

# やわらかく小さなシステムの構造変化と非平衡ダイナミクス

東京大学大学院理学系研究科・教授 佐野 雅己

非平衡状態におけるソフトマターの基本特性の探求を目的としており、今年度は非平衡定常状態における新しい関係式の検証、1分子 DNA の外力応答と構造変化、粘塑性物質における新規な不安定性の発見という3つの成果を得た。

## 1. 非平衡定常状態における新しい関係式の実験的検証

ここ数年で非平衡統計力学の分野の様相は一変した。例えば、非平衡状態に関する Fluctuation Theorem や Jarzynski 等式の発見は、従来は理論的扱いが困難であった小さな系や非線形領域での揺らぎに関して新しい切り口を提供するものである。ソフトマターは微小な外力に対して大きな応答とゆらぎを示すため、これら非平衡の新理論を検証し応用する格好の舞台である。我々は、非線形系の非平衡定常状態に関して最近提案された Harada-Sasa 等式をコロイド粒子系に適用し、レーザーピンセットで粒子をドライブさせて非平衡定常状態を実現し、この関係が成立していることを実験的に初めて検証した。さらに高分子溶液中のコロイド粒子系においてもこの関係式の成立を高精度で実証し、高分子溶液中のコロイドの運動が記憶効果を持つ一般化ランジュバン方程式で記述される実験的証拠を与えた。図1に示すように H-S 等式の右辺である速度の相関関数と応答関数の差と左辺のエネルギー散逸が各周波数で良く一致している。この結果は、Phys. Rev. E 75 (2007)に発表した。

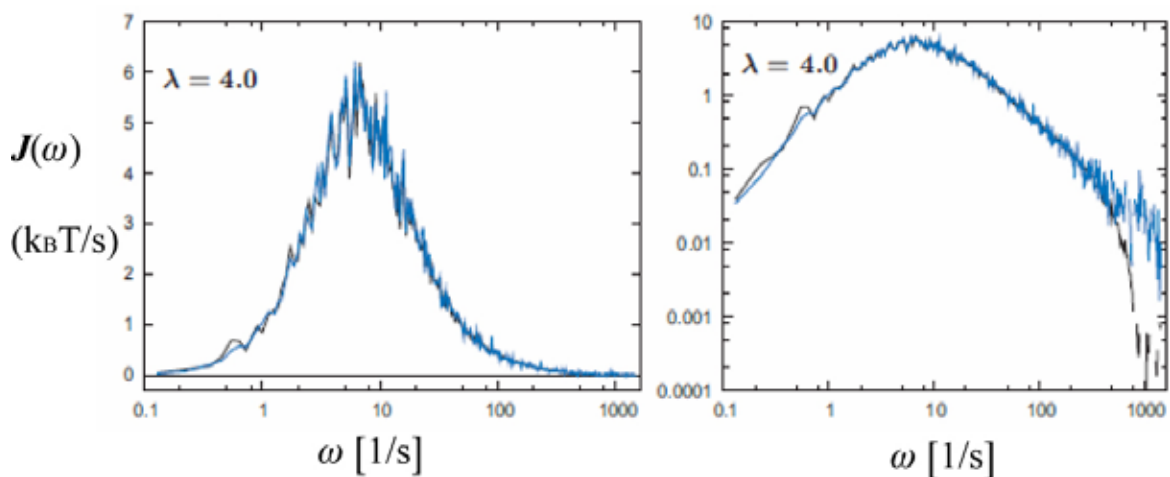


図1 高分子溶液中のコロイド粒子のスイッチング運動によるエネルギー散逸率

## 2. 1分子 DNA の外力に対する応答と構造変化

DNA は直径(2nm)に比べて全長が極めて長いため、セミフレキシブル高分子の理想的なモデルとして探求する価値がある。また、荷電高分子であるため溶液中のイオンの価数や濃度を変えることにより1分子でもランダムコイル状態と凝集した状態の間で相転移を起こすこと

が知られている。したがって、凝縮した DNA 分子が外部から加えられた力に対してどのように応答し、構造変化を起こすかを定量的に測定することで DNA の凝縮相転移に関する知見が得られることが期待される。我々は、1 分子 DNA の両端にビーズを付け、様々のイオン濃度の下でレーザーピンセットを用いて伸張することにより力学応答がどう変化するかを調べた。その結果、3 価のイオンであるスperlミジン (SPD) 濃度が十分低い状態では、セミフレキシブル高分子の特徴である Worm-Like Chain (WLC) 特性、SPD が  $500 \mu\text{M}$  程度では力が一定で引き伸ばされるプラトー特性、SPD が  $1\sim 10\text{mM}$  の高濃度では鋸歯状の Stick-release 応答の 3 種類の特徴的な応答が観測された。また、SPD が  $200\text{mM}$  以上では再び凝縮が解け、WLC 特性が復活する Reentrant 転移が起こることを 1 分子で初めて観測した。さらにこの状態で蛍光観察を行い、ランダムコイル状態と凝縮状態では、伸張、収縮時の DNA のゆらぎが大きく異なることを確認した。この結果は、*Progr. Ther. Phys. Suppl.* 165 (2006) に発表した。

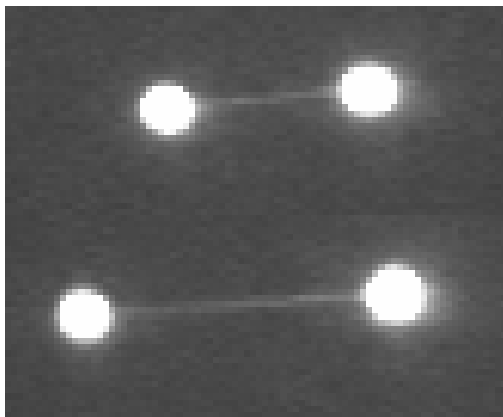


図2 1 分子 DNA の伸張と可視化

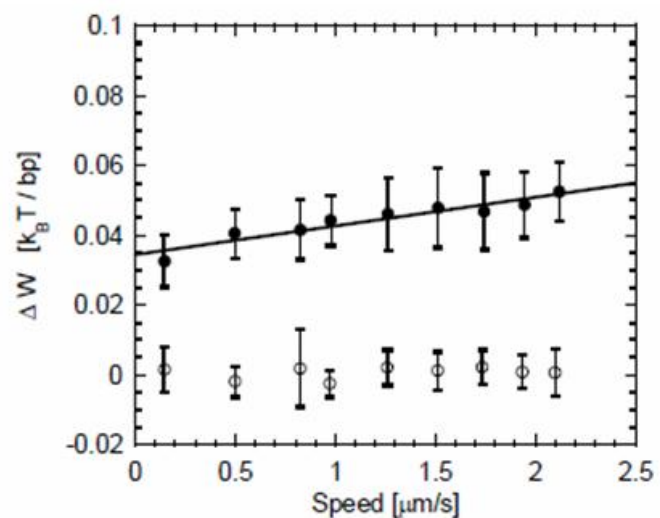


図3 伸張速度と非可逆仕事

### 3. 加振された粘塑性物質における対流現象の発見

我々は、特異なレオロジー特性を示す物質が非平衡条件下におかれた時に示す様々の不安定性にも着目している。ニュートン流体に関しては、Benard 対流や Faraday Wave など非平衡条件下で起こる不安定性とカオスや乱流への転移現象が研究され、非平衡統計力学のマクロ系への展開を促進し、乱流の起源に関しても新たな知見を提供してきた。一方、非ニュートン流体における非平衡現象の研究はまだ始まったばかりである。我々はジェルやペーストなど、流体であるが降伏応力を持つ粘塑性流体に着目した。これらの物質は、あるぎり応力までは固体的に振る舞い、降伏応力以上のぎり応力が加わると流動化し、多くの場合 Shear Thinning の性質を持っている。これらの物質に鉛直方向の振動を加えると、ある振動加速度までは弾性体として振舞うが、振動加速度が閾値を超えると流動化し、平板の上に自立した 2 本のロールパターンを形成し、内向きに回転を始めるという新しいタイプの不安定性を見出した。この結果は、*Phys. Rev. Lett.* 98 (2007) に発表した。