

# ソフトマターにおける連鎖構造・ネットワーク構造のダイナミクスとレオロジー

山形大学大学院理工学研究科・教授 滝本 淳一

## 要旨

ソフトマター中の連鎖構造とそれが作るネットワーク構造のダイナミクス・レオロジーを、いくつかの対象を取り上げてシミュレーションにより研究している。絡み合い高分子については LAOS(Large Amplitude Oscillatory Shear)のシミュレーションを可能にし、実験と比較的良好な一致を得たが、ここでは省略する。環動ゲルと会合性高分子のレオロジーの研究を開始し、単純なモデルでのシミュレーションを行ったが、実験との一致は完全ではない。平板分子が作る連鎖構造については、流動誘起の構造形成を示した。また連鎖構造とは離れるが、多成分脂質膜における変形と膜内相分離の結合について調べ、実験を再現した。

### 1. 環動ゲルの非線形弾性 (滝本)

環動ゲルは A01 伊藤らにより開発されたゲルで、従来の化学架橋を slip-link で置き換えたことにより、「滑車効果」による特異な物性が見いだされている。A01 浦山らは環動ゲルの不等二軸変形下での非線形弾性を実験的に調べ、化学ゲルに対する最も単純なモデルである neo-Hookean モデルに良く一致することを見いだしている。我々は、環動ゲルの考えられる最も単純なモデルとして、線形バネを slip-link で架橋した力学モデルを用い非線形弾性をシミュレーションした。その結果、このモデルでは neo-Hookean とは一致せず、モデルの拡張が必要であることが示唆された。

### 2. 多数の会合基をもつ会合高分子のレオロジー (印出井)

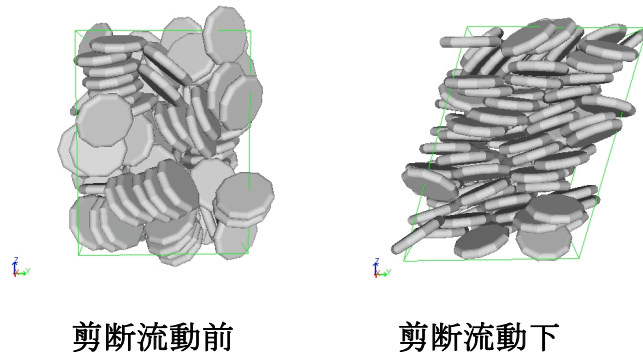
国内外のこれまでの研究により、両末端にのみ会合基を有するテレケリック高分子の理解は進んできた。しかしながら、主鎖に沿って多数の会合基を有する会合高分子のレオロジーの分子論的理解は十分とは言えない。例えば、鎖あたりの会合基数・分子内会合・分子量分布の多分散性がレオロジーに及ぼす影響など、明らかにすべきことは多い。本研究は、ブラウン動力学を用いて一本鎖モデルを扱い、周期的に複数の会合基を持つ線状高分子のレオロジーを理解することを目的とする。会合基数依存性を主に調べた結果、会合基数の増加に伴い弾性率・粘度・緩和時間が増加するが、シアシックニングの相対高や、緩和スペクトル幅の変化は小さいことなどが見いだされた。緩和スペクトルに関しては実験と一致せず、モデルの拡張の必要性を示唆する。

### 3. 剪断流動が平板分子系の構造に与える影響

分子が集合して連鎖構造を形成する系として、剛体平板分子からなる系に着目している。今年度は、この系に流動が与える影響を明らかにすることを主目的とした。剪断流動下のモンテカルロシミュレーションを実現するために、外から系に歪みを与えるための剪断ポテンシャル場を導入し、それから計算されるボルツマン因子と分子間の剛体的斥力に則って、微視状態を生成するプログラムを完成させた。このプログラムは、汎用に書かれており、平板

状分子のシミュレーションだけでなく、棒状分子の系にも応用できる。

右図は、このシミュレーションで得られるスナップショットの例である。剪断流動を加える前は、系全体では配向の秩序を持たない構造をとるが、流動によって、配向の秩序が誘起されるのが確認できた。また、等圧モンテカルロ法と剪断流動変形を併用したところ、剪断流動により、系の体積が膨張することを確認した。



#### 4. 多成分脂質膜の変形ダイナミクス (谷口)

近年、膜の局所組成など、膜面内部の自由度が膜変形に及ぼす影響に興味注がれてきている。A02:今井グループで実験研究が進められており、理論・シミュレーションから今井グループと共同研究を進めている。実験では浸透圧を変化させることでベシクルを様々な形へ変形させ、更に温度を制御することで脂質の相分離を誘起し、ベシクル形状と相分離動力学的結合による多様な膜変形現象に注目している [1]。本研究では、このような膜内の内部自由度と膜のダイナミクスが互いに結合した現象を記述する理論モデルを構築し、数値計算を行うことで実験で観測された膜変形現象の起源の解明に取り組んだ。数値計算の結果、浸透圧差をある臨界値より大きく印加した場合、赤血球に似た形と繭の形に似た形が安定状態として得られた。一相状態で得られた(1)赤血球状と(2)繭形のベシクルを初期状態として、相分離が起こる温度に急冷した後のベシクルの形状と相分離の様子を図に示す。数値計算の結果は実験結果を再現し、このような変形の起源として「脂質自身が有する硬さが膜の形状を介して相分離と結合し、形状に由来する異方的な相分離が引き起こされること」が分かった。

[1] M. Yanagisawa, M. Imai, T. Taniguchi, Rhys. Rev. Lett., **100**, 148102 (2008).

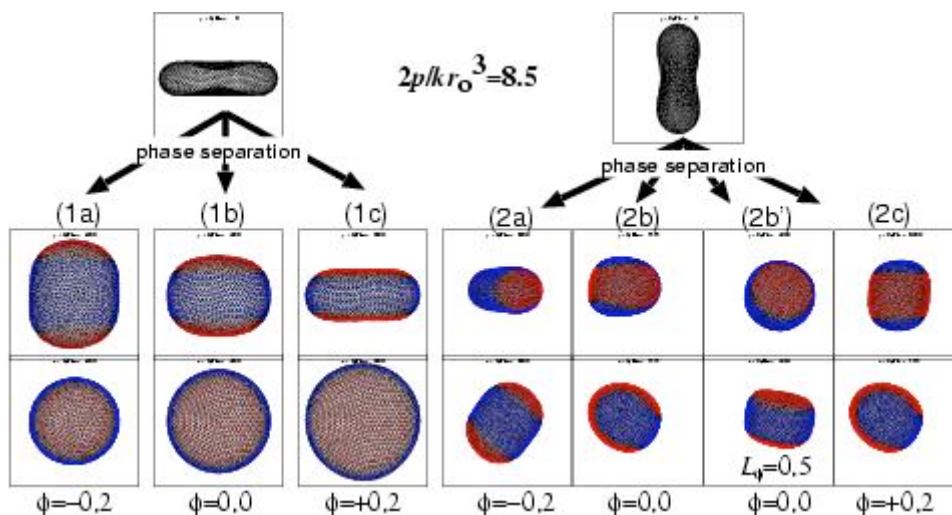


図 変形した2成分ベシクルの膜内相分離。(1)は赤血球状、(2)は繭形に変形した状態から出発。硬い成分の分率は(a)0.4, (b)0.5, (c)0.6。(2b')は輸送係数が他の5倍。