

科学研究費補助金（学術創成研究費）公表用資料  
〔事後評価用〕

平成16年度採択分

平成22年3月31日現在

研究課題名（和文）ソフトマター：多自由度・階層系の協同的  
機能発現の新しい基本原理

研究課題名（英文）Soft matter: A new basic principle behind the cooperation among multiple functions in a dynamic hierarchical system

研究代表者

氏名 田中 肇 (Tanaka Hajime)

所属研究機関・部局・職 東京大学・生産技術研究所・教授



推薦の観点：創造的・革新的・学際的学問領域を創成する研究

研究の概要：ソフトマターの最大の特徴は、その幾重にもわたる階層的な構造にある。また、一見単純に見える液体もある種の階層構造を内包することが最近の研究から明らかになりつつある。このような階層間の複雑な関わり、液体自身の階層性がソフトマター、液体の性質にどのようなかかわっているかといった問題は、これまで殆ど研究されてこなかった。そこで、これら多自由度・階層系の動的挙動に注目し、ソフトマター、液体の本性に迫るべく研究を行った。

研究分野： 数物系科学

科研費の分科・細目： 物理学、生物物理・化学物理

キーワード： ソフトマター、液体、階層性

### 1. 研究開始当初の背景

ソフトマターは、液体、高分子、液晶、両親媒性分子、コロイド、蛋白質などのソフトな力学的性質を持つ物質群の総称であり、物理学・化学・生物学・材料科学の分野に跨る学際的な性格をもつ重要な物質群として近年大きな注目を集めている。研究開始当時、ナノテクとの絡みで、物理化学においては微視的観点からの研究が主流であり、幾重もの階層にまたがる動的過程は未踏の領域であった。微視的な物理・化学物性が現象の基礎ではあるが、こればかりでは閉塞状況である。微視的には到底迫り得ない階層的協同現象にも光をあてていくことが物理・化学分野の新段階を開くことに不可欠であると考えた。

### 2. 研究の目的

ソフトマターのソフトさの起源は、大きくてのろまな構成要素にある。高機能ソフトマターの代表である生体物質は、多様かつ高い機能を極めて効率的に発現する。この様なソフトマターの物理的・化学的・生物学的な機能発現の特質は、のろまではあるが大きな自由度を階層的に内包した系が作り出す多自由度・階層系特有の協同的な機能の発現様式にあるといえる。この点に注目し、特に、流動場を介した多自由度間の“動的な結合”の機構の解明、また、液体そのものの階層性に起因した様々な未解明現象、水型液体の熱力学・動的異常、液体・液体転移現象・ガラス転移現象の統一的な解明などを目的とした。

### 3. 研究の方法

研究手法としては、実空間観察（特に共焦

点レーザ顕微鏡によるコロイドの一粒子観察）、波数空間解析、熱測定、分光測定などを中心とした実験、粒子レベルでの数値シミュレーション、粗視化モデルに基づくシミュレーション、理論を組み合わせることで、上記の目的を達成するべく研究を遂行した。

### 4. 研究の主な成果

(1) 動的非対称性と相分離パターン形成・力学不安定性

我々が、高分子溶液系において発見した粘弾性相分離現象が、コロイド分散系、タンパク質溶液、膜系においても起きることを発見した。このことは、粘弾性相分離が、成分間の運動性に大きな差がある系（動的非対称系）に普遍的な現象であることを強く示唆している。また、流体力学的相互作用を取り入れたコロイド系のシミュレーション（流体粒子ダイナミクス（FPD）法）により、ゲル形成に流体力学的相互作用が重要な役割を果たすこと、また、従来の常識を覆し、熱揺らぎなしでもコロイドのネットワークが力学的に粗大化し得ること、すなわち、全く新しい純粋に力学的な粗大化の機構が存在することを示した。さらに、高分子溶液系において、力学的な破壊により相分離が進行する新たな相分離現象（破壊型相分離と命名）を発見した。これにより、熱力学的力が支配する相分離から、力学的力が支配する相分離に至る自然界における相分離の普遍的かつ包括的な描像を確立することに成功した。

また、単純液体において粘度の密度依存性

#### [4. 研究の主な成果 (続き)]

を通じて、流れ場と密度揺らぎの間に新しいタイプの結合が生まれることを見出し、流体力学における新たな非圧縮条件の存在を明らかにした。この考え方をさらに発展させ、粘弾性的、固体的破壊の予測にも成功し、延性・脆性破壊の物理的起源を明らかにした。さらにその本質が、粘弾性相分離における基本概念でもある上述の「動的非対称性」にあること、すなわち、相分離現象から、破壊現象に至る広範な物質の不均一化現象において、動的非対称性が根源的な役割を演じていることが明らかとなった。

#### (2) コロイド系における多自由度間結合

分散媒質である液体に、イオン場、液晶配向場、2成分混合液体の濃度場を導入することで、それぞれの自由度を取り入れた新しいシミュレーション法の開発に成功した。また、FPD法に基づく高分子シミュレーターを構築し、高分子のコイル・グロービュル転移における流体成分の役割を明らかにした。

#### (3) コロイド・高分子混合系における臨界現象、ゲル化の粒子レベルでの研究

本系における気体-液体転移に伴う臨界揺らぎを、一粒子レベルの分解能で捉えることに初めて成功するとともに、ゲル化における局所構造形成と運動停止の関係についても、粒子レベルで機構を解明した。

#### (4) 液体・液体転移の発見と機構解明

我々は、単成分の分子性液体である triphenyl phosphite、*n*-butanol において液体・液体転移を発見した。その転移様式に核形成・成長型とスピノーダル分解型の2種類が存在し、その現象が非保存秩序変数の秩序化として理解できることを示した。この他にも、液体・液体転移に伴う液体の運動性の低下様式(フラジリティ)の変化、空間拘束の効果などを通じて、液体・液体転移の背後に臨界現象的挙動が存在することを明らかにした。さらに、液体・液体転移により他の液体との相溶性が変化し、ある場合には液体・液体転移誘起相分離が起きることを発見した。

#### (5) ガラス転移の機構解明

複数のモデルガラス系において、過冷却液体の動的不均一性の原因が、液体中に出現する過渡的な結晶的中距離ボンド秩序にあることを発見した。また、過冷却液体・ガラス状態におけるボゾンピークが横波音波の平面波としての伝搬限界と密接な関係があることも発見した。さらに、流れの中で、動的不均一構造が自己組織的に異方的に再配置することが流動下での粘性の低下(非線形流動挙動)に関係していることを見出した。

#### 5. 得られた成果の世界・日本における位置づけとインパクト

我々が対象としたソフトマターはその階層性のゆえにメゾスコピックな時間・空間スケールが本質的に重要な役割を演じるという点に最大の特徴を有する。多自由度・階層系の物理という観点から、個別の系の特異性にとらわれることなく、その普遍的な面に焦点を当てた点に、本研究の大きな特徴がある。粘弾性相分離、液体の流動不安定化、ガラス状物質の破壊、液体・液体転移の機構解明、ガラス転移における中距離ボンド秩序の役割に関しては、世界・日本を含め、我々のグループが大きく先行しており、先駆的な業績を挙げることができたと自負している。これらの知見は、ソフトマターのみならず、バイオ・ハードマターを含む全凝縮系における、多自由度を内包した階層的複合系の協同的機能発現という新しい概念の創成に寄与するものと期待される。

#### 6. 主な発表論文

(研究代表者は二重線、研究分担者は一重下線、連携研究者は点線)

1. Rei Kurita and Hajime Tanaka, Critical-like phenomena associated with liquid-liquid transition in a molecular liquid, **Science** Vol. 306, pp. 845-848 (2004).
2. Yasutaka Iwashita and Hajime Tanaka, Self-organization in phase separation of a lyotropic liquid crystal into cellular, network and droplet morphologies, **Nature Materials** Vol. 5, No. 2, pp. 147-152 (2006).
3. Hiroshi Shintani and Hajime Tanaka, Frustration on the way to crystallization in glass, **Nature Physics** Vol. 2, pp. 200 - 206 (2006).
4. Akira Furukawa and Hajime Tanaka, Violation of the incompressibility of liquid by simple shear flow, **Nature** Vol. 443, pp. 434-438 (2006).
5. Takeaki Araki and Hajime Tanaka, Colloidal Aggregation in a Nematic Liquid Crystal: Topological Arrest of Particles by a Single-Stroke Disclination Line, **Physical Review Letters** Vol. 97, 127801 (2006).
5. Rei Kurita, Ken-ichiro Murata and Hajime Tanaka, Control of fluidity and miscibility of a binary liquid mixture by the liquid-liquid transition, **Nature Materials** Vol. 7, pp. 647-652 (2008).
8. Hiroshi Shintani and Hajime Tanaka, Universal link between the boson peak and transverse phonons in glass, **Nature Materials** Vol. 7, pp. 870-877 (2008).

ホームページ等

<http://tanakalab.iis.u-tokyo.ac.jp>