時定数制御による多谷構造の探索

西浦　廉政 [1]

[1] 北海道大学 電子科学研究所
〒 060–0812 札幌市北区北 12 条西 7 丁目中央キャンパス総合研究棟 2 号館

あらまし　非常に多くの local minimizer と saddle が共存する多谷構造において，ある特定の解（それは一般には global minimizer ではない）に軌道を制御することは至難の技である．タンパク質が所望の折りたたみ構造にすばやく収束できるのは，ポテンシャルが大域的なファネル構造を有するからであり，それにより途中の local minimizer にトラップされる確率は大幅に軽減される．それではそのような大域的構造を有しない，あるいは全体像が未解明の場合，どのような制御法がありうるだろうか？空間的に局在するポリマー粒子系を題材にこの問題を考えたい．時間微分の前の時定数パラメータが一つの鍵となる．

キーワード 連立 Cahn-Hilliard 方程式, 多谷構造, ミクロ相分離, 構造保存型解法

1.　研究背景と問題

２つのホモポリマーが化学結合したブロックコポリマー系はラメラ，ヘキサゴン，ジャイロイドなど多彩なミクロ相分離を示すことはよく知られている．近年はそれらを数百ナノメートルの微粒子にしたものが応用上重要となり，その形状制御が問題となる．このとき微粒子は溶媒（水）中で作られるために，2 種のホモポリマー A, B と水との関係も重要となる．よって問題は A, B ポリマー間及び水を含めた３者関係となる．決めねばならないのは，微粒子の形状 u と微粒子内部のミクロ相分離 v の２つである．少数の原子・分子系においても適当なポテンシャルの下で，何千という local minimum とそれ以上の saddle が出現し，それらは複雑な多谷構造をなすことは知られている [1]. ここで扱う連立 Cahn–Hilliard 方程式系においても，非常に多数の形態を伴う多谷構造を示すことは数値的に検証されている [3–7]. さらに驚くべきことに，極めて小さいサイズにも関わらず,「角」をもつ多面体形状となる微粒子が実験とシミュレーションで確認された [2]. 我々のゴールは次である．

- 多谷構造の大域的風景を明らかにする．
- 多面体解など特定の形状を有する微粒子を得るための制御法.

大域的な風景探索は３次元では計算量の問題があるので，まずは空間１次元かつ化学結合がない simplified model に対して上の問題を考える．そこで得られるいくつかの示唆は高次元問題へのよき milestone となることがわかる．本講演では次の２つに焦点を当てる．

1. すべての minimizer と saddle を見つけ，その大域的風景を明らかにする
2. 変数 u と v の時定数比を変えることにより，軌道束のダイナミクスを制御する．

問題１は，大域分岐解析の手法により分岐も含め，関連するすべての解を網羅することができる．同時に saddle の不安定次元も計算し，その不安定方向への軌道の行き先を調べることにより，安定．不安定多様体のつながりを調べることが可能となる．これにより階層的なサドルネットワーク構造が明らかとなり，軌道の全般的な振る舞いを予測することが可

能となる．well-mixed な初期値から出発する軌道は，一般に微小なランダム摂動に敏感であり，それらの軌道束は一般に拡大し制御は簡単ではない．しかし問題２で述べた時定数比をうまくとることにより，それらの軌道束を収束させることは可能であり，それにより所望の微粒子形態へロバストに収束させることができる．時定数比は実験における微粒子作成のプロセスとも整合的であり，さらにそれを時間依存する変数として動かすと，対応する軌道は多谷構造の中をスイープする形で風景を詳しく探索することができる．

2. 今後の課題

1. 非局所項（化学結合）を入れた系の問題
2. 時定数比を時間の関数としたときの Tipping 現象と階層的サドルネットワーク構造の関係
3. 高次元での大域的風景を明らかにする．
4. 構造保存型数値解法の開発
5. 遷移ダイナミクスの詳細を知る

課題１と２については，現在進行中である．一方課題３は計算量の問題があり時間が相当かかると思われる．しかし道筋は立っているので，数年後にはその一部は明らかになると期待される．我々のモデル系は質量保存する系であり，課題４の質量保存を保証する数値計算法は Cahn-Hilliard 型方程式では基本的問題であり，その理論的枠組みについては知られている．しかし高次元では計算量の問題があり，今後の課題として残っている．最後の課題５はパターンが生成されるまでの経緯を明らかにするもので，階層的なサドルネットワーク構造の解明がその基盤となる．本講演では１次元の場合について紹介するが，高次元の場合は今後の課題である．時定数比を変えるというアイデアは実験において多面体解を発見する際の手順からヒントを得たものである．例えば圧力を通常より下げることにより，微粒子生成を加速することにより高い頻度で多面体解を得る，というような知見が背景にある．その意味で単なる理論的思いつきではなく，実験家との議論がその基礎にある．

謝辞　本研究は Edgar Avalos, 渡辺毅（長野大）, 香川渓一郎（城西大）および藪浩（東北大）との共同研究に基づく．また本研究の一部は，科研費 23K17653, JP23K19003 を受けて行われました．

参考文献

[1] David J. Wales, *Energy Landscapes:with Applications to Clusters, Biomolecules and Glasses*, Cambridge University Press, 2003.

[2] Keiichiro Kagawa, Takeshi Watanabe, Yasumasa Nishiura, Exploring global landscape of free energy for the coupled Cahn-Hilliard equations,s arXiv:2507.08819 (2025)

[3] Edgar Avalos, Takashi Teramoto, Yutaro Hirai, Hiroshi Yabu, and Yasumasa Nishiura, Controlling the formation of polyhedral block copolymer nanoparticles: Insights from process variables and dynamic modeling, ACS Omega 9,17276-17288 (2024).

[4] Edgar Avalos, Takashi Teramoto, Hideaki Komiyama, Hiroshi Yabu, and Yasumasa Nishiura, Transformation of block copolymer nanoparticles from ellipsoids with striped lamellae into onionlike spheres and dynamical control via coupled cahn-hilliard equations. ACS Omega, 3(1):1304-1314 (2018).

[5] Yutaro Hirai, Edgar Avalos, Takashi Teramoto, Yasumasa Nishiura, and Hiroshi Yabu, Ashura particles: Experimental and theoretical approaches for creating phase-separated structures of ternary blended polymers in three-dimensionally confined spaces, ACS Omega, 4(8):13106-13113 2019).

[6] Zhen Xu, Yucen Han, Jianyuan Yin, Bing Yu, Yasumasa Nishiura, and Lei Zhang, Solution landscapes of the diblock copolymer-homopolymer model under two-dimensional confinement, Physical Review E 104(1) (2021)

[7] Edgar Avalos, Takeshi Higuchi, Takashi Teramoto, Hiroshi Yabu, and Yasumasa Nishiura, Frustrated phases under three-dimensional confinement simulated by a set of coupled Cahn-Hilliard equations, Soft Matter 12(27) 5905-5914 (2016)