

九州大学大学院理学研究院 坂上貴洋

九州大学大学院理学研究院 中西秀

京都大学福井謙一記念研究センター 齋藤拓也

構成要素が鎖状に連なった高分子鎖は、負の相関効果による異常動力学現象の宝庫である。今年度は、主に外力により駆動される非平衡ダイナミクスを研究した。まず、最も基本的と考えられる伸長過程について基礎的事項を定式化し、トルクによる回転ダイナミクス、ナノチャンネル中での圧縮過程のダイナミクスへと研究を展開した。

(1) 高分子鎖の伸張ダイナミクス[1]

高分子系に見られる多くの異常動力学において本質的に重要となる鎖に沿っての張力伝播様式について、理論的な研究を行った。平衡状態下と、外力誘起の非平衡状態の両方に於いて、ミクロな高分子模型（ラウス模型）から出発し、標識モノマーの異常拡散挙動を記述する一般化ランジュバン方程式の導出を系統的に議論した。特に、鎖の一端を強い張力で引っ張る場合に見られる伸長過程を支配する記憶効果についての解析を行い、そこで見られる揺らぎの特性を、理論と分子シミュレーションの両面から明らかにした。

(2) 棒の周りを回転する高分子鎖の定常ダイナミクス[2]

長くて柔らかい高分子鎖の一端を棒状の障害物に固定し、棒を回転させると高分子は棒の周りに巻きついていく（図1）。この状況は、ポリメラーゼによるDNA、RNA合成過程と関連し、また、高分子動力学の基礎的問題としても興味深い。

比較対象として張力 f で伸張下にある高分子鎖

に目を向けると、その理解において、 $\xi_f \approx k_B T / f$ に

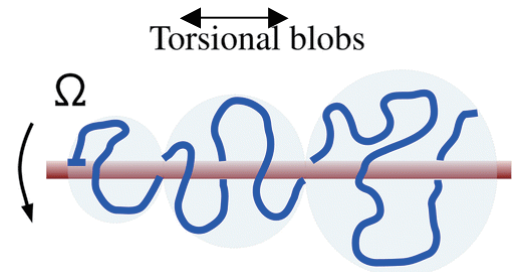


図1. 棒の周りに巻きつく高分子鎖の模式図

より定義される伸張ブロブ (tensile blob) の概念が本質的であった。本研究では、回転版での類似概念「ねじれブロブ」 (torsional blob) を導入し、その大きさ ξ_M がトルク M と関係式 $M \approx k_B T / [\ln(\xi_M / a)]^{\kappa}$ による結びつくことを示した (a : モノマーのサイズ、 κ : 空間次元や排除体積の有無に依存する定数)。ここでの対数依存性はトポロジカルな拘束条件、すなわち「棒状の障害物をすり抜けられない」という障害物中でのランダムウォークの問題と関連している。このねじれブロブの概念を用いて、一定のトルクにより駆動されている高分子鎖の形状と、その時の構成関係式 (トルク vs. 角速度) を導いた。トルク印加後の過渡的過程に見られるであろう異常動力学の解明は、今後の課題である。

(3) ナノチャンネル中に拘束された DNA の圧縮ダイナミクス[3]

平衡状態にある高分子鎖の一端をつまみ急に引っ張り出すと、張力の伝播と形状の大変形を伴う特徴的な非平衡ダイナミクスが誘起される（上記（1）参照）。同様のことは、ナノチャンネル中に拘束した高分子を方端から圧縮する際にも、圧縮応力の伝播という形で見られる。この応力伝播は、圧縮を行うビーズの運動に対して時間と共に増加する摩擦力という形で現れ、その意味で、負の相関による異常動力学の典型例と言える。

昨年度は、応力が圧縮側とは反対の自由端まで到達した後の定常状態の解析を行い、並進運動による粘性応力と浸透圧勾配とのバランスから、定常状態で実現する空間的に非一様な構造特性を明らかにした。今年度は、過渡的な応力伝播過程の理解を目指し、次の形の非線形移流拡散方程式

$$\frac{\partial c}{\partial t} = \frac{\partial}{\partial x} \left(c^\alpha \frac{\partial}{\partial x} c - cV \right) \quad (1)$$

の導出とその解析を行った。ここで、 c 、 V はそれぞれ無次元化した高分子のセグメント濃度、圧縮速度である。非線形項に現れる指数 α は、協同拡散係数の濃度依存性を反映するもので、その具体的値は定常状態の構造特性に関与する。本解析では、実験で見られる定常状態構造を再現する $\alpha=1$ を採用し、（1）式の数値解が長鎖 DNA の動的圧縮過程を半定量的に記述することを確認した。また、圧縮波の伝播を記述するスケーリング則から負の相関効果を記述する記憶項についての議論を行った。

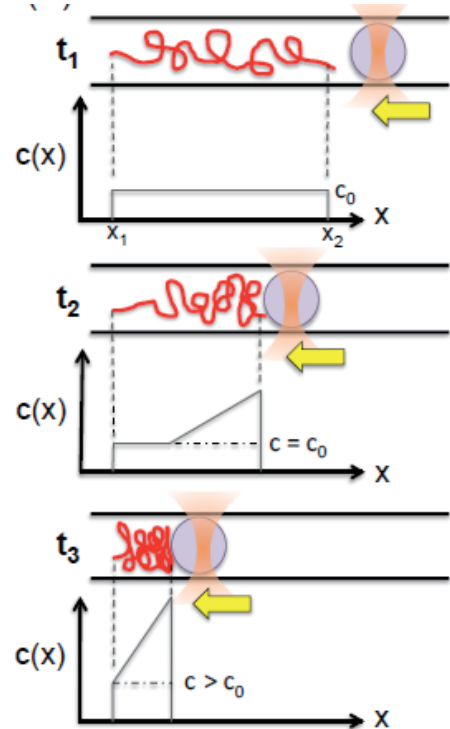


図 2. ナノチャンネル中に拘束された高分子鎖がビーズにより圧縮される過程の模式図

参考文献:

- (1) T. Saito and T. Sakaue, *Phys. Rev. E* **92**, 012601 (2015).
- (2) M. Laleman, M. Baiesi, B.P. Belotserkovskii, T. Sakaue, J.-C. Walter and E. Carlon, *Macromolecules*, **49**, 405 (2016).
- (3) A. Khorshid, S. Amin, Z. Ahang, T. Sakaue and W. Reisner, *Macromolecules*, in press.