 7697 (2016)

微小液滴中で高分子の多分散性と界面濡れが分子拡散に及ぼす影響

金久保有希¹、渡邊千穂²、柳澤実穂¹(¹東大・総合文化・先進科学、²広大院・統合生命)

【はじめに】

希薄な高分子溶液における分子拡散は、平均二乗変位 (MSD) が時間に比例する ($MSD = 2dDt$) 通常拡散となる一方、高濃度高分子溶液中の分子拡散は、MSD が時間に比例しない ($MSD = 2dD_a t^\alpha$ ($\alpha \neq 1$)) 異常拡散となる場合がある。我々は、高分子混雑する細胞内環境のモデル系として高分子液滴を作製し、内部での分子拡散を蛍光相関分光法により解析した。その結果、半径 R が $20 \mu\text{m}$ 以下での小さな液滴では、高分子濃度が一定であるにも関わらず R 減少に伴い拡散が遅くなることが確認されたが、そのメカニズムは不明であった[1, 2]。そこで本研究では、異常拡散パラメータ α と拡散係数 D_a に注目して解析を行うことで、 R 依存的な遅い拡散が生じるメカニズムの解明を目指した。

【結果と考察】

網目構造をとる多糖高分子 Dextran 液滴において、網目をすり抜けて拡散する小さな分子は、液滴サイズに関わらず $\alpha \sim 1$ の通常拡散を示し、拡散係数 D_a は半径 $R < 20 \mu\text{m}$ の小液滴において 0.6 倍程度まで減少した。これより、小液滴中では分子が感じる実効的な粘度 η が上昇していると考えた。その理由として、Dextran 高分子の鎖長が多分散であり、長鎖ほどマクロ粘度が高いことから、膜に短鎖が局在することで、測定点である液滴中央では長鎖の割合が増し、高粘性となる可能性を考えた。この仮説を検証するため、バルク系での粘度が変化しない条件で短鎖の Dextran を添加したところ、小液滴中の拡散係数 D_a 低下が顕著化することを見出した。

一方、Dextran の網目と絡み合う大きな分子は、高分子鎖のミクロなレオロジーを反映することから、こうした鎖長分布に影響されないことが期待される。実際に、網目より大きい分子の拡散では、液滴サイズに関わらず $\alpha < 0.9$ の遅い異常拡散が見られ、拡散係数 D_a は液滴サイズに依存せずほぼ一定となった。

以上より、様々な高濃度高分子溶液を小さな液滴に閉じ込めるとみられる半径 R に依存的な遅い拡散は、短鎖高分子が膜局在し、液滴中央で長鎖の割合が増えたためであると考えられる。

【参考文献】

[1] C. Watanabe et al., *J. Phys. Chem. B* 2020 124 (6), 1090-1098[2] K. Harusawa et al., *Langmuir* 2021 37 (1), 437-444

均一な網目構造を有する高分子ゲルのき裂進展挙動

(東京大工) 齊藤千晶・早川愛璃彩・長浦光希・作道直幸・酒井崇匡

【はじめに】

通常の破壊力学は、金属、セラミックなどのハードマターを主な対象としている。一方、やわらかくよく伸びるゴム状物質の破壊の研究はそれらと異なる独自の発展を遂げた。その理由は、(非線形も含む)破壊力学の出発点となる線形破壊力学は、線形弾性体の微小変形を仮定しており、大変形を伴う非線形弾性領域において破壊するゴム状物質への適用が困難なためである。本研究では、このような従来の考え方からは一見不可解な「均一な網目構造を持つゲルの亀裂進展挙動は、線形破壊力学にある程度従う」という観測結果を報告する。

【結果と考察】

均一かつ制御可能な4分岐網目構造を持つゲル¹および3分岐網目構造を持つゲル²を用いてシート上のサンプルを作成し、材料を延伸した後にき裂を与える「静的純せん断試験」を行った。この様子を偏光高速カメラで撮影し、き裂進展速度 V を算出した。さらに、画像処理ソフトを用いてき裂先端形状を解析した。

架橋点間分子量および高分子濃度を制御した結果、エネルギー解放率 Γ とき裂進展速度 V の関係は、 $V = \Gamma^\alpha$ という冪則で増加し、横波弾性波速度 C_s 付近で一定となった。き裂先端形状については、全ての条件で放物線状であった。この結果は、き裂先端形状が V に依らず、線型破壊力学 (Linear Elastic Fracture Mechanics, LEFM) に従うことを示唆している。さらに、き裂先端近傍の応力分布は、線型弾性領域では線型破壊力学の予測と一致し、非線形弾性領域では線型破壊力学の予測と一致しなかった。以上の結果は、線型弾性領域において、大変形下におけるき裂進展挙動が、微小変形を仮定している線型破壊力学と一致するという非自明な結果である。

【参考文献】

- (1) T. Sakai *et al.*, *Macromolecules* **41**, 5379 (2008).
- (2) T. Fujiyabu *et al.*, *Science Advances* **8**, abk0010 (2022).

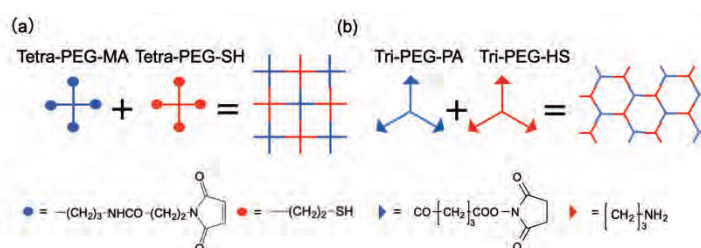
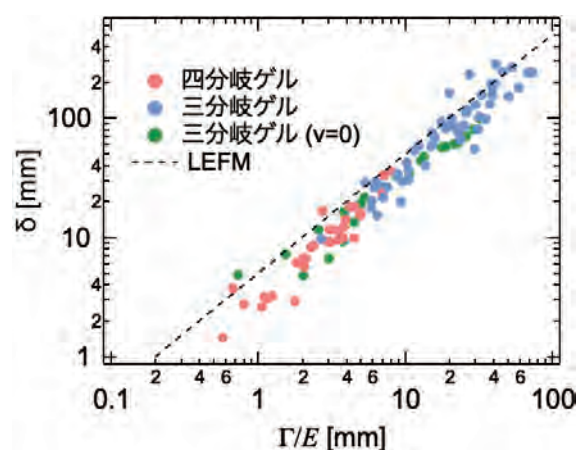


Fig. 1 (a) Tetra-PEG gel. (b) Tri-PEG gel.



Fig. 2 Static pure shear test

Fig. 3 き裂先端形状と Γ/E の関係

PB05 取り消し

バクテリアのキラルエッジカレントを記述する連続体理論

(九大院理) 松清 洋輝, 福田 順一

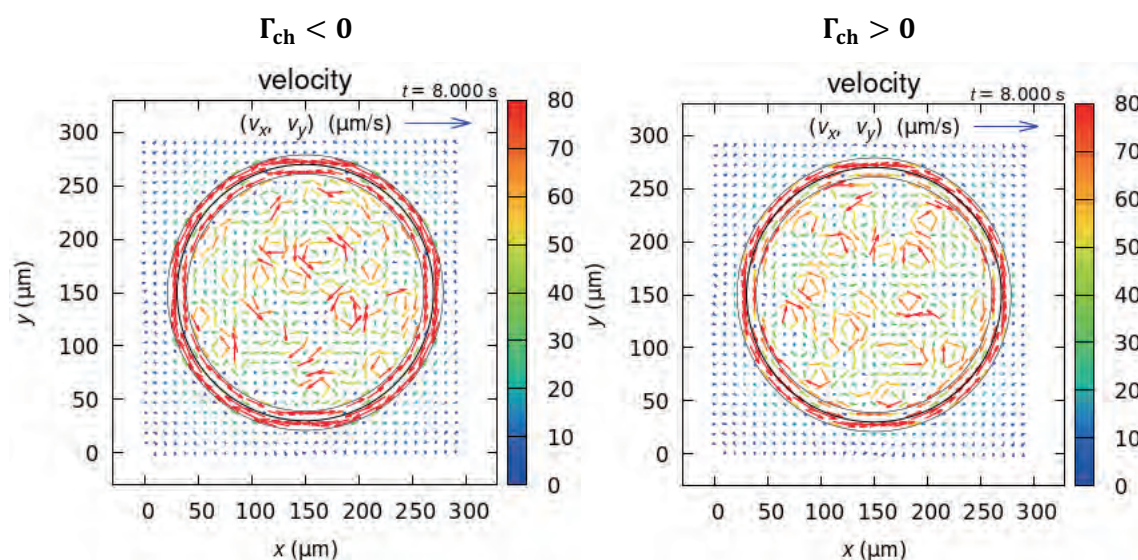
【はじめに】

キラルなアクティブマターの研究が、近年活発に行われている。文献(1)では、上下の壁面の材質が異なる円柱容器に閉じ込められたバクテリア集団が示すキラルエッジカレントを、実験的に実現している。我々は、このキラルエッジカレントを実現するミニマルな連続体モデルの提案を試みる。基礎方程式として、TTSH 方程式(2)に、境界条件にだけ寄与するキラルな応力項 $-\Gamma_{\text{ch}}\epsilon_{jk}\partial_k v_i$ を付け加えた以下の方程式を考える。

$$\begin{aligned}\partial_t v_i &= -\partial_j \Pi_{ij} - (\alpha + \beta v^2) v_i \\ \Pi_{ij} &= p\delta_{ij} + \lambda_0 v_i v_j - \lambda_1 v^2 \delta_{ij} - \Gamma_0 \partial_j v_i - \Gamma_{\text{ch}} \epsilon_{jk} \partial_k v_i + \Gamma_2 \partial_j \partial_k \partial_k v_i \\ \nabla \cdot \mathbf{v} &= 0\end{aligned}$$

ここで、 \mathbf{v} は粗視化されたバクテリアの速度場である。我々は、容器の壁で slip 条件を課して TTSH 方程式を計算する手法を開発し、シミュレーションをおこなった。

【結果と考察】



シミュレーションの結果、円形領域の内部では無秩序な速度場を、また、バクテリア流体と容器との境界付近では向きが揃った速度場（エッジカレント）を実現することができた。また、まだ計算のサンプル数は多くはないが、キラル応力テンソルの係数の符号により、エッジカレントの向きを制御できることがわかった。今後さらにサンプル数を増やし、統計的な議論を行うつもりである。

【参考文献】

- (1) Beppu, Kazusa, et al. "Edge current and pairing order transition in chiral bacterial vortices." *Proceedings of the National Academy of Sciences* 118.39 (2021): e2107461118.
- (2) Wensink, Henricus H., et al. "Meso-scale turbulence in living fluids." *Proceedings of the national academy of sciences* 109.36 (2012): 14308-14313.

荷電コロイド分散系の塩誘起ガラス転移のレオロジーとスケーリング則

(大分大, ^A北京師範大, ^BORNL) ○岩下拓哉, Bin Wu^A, Wei-Ren Chen^B

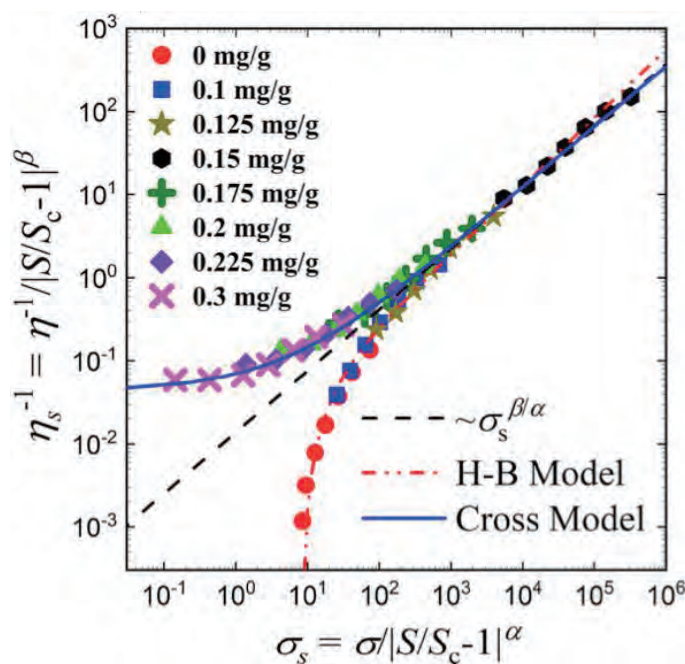
【はじめに】

ガラス転移は、液体を急冷し結晶化を妨げることで長距離秩序のない不規則な構造を維持したまま固化する現象である。また、粒子の体積分率を増大させることでも、ガラス転移現象を観測することができ、コロイド粒子分散系をモデル系とした実験研究が精力的に行われている。特に、剛体球系を基礎とした理論的理解や解釈が広く受け入れられている。しかしながら、身の回りに溢れているコロイド粒子は、剛体球というよりむしろ表面電荷をもつ荷電粒子である。荷電コロイド分散系の安定性は粒子間に働く電気的相互作用に非常に強く影響を受け、その電気的相互作用は、系の電気的特性(pH やイオン濃度など)により大きく変化する。本研究では、少量の塩を添加することで、数桁に及ぶ劇的な粘度の減少を引き起こす電気粘性効果に着目する。この現象は古くから知られており、工学分野での膨大な数の実験データの蓄積があるが、この現象を新たな物理学的視点で再考察する。つまり、塩誘起によるガラス転移現象による捉え方である。その転移現象の駆動力の本質は、粒子間相互作用の変化であり、温度や体積分率とは異なる新しい外部パラメタである。一般に、表面電位が小さいような限定的な条件を除いて、粒子間相互作用の解析的な形での導出は困難である。さらに、体積分率が大きい濃厚系の場合や非常に強い流れの下はなおさらである。このように、実際の粒子間相互作用の変化は不明であるが、添加するイオン濃度は実験的に明確に定義可能であり、有効な制御パラメタとしての役割を果たすと考えられる。本研究では、添加する塩濃度を用いて、荷電コロイド分散系のレオロジーデータを整理し、液体からガラスへの固化現象を理解する上での新たな視点を提供する。

【結果と考察】

図は、さまざまイオン濃度をもつシリカ荷電粒子の定常流粘度 η の流動曲線(σ :せん断応力)を塩濃度 S でスケーリングした結果である⁽¹⁾。はっきりと臨界塩濃度 S_c の上下で液体およびガラス挙動に相当する二つの分曲線が現われ、ガラス転移点近郷ではべき的な漸近挙動が現れることが確認できた。これは、温度や体積分率のガラス転移現象で同様に観測されるレオロジースケーリングに類似しており、ガラス化現象に共通の振る舞いであることが示唆できた。

【参考文献】

(1) B. Wu, T. Iwashita, W.-R. Chen, J. Phys. Chem. B **126**, 922-927 (2022).

障害物中を運動する棒状粒子の重心拡散係数

(1:名古屋大学, 2:ETH Zürich) 仲井文明¹, 増淵雄一¹, 畝山多加志¹, 土肥侑也¹, 石田崇人¹, Martin Kröger²

【はじめに】

障害物中を弾道的に運動して障害物と衝突すると散乱する粒子を考える。一般に、障害物密度の増大に伴い、粒子の重心拡散係数は小さくなる。これは、障害物が粒子の運動を阻害する頻度が増えるためだと解釈できる。粒子が十分に細長い棒状粒子の場合、球状粒子とは質的に異なる振る舞いを示す場合がある。無限に細い棒状粒子により構成される流体の構成粒子[1]や、二次元の障害物中を運動する棒状粒子[2, 3]の拡散係数は、障害物密度に対して非単調に変化する。このような現象は、チューブやケージ等の粒子の回転運動の束縛を仮想的に導入した現象論的モデルによって説明されている。これらのモデルでは、障害物密度の増大に伴って棒状粒子の回転運動が幾何的に拘束される一方で、棒状粒子の軸方向の運動は阻害されない。このとき、棒状粒子の長軸方向の等速運動が長時間持続して重心拡散係数の増大に至る。本発表で、拡散係数の障害物密度に対する非単調性は、回転運動の束縛が生じないマルコフ過程でも発現することを報告する。

【方法】

単純な系として3次元の固定された質点により構成される障害物中を動く棒状粒子を考えた。棒状粒子の運動をマルコフ性を仮定した動的 Monte Carlo (MC) 法を用いて調べた。動的 MC の入力は、棒状粒子と障害物が衝突する位置・時間の統計と衝突前後の棒状粒子の運動変化である。

【結果】

棒状粒子の運動エネルギーの平均値・質量・太さで無次元化した重心拡散係数 D_c に対する障害物密度 ρ の依存性を様々な棒の長軸長さ L_e に対して図に示した。横・縦軸は L_e で適当にスケールした。棒状粒子が長い場合 ($L_e \gg 1$) に、 D_c は ρ に対して非単調に変化した。すなわち、棒状粒子の重心拡散係数の障害物密度に対する非単調性はマルコフ過程でも生じることが分かった。この結果は、当該の現象の発現にチューブやケージ描像は必須ではないことを意味する。

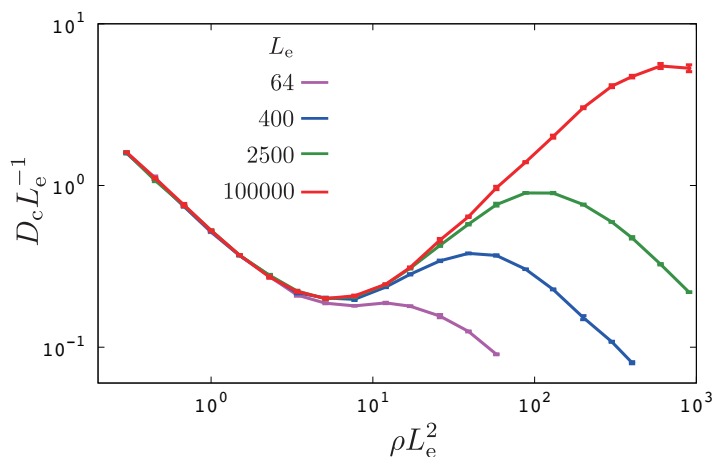


Fig. Scaled diffusion coefficient of the center of mass of the mobile rod $D_c L_e^{-1}$ against the scaled obstacle density ρL_e^2 with the various rod lengths L_e . Error bars are also displayed.

【参考文献】

- (1) D. Frenkel and J. F. Maguire, Mol. Phys. 49, 3, 1983.
- (2) F. Höfling et al, Phys Rev. Lett. 101, 120605, 2008.
- (3) A. K. Tucker and R. J. Hernandez, Phys. Chem. B 2010, 114, 9628.

ネマチック液晶の電場誘起による自発流れの研究

(九大院理¹, 東大理², 大分大理工³, 北大院工⁴)

小林 史明¹, 竹内 一将², 長屋 智之³, 折原 宏⁴

【はじめに】 北海道大学の折原 宏らのグループはこれまでに電場を印加することが可能な回転粘度計（以下、レオメーター）を用いて、電場下における液晶のレオロジーの研究を行い、液晶サンプルの粘度の測定値が『負』になるという珍しい現象を発見した[1]。このとき、液晶は電場誘起の激しい乱流状態にある。これまでの研究で発見された負の粘度は強誘電体に見られる $P-E$ 履歴曲線様の流れの履歴曲線・S 字曲線や自発的な流れを発現する。これまで、この負の粘度由来の自発的な流れは流体が接する上下の界面の内、片方が自由に動くことが出来るときに発生すると考えられていたが、最近、上下の界面が固定された状態でも電場誘起の乱流状態において液晶が自発的に流れだすことが判明した[2]。本研究ではこの自発的な流れに注目し流速の電場や周波数依存性、時間発展を調べる。

【実験】 実験では Fig. 1 に見るような ITO を円形もしくはドーナツ型にエッチングした ITO 電極付きガラスの間にネマチック液晶の MBBA (N-(4-Methoxybenzylidene)-4-butylaniline) を封入し交流電場を印可する。このとき、円の直径は数 10 mm でガラス間のギャップは 50 - 100 μm 程度である。サンプルの状態は顕微鏡により観察し、PIV などの画像解析を用いる。

【結果と考察】 顕微鏡観察による結果で、液晶は電場印加直後はランダムな方向に流れているが、時間の経過とともに流れの向きは揃い始め最終的には一方向に流れだす。液晶は Fig.2 に示すように、2 枚のガラスセルに封入されているため、結果的に流れは回転流となる。また、この自発流れはドーナツ型に電極面を形成した場合においても発生し、この場合は電極面に沿った一方向の流れが形成される。

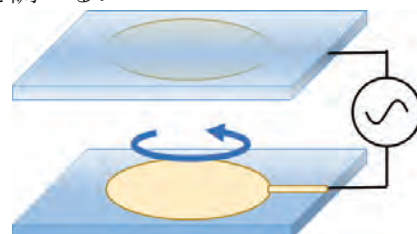


Fig. 1. 2枚のガラスセルの模式図。黄色い部分が電極部分で2枚のガラスの間は液晶で満たされている。ドーナツ型の電極の場合は中心部分も電極を剥がす。

この場合は電極面に沿った一方向の流れが形成される。

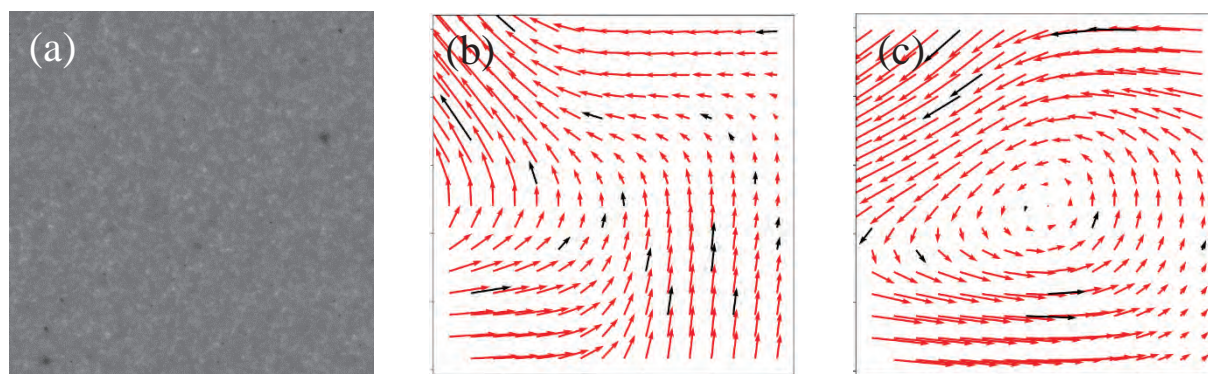


Fig. 2. (a) 乱流の画像。(b) 電場印加直後の流速場。(c) 十分に時間が経過したときの流速場。

【参考文献】

[1] H. Orihara, Y. Harada, F. Kobayashi, Y. Sasaki, S. Fujii, Y. Satou, Y. Goto, and T. Nagaya, Phys. Rev. E **99**, 012701 (2019).

[2] 武田純, 芳原晃旗, 佐々木裕司, 小林史明, 長屋智之, 折原宏, 第69回レオロジー討論会要旨 SOP21.

濃厚エマルジョンにおけるこみあい由来の粘弾性緩和挙動

(九大院理, 東大院総合文化*) 松岡亮佑, 井口昇之, 江端宏之, 池田昌司*, 水野大介

【はじめに】

マイクロゲル・エマルジョン・泡のような軟体球コロイドの濃厚懸濁液では、複素粘弾性率 $G^*(\omega)$ の虚部 $G''(\omega)$ が周波数の 0.5 乗に従う粘弾性挙動が観測される [1,2,3]。この特徴的な挙動は、構成コロイドの乱雑な配置に由来する不均一な揺らぎ（非アフィン変形）の緩和が広い周波数範囲にわたり分布するために生じる、と示唆されている [4,2]。しかしながら、市販のレオメータを用いた観測は 10^2 Hz 以下の帯域に限定されるため、緩和の全貌を把握することは困難であった。

【結果と考察】

本研究ではレーザー干渉法を用いたマイクロレオロジーにより、濃厚エマルジョンの $G^*(\omega)$ を広い周波数範囲で観測した。油相-水相間の密度と屈折率を整合させたエマルジョンを用いて、油滴の体積分率がガラス~ジャミング領域付近に対応する濃度 (59~67 [%]) の系列試料を作製した。

観測された $G^*(\omega)$ の虚部を $G''(\omega) = A\omega^{0.5}\{1 + (\omega/\omega_c)^{0.5}\}$ という式であてはめた。あてはめパラメータ (A と ω_c) を用いて G'' および ω をスケールしたところ、系列試料の結果がすべてマスター曲線に乗った (図 1)。 ω_c は $G'' \propto \omega^{0.5}$ から $G'' \propto \omega^1$ へと移り変わる周波数であり、 ϕ の増加に伴い高周波側へシフトすることが分かった (図 2)。これはジャミング点の前後で油滴間の相互作用がエントロピー弾性からエネルギー弾性に変化したためと考えられる。一方、実部 $G'(\omega)$ のプラトー G'_p の ϕ 依存性は、非アフィン変形を考慮したシミュレーション結果と合致し、 $A\omega_c^{0.5}$ の ϕ 依存性とも定量的に相関した (図 3)。これらの解析結果は、観測された G'_p と $G''(\omega) \propto \omega^{0.5}$ の両方が非アフィン変形をとまう緩和挙動を反映していることを示す。

【参考文献】

- [1] H. M. Wyss et al. Phys. Rev. Lett. 98, 238303 (2007)
- [2] A.J. Liu et al. Phys. Rev. Lett. 76, 3017 (1996)
- [3] K. Krishan et al. Phys. Rev. E 82, 011405 (2010)
- [4] B.P. Tighe Phys. Rev. Lett 107, 158303 (2011)

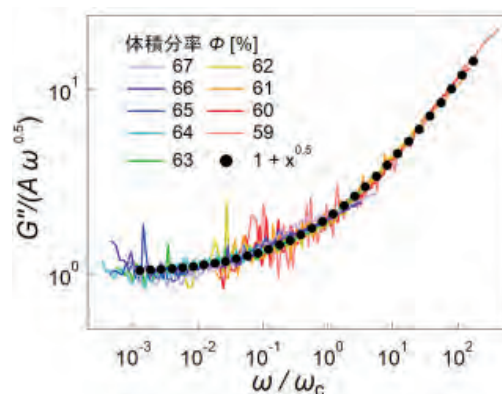


図1. スケールされた $G''(\omega)$

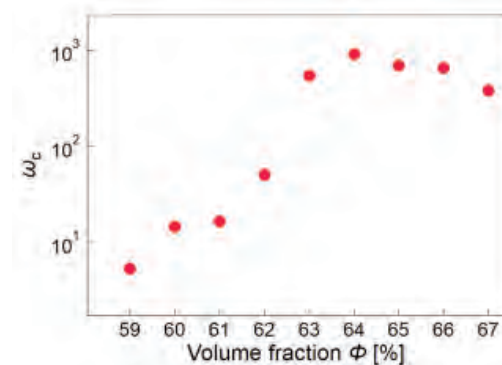


図2. ω_c の体積分率依存性

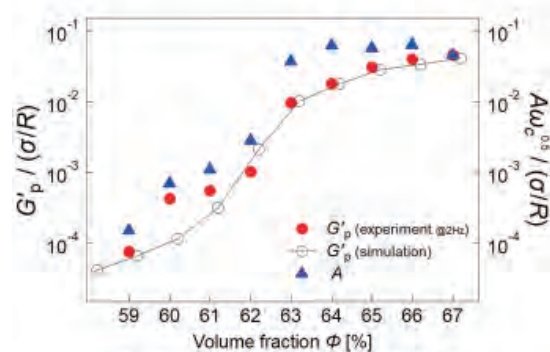


図3. G'_p と $A\omega_c^{0.5}$ の相関性

液晶 5CB における温度差駆動マランゴニ対流

(立命館大学・理工学研究科) 伊藤裕貴、吉岡潤、深尾浩次

【はじめに】 シアノビフェニル系液晶は、相転移温度近傍において表面張力が急激に変化する性質を示すことが報告されている。しかし同時に、その表面張力については測定手法によって大きく異なる値が報告されており、温度に対する表面張力の振る舞いについて、統一的な結論が出ているとは言い難い[1,2]。一方、表面張力勾配下においては、マランゴニ対流と呼ばれる対流現象が発生する。そこで我々は、相転移温度近傍において、温度勾配下のシアノビフェニル系液晶では、表面張力の急激な変化に対応した強いマランゴニ対流が発生するであろうと期待した。

【実験】 液晶物質として 5CB(LCC 社)を用意し、蛍光色素 C6-NBD-Ceramide(Cayman Chemical 社)を~0.1wt.%混合させたものを試料として実験に使用した。試料を封入するセルとして、垂直配向剤 CYTOP(AGC 社)を塗布したカバーガラスと銅箔によるガラスサンドイッチセルを作製した。銅箔をペルチエ素子で加熱、冷却することで、セル内の試料に温度勾配を印加した(Fig.1)。

【結果と考察】 セル内で、側面が空気に晒された円柱状の液晶滴を作製した。これに温度勾配を印加することで、滴内部においてネマチック(N)相と等方(I)相が共存する状態を実現した。この状況下での流動場測定結果を Fig.2 に示す。画像上の黒い領域は蛍光色素が退色した領域であり、赤矢印は画像解析によって得られた流動分布である(Fig.2(b,c))。この流動分布は、Fig.2(d)に示すような一対の循環流が滴内部に発生していることを示唆している。また、空気界面近傍においては、I 相から N 相側への流れが発生しており、この流動は二相間の表面張力差によって駆動されていると考えられる。

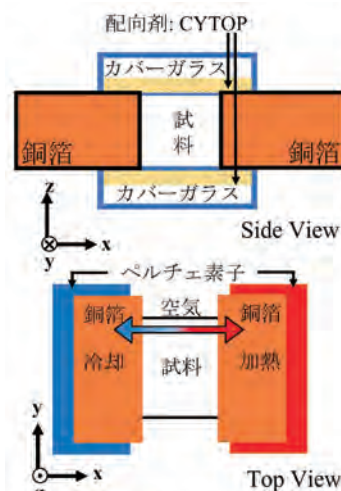


Fig.1 実験系の概略図

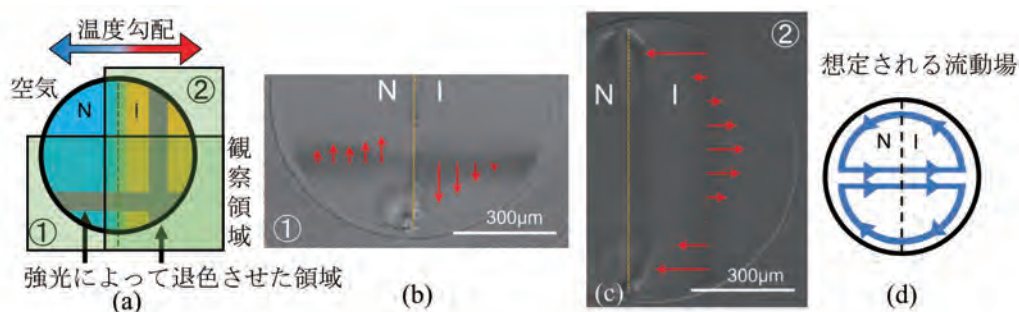


Fig.2 円柱状の5CBにおける実験結果。(a)実験条件の概略図。(b,c)実際の流動場測定結果。赤矢印：測定された流動場。銅箔間の温度勾配 $\nabla T \sim 7$ K/mm。(d)想定される滴内部での流動場。

- 【参考文献】 [1] M. Tintaru, R. Moldovan, T. Beica, and S. Frunza, *Liq. Cryst.*, **28**, 793, 2001.
[2] L. S. Gomes and N. R. Demarquette, *Mol. Cryst. Liq. Cryst.*, **437**, 181, 2005.

温度勾配下におけるダンベル状分子の濃度分布の理論解析

(名大院工) 大石達真, 石田崇人, 土肥侑也, 畝山多加志, 増淵雄一

【はじめに】

本研究では、高分子希薄溶液が温度勾配下にある系を考える。このような系では一般に温度勾配によって質量流束が誘起され、高分子が高温側または低温側に濃縮される。この濃度勾配の誘起は、ソーレ効果と呼ばれる。高分子溶液のソーレ効果は数多くの実験研究が行われており[1]、分子量が大きいと高分子が低温側に濃縮状態を作る。この現象を理解するために、マクロな熱力学的議論に基づく現象論的理論が提案されてきた[2][3]。しかしミクロな機構は未解明である。そこで本研究では、高分子の分子構造、特に高分子が形態自由度を持つという点に着目して理論を構築した。本研究では簡単のため、高分子をダンベル状分子(バネで繋がれた2つの粒子)としてモデル化する。

【結果と考察】

ランジュバン方程式に従うダンベル状分子が不均一な温度場にある系を考える。各粒子のランジュバン方程式は以下の形で書ける。

$$\frac{d\mathbf{P}_i}{dt} = -\frac{\partial U}{\partial \mathbf{R}_i} - \frac{1}{2} \frac{\partial \Phi_i(\mathbf{R}_i)}{\partial \mathbf{R}_i} - \gamma \frac{\mathbf{P}_i}{m} + \sqrt{2\gamma k_B T(\mathbf{R}_i)} \mathbf{w}_i(t) \quad (1)$$

\mathbf{R}_i は粒子($i = 1, 2$)の位置、 \mathbf{P}_i は粒子の運動量、 γ は摩擦係数、 m は粒子の質量、 U は $\mathbf{R}_1 - \mathbf{R}_2$ に依存した結合ポテンシャル、 $\Phi_i(\mathbf{R}_i)$ は1体ポテンシャル、 k_B はボルツマン定数、 \mathbf{w}_i はガウシアンホワイトノイズである。 $T(\mathbf{R}_i)$ は位置に依存した温度である。本研究では形態自由度の効果に着目しているため、 $\Phi_i(\mathbf{R}_i) = 0$ として1体ポテンシャルの寄与のない場合を考える。上記のランジュバン方程式を、重心ベクトル $\bar{\mathbf{R}} = (\mathbf{R}_1 + \mathbf{R}_2)/2$ 、末端ベクトル $\mathbf{Q} = \mathbf{R}_2 - \mathbf{R}_1$ 、重心運動量 $\bar{\mathbf{P}} = \mathbf{P}_1 + \mathbf{P}_2$ 、末端運動量 $\mathbf{\Pi} = (\mathbf{P}_2 - \mathbf{P}_1)/2$ で書き直し、さらに運動量を断熱消去し、 $\bar{\mathbf{R}}$ と \mathbf{Q} のフォッカー・プランク方程式を導出した。末端粒子間の距離に依存したポテンシャルエネルギーは、調和バネ($U = KQ^2/2$)に設定し、基底状態支配近似を用いて $\bar{\mathbf{R}}$ のみのフォッカー・プランク方程式を得た。 x 方向に $-L < x < L$ の範囲で一定の温度勾配がある一方で、 y 、 z 方向には温度が一樣な系について考える。得られたフォッカー・プランク方程式を解いて定常状態の質量流束 J_x およびソーレ係数 S_T を求めた。

$$J_x = \frac{k_B}{2} \frac{\partial T(x)}{\partial x} \mathcal{P}(x) + \frac{k_B T(x)}{2} \frac{\partial \mathcal{P}(x)}{\partial x}, \quad S_T = \frac{1}{T_c} \left(T_c = \frac{1}{2L} \int_{-L}^L T(x) dx \right) \quad (2)$$

$\mathcal{P}(x)$ は分布関数、 $2L$ は一辺の長さである。

導出されたソーレ係数はバネ定数に依存せず、形態自由度がないコロイドのソーレ係数と等しいことがわかった。これは、調和バネでつながったダンベル状分子の場合には、形態自由度がソーレ係数に影響を与えないことを意味する。

【参考文献】

- (1) D. Stadelmaier and W. Köhler, *Macromolecules*, 41, 6205 (2008)
- (2) A. Würger, *Physical Review Letters*, 102, 078309 (2009)
- (3) M. Eslamian et al., *International Journal of Thermophysics*, 32, 652 (2011)

1 + ∞次元のレプリカ液体論におけるガラス転移に伴う相関長の解析

(阪大理) 富田幸宏, 吉野元

【はじめに】

ガラス転移が協力現象であれば、それに伴う特徴的な長さスケールが存在するはずである。そのような長さスケールの候補の一つとして、PS 長 (point-to-set length) がある。PS 長はシミュレーションで実際に観測できる量[1]であり、これまでにモード結合理論[2]やいくつかの平均場理論[3,4]でも解析が行われている。一方、最近我々は、1次元方向に物性が連続的に空間変化する状況を捉えられるレプリカ液体論を第一原理的に構成した。これは1+∞次元で厳密になるレプリカ液体論である。この理論のテストとして、PS 長の解析を行なった。

【結果と考察】

本研究では、凍結した剛体球ガラス壁に挟まれたキャビティ内における剛体球ガラス系を解析した。全系において密度は一樣とし、キャビティ外のガラス秩序パラメータ (MSD) は $\Delta = \mathbf{0}$ とした。この状況でキャビティ (サイズ L) 内の剛体球ガラス系の 1RSB 解を構成した。次にこれを用いて、PS 長とガラス秩序パラメータである MSD の空間変化 $\Delta(\mathbf{z})$ を調べた。その結果、ガラスの動的転移点、カウズマン転移点における密度で発散する特徴的な長さスケールがそれぞれ、 $\xi_d \approx (\hat{\varphi}_{d,\text{bulk}} - \hat{\varphi}_d(L))^{-1/4}$, $\xi_K \propto (\hat{\varphi}_{K,\text{bulk}} - \hat{\varphi}_K(L))^{-1}$ となり、先行研究 [2,3,4] の結果と一致することがわかった (図 1(a))。また $\Delta(\mathbf{z})$ は図 1(b) のような位置依存性を示すことがわかった。

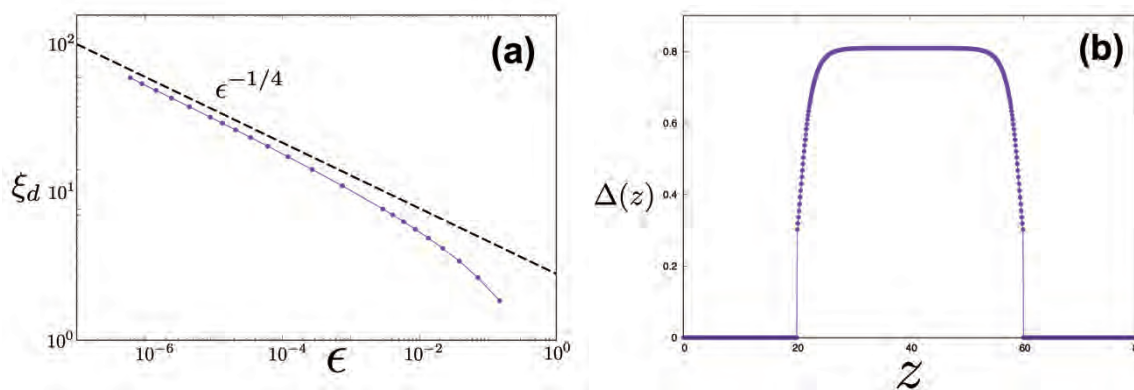


図 1.(a)動的転移点で発散する相関長 ξ_d ($\epsilon = (\hat{\varphi}_{d,\text{bulk}} - \hat{\varphi}_d(L))/\hat{\varphi}_d(L)$ の関数), (b)ガラスの秩序パラメータ $\Delta(\mathbf{z})$ の空間依存性

【参考文献】

- [1]Biroli G., Bouchaud J.-P., Cavagna A., Grigera T. and Verrocchio P., Nat Phys., 4 (2008) 771.
- [2]Biroli G., Bouchaud J.-P., Miyazaki K. and Reichman D. R., Phys. Rev. Lett., 97 (2006) 195701.
- [3]Franz S. and Montanari A., J. Phys. A: Math. Theor., 40 (2007) F251.
- [4]H. Ikeda and A. Ikeda, Europhys. Lett., 111, 40007(2015)

ナノシリカ-PEO のシェイクゲル: ゲル化挙動と時間の関係

(¹筑波大学理工情報生命学術院, ²筑波大学生命環境系) 佐藤 駿介¹, 小林 幹佳²

【はじめに】

コロイドや高分子の混合懸濁液のレオロジー特性を把握することは科学的にも産業的にも重要な課題である。特に、懸濁液の粘度が剪断速度とともに上昇するシェアシックニングは注意すべき現象である。シリカナノ粒子と高分子 poly(ethylene oxide) (PEO) をある適切な条件で混合した懸濁液は、振盪や剪断によって増粘してゲル状に変化し、静置によってゾル状に緩和する、「シェイクゲル」と呼ばれる挙動を示す。先行研究により、シェイクゲルの形成の有無¹⁾、ゲル状態からゾル状態への緩和時間²⁾には、シリカ粒子表面積あたりの PEO 添加量 (C_p) が重要なパラメータであることが示唆されている。一方で、ゲル化のダイナミクスに C_p が与える影響については系統的な研究が見当たらず、ゲル化のダイナミクスと C_p の関係は不明である。そこで本研究では、ゲル化のダイナミクスに C_p が与える影響を明らかにすることを目的として、シェイクゲルのゲル化時間を測定した。

【方法および結果と考察】

粒径約 30 nm のシリカ粒子懸濁液に分子量 1000 kDa の高分子 PEO を添加してシェイクゲルを調製した。粒子濃度を 20 wt% で固定し、PEO の添加量を変化させることで C_p の値を 0.01 ~ 0.15 mg/m² に調整した。ゾル状態のシェイクゲルがゲル化するまでの時間を測定するために、転倒攪拌下の懸濁液の目視観察と、二重円筒型粘度計を用いた定常剪断下での粘度の時間変化を測定した。

その結果、転倒攪拌による流動性低下までの時間は $C_p = 0.03$ mg/m² で最小となることが明らかとなった (Figure 1)。また、定常剪断によってシェアシックニングが起こるまでの時間も同様の C_p 依存性を示した。すなわち、 C_p の値に依存するゲル化の最小時間の存在が初めて明らかとなった。以上の結果は、シリカ粒子表面における PEO の被覆率や、流れ場における粒子と高分子のクラスターの引き伸ばしにより解釈できる。

【参考文献】

- 1) M.M. Ramos-Tejada, *et al.*, Colloids Surf. A Physicochem. Eng. Asp. 471(2015) 164-169
- 2) Y. Huang, *et al.*, Polymers 2020, 12, 1141

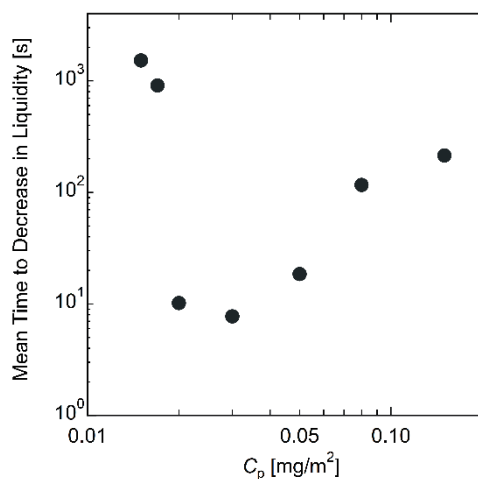


Figure 1. Relationship between the mean time to decrease in liquidity and the value of C_p . The PEO molecular weight was 1000 kDa.

クロマチンポリマーモデルの結合分子を介したブロップの動的相転移

(東大院総文¹ 東大先進²) 中西亮¹, 福島孝治^{1, 2}

【はじめに】

真核生物のゲノム DNA はクロマチンと呼ばれる繊維を形成し、細胞核の中に高度に折り畳まれて収納されている。例えばヒトの場合には、2m ほどの DNA が 10 μ m 程度の細胞核に収納されている。この 20 年ほどで核内でのゲノム DNA の 3 次元構造の時空間的な変化が遺伝子発現制御と密接に関わっていることが明らかになってきた。

さらに、近年は実験技術の発展からクロマチン構造についての詳細な情報が得られるようになってきており、その時空間構造について数理モデリングの面からアプローチすることが可能になってきている。SBS (Strings and Binders) モデル[1]はクロマチンとクロマチンに結合する核内分子による相分離を考慮したポリマーモデルであり、HiC や FISH などの実験結果を一定程度再現する。このモデルでは、クロマチンと多価的に結合する Binding molecule (BM) を介してクロマチンのセグメント間に実効的な引力が働くことで、クロマチンがクラスターを形成する[1, 2]。さらに、BM がクロマチンと結合しうる状態と結合しない状態の 2 状態の間を一定のレートでスイッチングする場合を考える[3]。これはタンパク質の翻訳後修飾などによる状態変化に対応する。この場合、1 本のクロマチン上に複数のブロップ (小さなクラスター) が形成される。このクラスターの大きさはスイッチングレートに依存して決まる[3]。クラスター構造の安定性の観点から、このクラスターの寿命がどのように決定されるかは興味深い。

【結果と考察】

本研究では、粗視化分子動力学シミュレーションを用いてクラスター形成、分裂、合体、消滅の時間発展を解析した。結合分子に注目して、クラスターの系譜を捉える方法を考案した。その結果、クラスターが合体や分裂を繰り返しながらポリマーにそって動的に動いており、独立したクラスターが存在しないことが分かった。また、クラスターの系譜の持続時間を評価すると、非ゼロのスイッチングレート以下で無限大になる相の存在を示唆する結果を得た。

【参考文献】

- (1) Mariano Barbieri et al., PNAS, 2012.
- (2) Andrea M. Chiariello et al., Sci. Rep., 2016.
- (3) Chris A Brackley et al., Biophys J., 2017.

過冷却液体の動力学: 分子運動から流体力学極限へ

(東大総合文化研究科) 前田 健登, 池田昌司

【はじめに】

液体を急冷すると、凝固点を過ぎても結晶化せず、過冷却液体になることがある。このまま冷却を続けると、粘性が著しく増大し、やがて粒子が乱れた配置のまま固化してしまう。この現象はガラス転移と呼ばれる[1]。

では、この過冷却液体はどのような流れを作るのだろうか。流体の運動は、マクロにはナビエ=ストークス (NS) 方程式によって記述できる。一方、ミクロには流体を構成する粒子の運動方程式を解くことによって記述できる。このミクロな運動の記述が、どの程度 NS 方程式と整合するのかを直接測定した研究は目下ない。

過冷却液体においては、動的不均一性の存在により、流体力学による記述の破綻が大きくなると考えられる[2]。そこで本研究では、過冷却流体の運動に関するミクロな記述とマクロな記述の接続という観点から、分子動力学シミュレーションを通じて粒子系に外力を加えたときに生じる定常流の解析を行った。

【方法と結果】

過冷却状態を実現するため、大粒子と小粒子を各 8000 個混合し、WCA ポテンシャルによって相互作用させた系を設定した。系の粘性を測定し、これが温度を下げるにつれて発散的に増大していることを確認した。

この系に対し、中心に双極子形の外力場を加え (図 1)、その定常状態におけるミクロな流れを測定した。非圧縮性流体が双極子形の外力のもとで作るマクロな流れは、NS 方程式から厳密に計算することができる。そこで、測定された流速と流体力学の予言との比較を行った。この結果、(i)過冷却液体においては外力場の近傍において流体力学の予言よりも流速が大きくなっていること、(ii)その流速の増加幅は過冷却が進行するほど大きくなること が明らかとなった (図 2)。この結果は、過冷却液体では外力の近傍で流体力学が破綻することを示している。

【参考文献】

- [1] Cavagna, A. (2009). Supercooled Liquids for Pedestrians. *Physics Reports*, 476, 51-124.
- [2] Furukawa, A., & Tanaka, H. (2011). Direct Evidence of Heterogeneous Mechanical Relaxation in Supercooled Liquids. *Physical Review E*, 84(6), 061503.

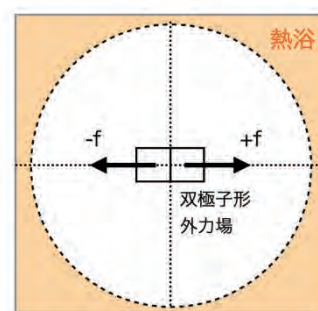


図 1: 分子動力学シミュレーションの設定

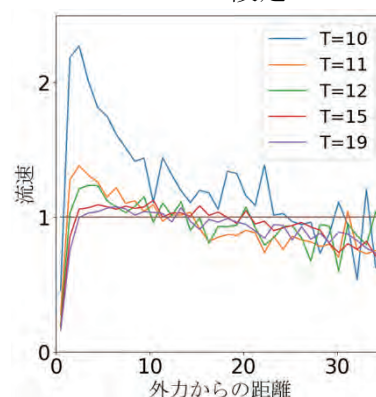


図 2: 流速を外力からの距離に対してプロットしたもの。ただし、流速は NS 方程式の解で規格化してある。T は熱浴の温度を表す。

2次元粉体中における楕円形物体の掃引則

(農工大・工・機械) 久保田卓実, 石川遥登, 高田智史

【はじめに】

粉体中で物体を掃引する際に周囲の粒子から受ける抵抗を理解することは応用などの面で重要である。粉体中での物体の掃引は流体中とは異なり、物体を掃引する際の抵抗の大きさと移動速度の関係は周囲の粉体の密度により複雑に変化する^(1,2)。円形物体の掃引の研究^(1,2,3,4)は多数行われているが、複雑な形状をした物体の掃引の研究はあまりない。そのため本研究においては、系をより現実のものに近づける初歩的な段階として、掃引する物体を楕円形状に設定し、離散要素法を用いたシミュレーションを行い、解析を行った。

【結果と考察】

まず、楕円形物体を掃引する際に物体が長軸に平行な運動の場合では不安定になることがわかった。これは、楕円形物体にはたらくモーメントを求めることで、長軸に平行な場合は微小回転方向に、垂直な場合は逆向きにモーメントがはたらくことから証明される。楕円形物体の運動が周囲の粒子との相互作用より上回る場合において、図1のように抵抗則は降伏力と動的項の和で与えられ、後者は簡単な衝突モデルを用いて近似的に再現されることがわかった。また、掃引力が十分に大きな場合の楕円形物体の前方の流れ場は、完全流体から得られる流線によく一致することがわかった。一方で、楕円形物体の運動と周囲の粒子との相互作用が釣り合う場合での、楕円形物体周辺の応力場についても調べた。その結果、楕円形物体の表面にはたらく応力からの情報を Airy 応力関数から求まる応力の式に適用することで、図2のように物体周りの応力場をよく再現することがわかった。

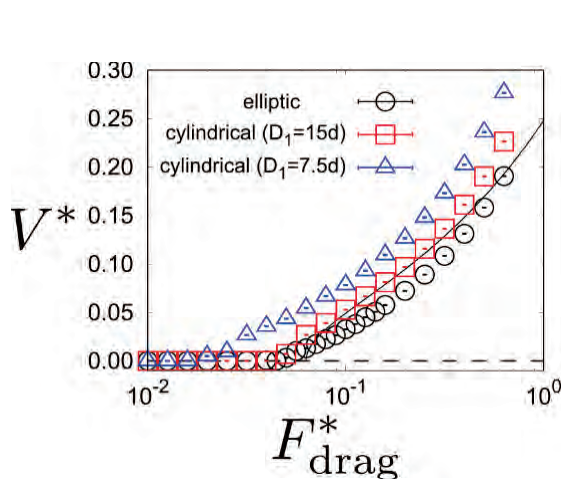


図1. 楕円形物体および円形物体における定常速度の掃引力依存性。

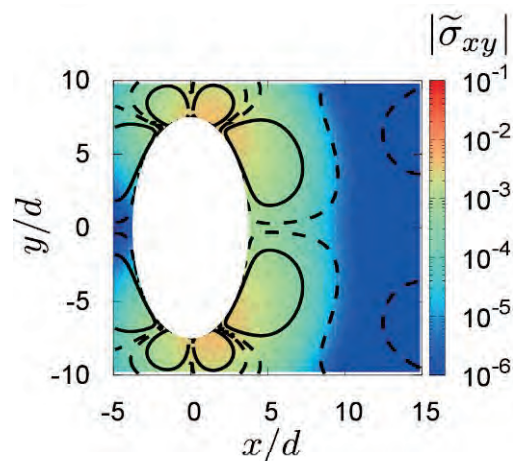


図2. 定常状態における応力場のxy成分。

【参考文献】

- (1) Y. Takehara and K. Okumura, Phys. Rev. Lett. **112**, 148001 (2014).
- (2) S. Takada and H. Hayakawa, J. Eng. Mech. **143**, C4016004 (2017).
- (3) T. Kubota, H. Ishikawa, and S. Takada, EPJ Web Conf. **249**, 03033 (2021).
- (4) T. Kubota, H. Ishikawa, and S. Takada, JPSJ **91**, 054803 (2022).

マイクロ・マクロ同時観察による泡沫への液体の浸透ダイナミクス

(都立大物理) 柳沢 直也, 谷 茉莉, 栗田 玲

【はじめに】

液体中に気泡が詰まって内包された状態にあるものを泡沫（フォーム）と言う。泡沫がもつマクロな性質の一つとして、泡沫に液体を接触させると、自発的に内部に液体を吸収するという吸水性が挙げられる。これは泡沫の浸透圧が原因で生じる現象であり、汚れの輸送といった産業応用とも深く関係しているため、泡沫への液体の浸透挙動を理解することは重要である。先行研究では、浸入液体の浸透フロント（先端位置）は、浸透初期においては、気泡のサイズや分散、液体に含まれる界面活性剤の種類、微小重力下などの実験条件に依存せずに、時間の $1/2$ 乗に比例して進行することが知られている[1-2]。浸透後期においては、時間の $1/2$ 乗から外れることが報告されており[2]、局所的な液体分率が浸透速度に影響を与えていると考えられているが、その物理的な起源については明らかになっていない。

そこで我々は、これまであまり調べられていない、気泡サイズ程度のミクروسケールにおける浸透挙動と、泡沫サイズ程度のマクروسケールにおける浸透挙動を実験的に同時観察することで、泡沫への液体の浸透特性を明らかにすることを目的として研究を行った。

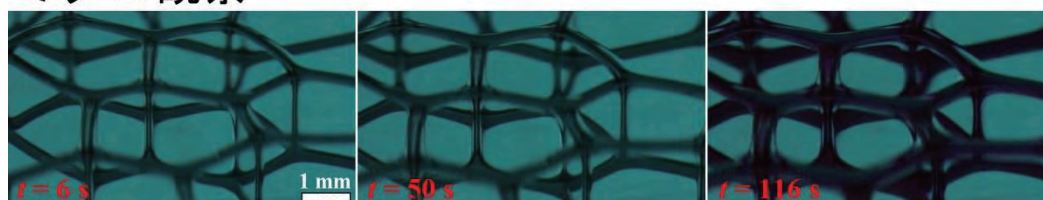
【結果と考察】

マイクロ・マクロ同時観察の結果、注入液体の浸透フロントよりも前方にあるプラトー境界のサイズが、先行して大きくなっていることがわかった。このことは、注入液体の浸透によって、泡沫に元々あった液体が押し出されていることを意味している。本発表では、これらの解析結果と、考察として泡沫への液体の浸透メカニズムについて報告する。

マクロ観察



マイクロ観察



泡沫に液体が浸透する様子。(上図：マクロ観察, 下図：マイクロ観察)

【参考文献】

- [1] H. Caps *et al.* *Colloids Surf., A : Physicochem. Eng. Aspects* **261**, 131–134 (2005).
- [2] K. Tsuritani and S. Inasawa. *RSC Adv.* **11**, 33093 (2021).

第一原理計算による分子進化の理論

(日大理工) 山中 雅則

【はじめに】

天然高分子化合物、特に蛋白質の分子進化については多くの課題が存在する。1つ目として最初のペプチドや蛋白質の合成はセントラルドグマとは無関係である。セントラルドグマはその合成系に多種類の蛋白質が必要であるからである。初期のペプチドや蛋白質はどのようにして合成されたのかという課題である。2つ目に、蛋白質ではアミノ酸20種類を元にとすると1次構造は残基数と共に指数関数的に莫大な種類が可能である。しかし実際に存在するスーパーファミリーや3次元立体構造の総数が極めて少ないという問題が存在する。具体例として300残基の蛋白質の1次構造は20の300乗通り可能であるが、立体構造は多くても10万種類程度であるとされている(1, 2, 3, 4)。1次構造として可能な種類の莫大さから比較すると、地球上に現存する蛋白質の全ての集合に落ち着く確率はほぼ0である。3つ目として地球上の蛋白質の全ての集合とその立体構造が、蛋白質の分子進化において必然の結果であるか、偶然に過ぎないのかという問題も存在する。1次構造の可能な組み合わせの莫大さから想定すると必然的であるとはとても考えにくい。したがって、地球上には存在しない蛋白質のスーパーファミリーが理論上は仮想的に無限個存在していても不思議ではない。

【方法】

本研究では、分子進化の手がかりあるいは痕跡が個々の分子の電子状態に残されているのではないかという仮定の元に、分子の電子状態を系統的、網羅的に第一原理的手法により計算し、それらの特定の統計量に注目して、生体高分子の伸長と共に、それらの統計量がどのように遷移していくかを追跡することで、分子進化について理論的に考察する。具体的には、アミノ酸、ジペプチド、トリペプチドについてエネルギー準位の統計性の分化が起こるかについて調べた。統計精度を上げるために分子動力学により多数の立体構造をサンプリングし、それぞれの構造について密度汎関数法により高精度の計算を実行し、さらに立体構造のサンプリングと合わせて統計量を求めた。

【結果と考察】

アミノ酸20種類(5)、ジペプチド400種類、トリペプチド約100種類について計算を行った結果、すべての分子でエネルギー準位が臨界統計を示すことが判明した。対照実験として炭化水素鎖についても計算を実行し、炭化水素鎖については鎖の伸長とともにエネルギー準位の統計性が変化するという結果も得た。これらを元に、分子進化はエネルギー準位の臨界統計性を保ったルート上を進行し、途中の過程でさまざまな統計性をもつ蛋白質に分化したと推測している。

【参考文献】

- (1) C. Chothia, *Nature* 357, 543 (1992).
- (2) C. A. Orengo, D. T. Jones, and J. M. Thornton, *Nature* 372, 631 (1994).
- (3) N. N. Alexandrov and N. Go, *Protein Sci.* 3, 866 (1994).
- (4) Z.-X. Wang, *Proteins* 26, 186 (1996).
- (5) M. Yamanaka, *J. Phys. Soc. Jpn.* 86, 023801 (2017).
- (6) この研究は科研費No.19K21857の支援を受けています。

這行運動する細胞の力学フィードバックによる自己組織化

(立命館大学 生命科学部) 多羅間ゾンヤ

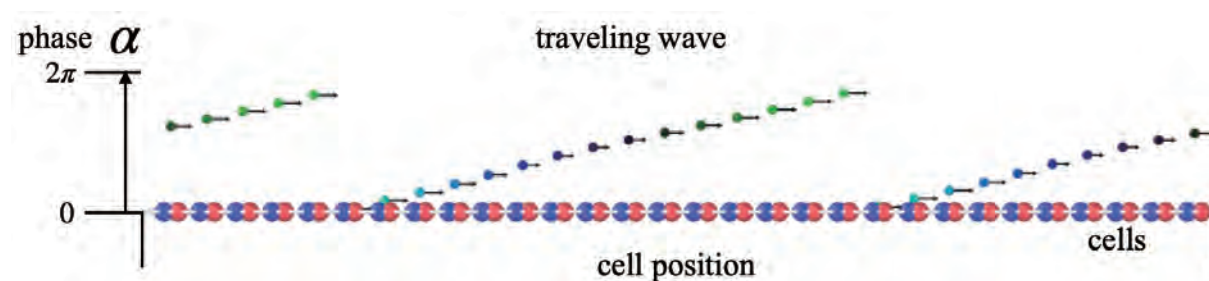
【はじめに】

生物細胞は集団で組織や器官、さらには個体といった、複雑な構造を作り上げる。このような構造を形成するためには、細胞同士が互いを認識し、互いの配置や運動を制御するなど協同的に振る舞う必要がある。ここでは、物理学の観点から、より抽象的なレベルで個々の細胞間のどのような相互作用により、細胞集団が複雑な構造を自己組織化するのかを明らかにすることを旨とする。本発表では、特に、力学フィードバック相互作用を考える。

【結果と考察】

出発点として細胞の這行運動の力学モデルを用いる (1)。このモデルでは、細胞が基盤の上を這って運動するのに、以下のステップを繰り返す。まず、細胞前方が基盤から剥離する。次に、細胞前方を伸長し、再び基盤に接着する。最後に、細胞後方を基盤から剥離し、細胞全体を収縮することで前に移動したのちに後方が再び基盤に接着する。基盤に接着した状態と剥離した状態とでは基盤表面との実効的な摩擦が異なるため、細胞が前方を押し出すような動きが生じ、前進することができる。このモデルに細胞間相互作用に起因する力学フィードバック機構を導入する。フィードバックがない場合には、伸張・収縮サイクルの中で細胞が進む速度は一定となるが、フィードバックがあることで、外力に応じて伸張・収縮サイクルの位相の発展速度と細胞が伸縮する長さの二つの細胞内ダイナミクスが変化することを仮定する。

本発表では一次元の結果を紹介する。細胞間の排除体積相互作用によって細胞に外力が働く。この外力に応じた力学フィードバックの性質によって、近接する細胞同士の間で内部位相が同位相または逆位相で同期することを確認した。さらに、フィードバックの強さに応じて、運動停止状態や、進行波の形成などの複数の動的モードが現れた。



【参考文献】

- (1) M. Tarama et al., J. Phys. Soc. Jpn. **87**, 044803 (2018)

光劣化を受けるウレタン架橋樹脂のネットワーク寿命

(名古屋大学) 石田 崇人

【はじめに】

3次元網目構造を持つ熱硬化性樹脂はその良好な機械特性や熱安定性から工業利用が盛んである。その中でも、熱硬化性アクリル系ウレタン架橋樹脂 (AUN) は適度な柔軟性と耐候性を有することから塗料や接着剤用途として屋外で用いられることが多い。ただし、光劣化を受ける AUN はある程度の分子鎖切断を受けると内部ネットワーク構造が大規模に変化し、初期に“緩く”結合されたネットワークから“硬く、脆い”ネットワークへと遷移することがわかっている[1]。本発表では、鎖切断に伴うネットワーク崩壊現象をミクロな反応速度論から出発する kinetic モデルと平均場を仮定したメソスケールの脱ゲル化モデルを用いて、異なるスケールから出発した2つのモデルが半定量的に比較可能なネットワーク寿命が提示することを示す。

【結果と考察】

ミクロスケールから出発する劣化反応 kinetic モデルは、光劣化反応の機構のうち酸化反応が支配的であることを仮定し、ラジカルを介する自動酸化反応の素反応を愚直に列挙し、それを速度論的に解く手法である。AUN 光劣化をそのフレームワークに載せることで、AUN 劣化の化学的指標である C=O 結合量の蓄積及び C-H 結合の反応消費挙動を再現するモデルを構築できる。そのモデルが予測する切断・架橋頻度を用いて、弾性鎖が完全に消失し、ネットワークの崩壊時期を見積もることができる。

上記 kinetic モデルは複数の反応速度定数をパラメータに持つため複雑かつ構造崩壊予測に恣意性が残る。次は、もう少し粗視化度を上げてパラメータが少なく、フィッティングパラメータなしのメソスケールモデルを構築し、ミクロな kinetic モデルと突き合わせてみる。ネットワークの崩壊を記述しうるメソスケールモデルとして、Flory の古典ゲル化理論を逆に用いた脱ゲル化モデルを誘導した[2]。AUN のトポロジーを踏まえると、脱ゲル化モデルによれば約3割の結合切断が起こると構造崩壊に至る。その反応率に至る時期を赤外分光スペクトルから見積もると、ミクロな劣化反応 kinetic モデルと半定量的に比較可能なネットワーク寿命を示すことが明らかとなった (図1)。

【参考文献】

- (1) T. Ishida et al. *Polym. Degrad. Stab.* 162, 85–93 (2019).
- (2) T. Ishida et al. *Polymer (Guildf.)* 186, 122035 (2020).

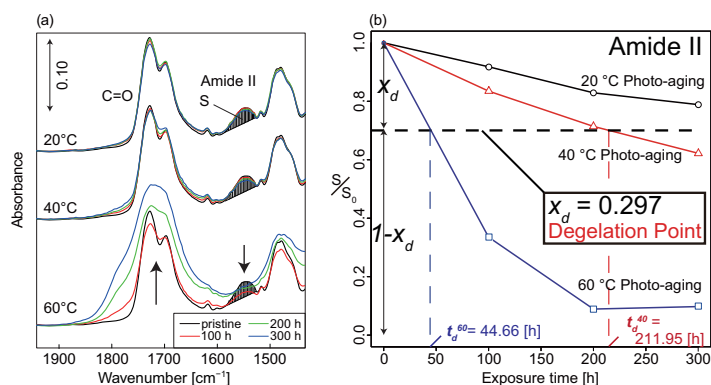


図1 (a) 光劣化に伴う赤外分光スペクトル変化
(b) ウレタン架橋点濃度とネットワーク寿命

高分子架橋過程がコロイドの運動に与える影響

(都立大物理、大日本塗料(株)) ○古田祐二郎, (都立大物理) 谷茉莉, 栗田玲

【はじめに】

塗料やインクは、塗装時は液体状態で、成膜過程を経て塗装後にガラス状態(塗膜)へと変化する。成膜過程の制御は、技術者の経験により行われており、成膜過程でどのような現象が生じるのか、といった基本的な理解が不足している。

成膜過程は主に、2種類の過程により進む。乾燥過程と架橋(化学反応)過程である。本研究では、架橋(化学反応)過程に注目する。塗料やインクは、高分子(モノマーなども含む)とコロイドの混合系であり、高分子が架橋により高分子化することにより成膜する。高分子化過程では反応速度や周囲の溶媒との相互作用により、最終的な高分子の末端間距離などの構造的特徴に変化が生まれることが知られている[1]。高分子架橋過程により、コロイドの運動や構造に変化が生まれることが予想される。そこで、我々は粗視化分子動力学法のシンプルなモデルにより、高分子架橋過程のコロイドの運動への影響を調べた。

【結果と考察】

コロイドの体積分率を 0.112、NPT 条件下において、2種類のモノマーの最大架橋数を 2 と 4 にした場合のコロイドの平均二乗変位を図(a)に、架橋なしの場合の平均二乗変位を図(b)に示す。これらより、架橋が十分進んでいない $300 \leq \text{time} \leq 1000$ では、架橋なしと同様に拡散的なふるまいを示した。しかし、架橋が進んだ $1000 \leq \text{time} \leq 1700$ では、平均二乗変位の傾きが減少し、subdiffusive な振る舞いを示し、 $1700 \leq \text{time} \leq 2400$ 以降では、MSD がプラトーになった。一方で、架橋なしの条件では、常に拡散的な振る舞いを示しており、本モデルでは枯渇力相互作用は働いていないと考えられる。講演では、運動性だけでなく構造についての結果も発表する。

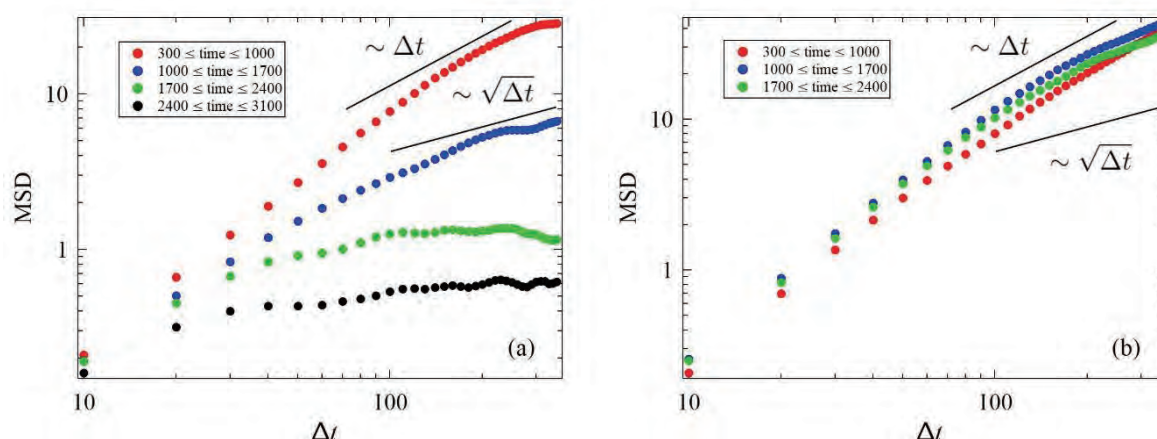


図. 架橋あり(a)、架橋なし(b)の場合のコロイドの平均二乗変位

【参考文献】

[1] M. Bley, U. Baul and J. Dzubiella, *Physical Review E*. **104**, 034501(2021).

cis 体アゾ分子の励起寿命に着目した配向秩序変数変化の高解像度化

(京都大学大学院理学研究科) ○川西 永起 山本 潤

【はじめに】

分子マニピュレータは、アゾ分子と操作対象の分子を分散させたネマチック液晶においてアゾ分子をトランス-シス光異性化させる励起光を試料の一部に照射し、配向秩序変数の空間変調を誘起して対象分子の濃度分布を制御する[1]。一方で、シス体アゾ分子が励起光照射領域外に拡散することにより照射領域外でも配向秩序変数が低下し、マニピュレーションの解像度が低下する問題がある[1]。本報告では、シス体の寿命が短い push-pull 型アゾ分子を用いて励起光照射領域外での配向秩序変数の低下を抑制し、先行研究[1]より高解像度な配向秩序変数変調を形成した。

【実験】

4-Cyano-4'-heptylbiphenyl (7CB) にアゾ分子 Methyl yellow または push-pull 型アゾ分子 disperse red1 (DR-1)のどちらか一方を 3wt%混合した 2 種類のネマチック液晶試料を作成した。試料は厚さ $d=25\mu\text{m}$ の水平配向セルに入れ、ネマチック相を保ち、蛍光顕微鏡の落射照明装置の視野絞り位置に穴径 $25\mu\text{m}$ ピンホールを入れ、青色光を試料の一部に照射することにより配向秩序変数変化を誘起した。励起光は対物レンズで絞り込まれ直径 $1.1\mu\text{m}$ 程度の領域に照射される。励起光照射前後の配向秩序変数の空間変化は二次元イメージング分光器により透過光を測定して求めた。

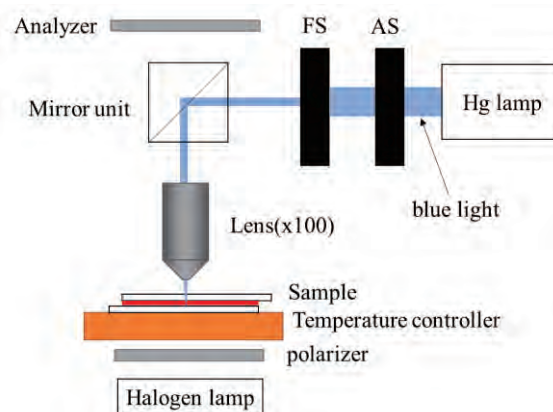


Fig.1 実験装置の概略図

【結果と考察】

DR-1 を含む試料にピンホールを用いてその像の形に青色光を照射することで照射強度分布と同様に FWHM にして $1\mu\text{m}$ 台の高解像度な配向秩序変数変化が得られた(Fig2(b))。一方、methyl yellow を含む試料の場合、cis 体分子の拡散により励起光照射領域外でも配向秩序変数の低下が見られる。また、青色光照射強度分布(Fig2(a))は DR-1 による蛍光を観察して求めることができる。

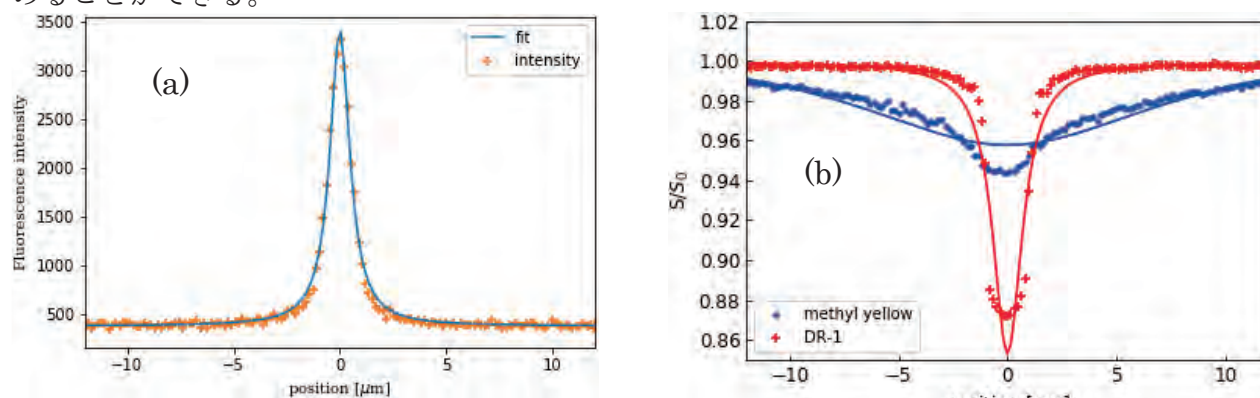


Fig.2 蛍光顕微鏡による配光秩序変数変調

(a)青色光照射強度分布 FWHM:1.13 μm (b)配向秩序変数変調 赤:DR-1 FWHM:1.64 μm 青:methyl yellow FWHM:17.6 μm

【参考文献】

[1] Samitsu, S., Takanishi, Y. & Yamamoto, J. Molecular manipulator driven by spatial variation of liquid-crystalline order. Nature Mater 9, 816-820 (2010)

双子型井戸中の細菌の分子動力学シミュレーション

(九州大学理学府) 金子 甲二郎, 福田 順一

【はじめに】

濃厚細菌溶液中では、バルク領域において特徴的な長さスケールを持った、非定常なアクティブ乱流が生じる。そのアクティブ乱流固有の長さスケールに対応する、幾何学的な長さスケールを持った閉じ込めや周期的に配置された障害物のような領域への制約を課すと、細菌が移動可能な領域で安定した渦が発生することが確認されている(1,2)。

本研究は二つの円を部分的に重ね合わせた井戸中における、細菌の集団的な運動を分子動力学シミュレーションによって調べるものである。細菌集団を排除体積的に相互作用する自己駆動する棒の集まりとしてモデル化して考える。細菌固有の性質や閉じ込めが持つ幾何学的性質を変化させた際に生じる集団的な振る舞いの変化を調べ、アクティブマターと領域の制約の一般的な関係を明らかにすることを目指している。

【結果と考察】

系を特徴づけるパラメータは、棒状粒子に関してはその長さに対応するアスペクト比 a 、棒状粒子同士や壁との間の排除体積的相互作用の強さを表す相互作用ポテンシャルの大きさ U_0 、系全体に関しては領域の大きさを表す二つの円の半径 R 、二つの円の中心間距離 Δ 、粒子の密度に対応する面積分率 ϕ である。これらを変化させ、複雑な形状の領域に棒状粒子を閉じ込めた時の粒子集団の定性的な振る舞いを調べた。

排除体積相互作用が強く粒子同士の部分的な重なりが全く許されない時は、面積分率 $\phi = 0.30$ 程度の中程度の密度であっても粒子の運動が強く抑制され、ジャミング的な振る舞いが顕著に見られた。一方で排除体積相互作用が弱く粒子同士がすれ違える程度の際は、壁近傍であまり動かない局所的な凝集と粒子が疎な領域が形成され、しばらくすると粒子が分散していき一時的な全体での粒子流が生じるという過渡的な振る舞いが見られた。これらの結果は、閉じ込めによる領域の制限が単に渦的な振る舞いを安定させるだけでなく、棒状粒子のジャミングや凝集を誘起する効果を持つことを示している。

【参考文献】

- (1) H. Wioland *et al.*, *Phys. Rev. Lett.* 110, 268102 (2013).
- (2) K. Beppu *et al.*, *Soft Matter* 13, 5038 (2017).

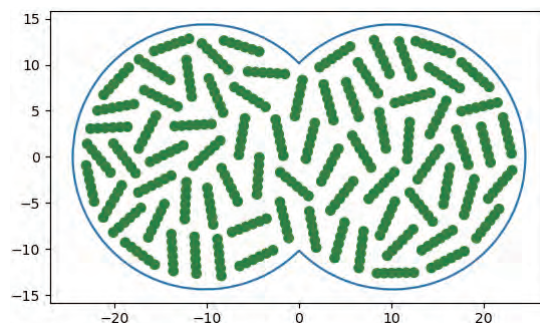


Fig 1. 強相互作用時のジャミング

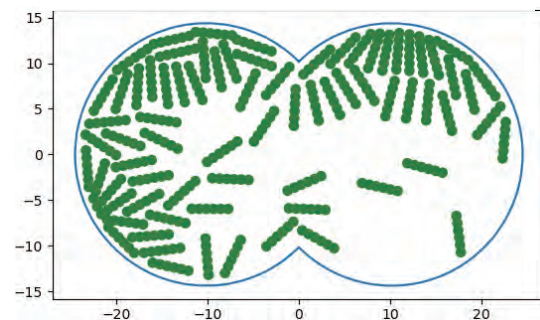


Fig 2. 弱相互作用時の壁近傍での凝集

環状高分子の協調運動に関する分子動力学シミュレーション解析

阪大院基礎工 後藤 頌太, 金 鋼, 松林 伸幸

【はじめに】

高分子はトポロジーに由来する拘束 (Topological constraints, TCs) によって物性を大きく変化させる。TCs の最も代表的な例は、直鎖状高分子集合系における“絡み合い”である。絡み合いを平均場的に取り扱うことで動的性質を説明した理論が“レプテーションモデル”であり、実験・シミュレーションの結果をよく再現する。しかしながら、末端の存在しない環状高分子の場合にはレプテーションモデルが適用できない。これは、環状高分子集合系における TCs が絡み合いとは本質的に異なるためであり、化学種や重合度を変えることなく物性を大きく変化させることが可能であることを示唆する。そこで、直鎖状高分子の絡み合いに対して、環状高分子の場合は環同士のすり抜けを意味する“スレディング”と呼ばれる TCs が重要となると考えられている。最近、スレディングにはガラス形成物質におけるパッキングによるダイナミクスのスローダウンとの類似性が存在すると報告された [1]。本発表では、協調運動の観点から、環状高分子とガラス形成物質の類似性をより詳細に調査することを目的とした。

【結果と考察】

ガラス形成物質はパッキング効果のため、拡散に隣接する粒子との協調運動が必要となる。これがガラス形成物質に見られる動的不均一性の原因と考えられている。動的不均一性の定量化によく用いられるのが non-Gaussian parameter (NGP) である。TCs を特徴づけるため、直鎖状高分子と環状高分子の NGP を比較した [図 1]。直鎖状高分子の NGP に現れる大きなピークは絡み合うことで引き起こされる協調運動を反映していると考えられる。一方で、環状高分子の NGP は極めて抑制されており、動的不均一性が小さい。すなわち協調運動がほとんど存在しないことを示しており、環状高分子の TCs は絡み合いやパッキングとは大きく異なることを示唆する [2]。本発表ではさらに、環状高分子の拡がりや数密度を系統的に変化させることで TCs をコントロールし、環状鎖の TCs をより詳細に解析した結果についても報告する。

【参考文献】

- [1] D. Michieletto and M. S. Turner, *Proc. Natl. Acad. Sci. USA*, 113, 5195–5200 (2016).
 [2] S. Goto, K. Kim, N. Matubayasi, *J. Chem. Phys.*, 115, 124901 (2021).

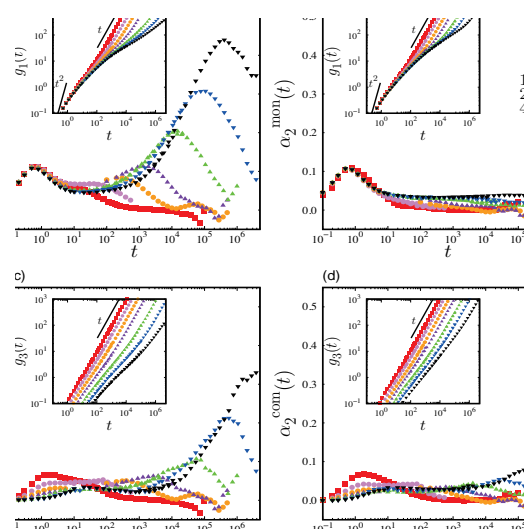


図 1. モノマービーズのノンガウシアンパラメーター(NGP) $\alpha_2^{\text{mon}}(t)$ と重心の NGP $\alpha_2^{\text{com}}(t)$ を直鎖 [(a), (c)] 及び環 [(b), (d)] についてそれぞれプロットした。挿入図はモノマービーズの MSD $g_1(t)$ 及び重心の MSD $g_3(t)$ である。直線は弾道運動 ($\sim t$) と拡散挙動 ($\sim t$) を表す。

アクティブブラウン粒子系の相分離挙動の回転拡散係数依存性

(東北大学大学院理学研究科) 山本 洋椰

【はじめに】

空を飛ぶ鳥の群れや水中を泳ぐバクテリアの集団など自分が保有しているエネルギーや環境にあるエネルギーを自身の駆動力に変換し運動するものはアクティブマターと呼ばれている。アクティブマターのミニマルモデルとしてアクティブブラウン粒子系がある[1]。アクティブブラウン粒子系はブラウン粒子系に並進方向に自己駆動する効果を付け加えた系であり、自己駆動する方向は回転拡散係数の大きさに依存してランダムに変化する。また、アクティブブラウン粒子系には自己駆動力により **Motility-induced phase separation(MIPS)**と呼ばれる相分離をすることが知られている[2]。平衡状態の球状のブラウン粒子には並進方向の拡散係数と回転方向の拡散係数には一定の関係が存在するが、独立なパラメータとみなして並進方向の拡散係数を固定し回転拡散係数を変化させシミュレーションを行い、回転拡散係数の変更が系のマクロな状態にどのように影響を与えるか調べた。

【結果と考察】

粒子密度が低いとき、回転拡散を大きくするにしたがって MIPS は起こりづらくなるという結果を得た。これは、回転拡散を大きくすると自己駆動の運動が並進方向のランダムな運動に置き換わるためと考えられる。一方で、粒子密度が高いとき回転拡散を大きくしていくと固体、液体、固体の順に系の状態が現れた。これは、回転拡散が並進方向のランダムな運動に置き換わる一方で、粒子の有効的な直径を大きくするなどの効果に置き換わるためと考えられる。この現象を系の圧力や配向の相関関数などを計算して調べた。

【参考文献】

- [1] M. E. Cates and J. Tailleur, *Annu. Rev. Condens. Matter Phys.* 6, 219 (2015).
- [2] P. Romanczuk, M. Bär, W. Ebeling, B. Lindner, and L. Schimansky-Geier, *Eur. Phys. J.* 202, 1 (2012).