

液晶乱流の不可逆相転移を用いたエントロピー生成の特異性検証

Detection of anomaly in entropy production using irreversible transition in liquid-crystal turbulence

(日本物理学会推薦)

代表研究者 東京大学 竹内 一将 The University of Tokyo Kazumasa A. TAKEUCHI
協同研究者 東北大学 中山 洋平 Tohoku University Yohei NAKAYAMA

We study heat and entropy productions in the electroconvection of nematic liquid crystal, focusing on its turbulent states, the dynamic scattering modes 1 and 2 (DSM1 and DSM2), known to show an irreversible phase transition governed by the directed percolation universality class. We characterize fluctuation properties of the Joule heat in DSM1 and DSM2, leading to evaluation of an effective temperature for the fully DSM1 or fully DSM2 cases. We also measure the Joule heat while DSM1 and DSM2 coexist, and find simple relationship to the DSM2 area fraction in its mean value. Based on those observations, we describe how fluctuations may be analyzed in the case of spatiotemporal intermittency of DSM1 and DSM2 near the critical point. We also estimate the local transition rates of DSM1 and DSM2 from image analysis, and compare the results with the definition of the contact process, a prototypical model showing a transition in the directed percolation class. We then evaluate the entropy production defined from the ratio of forward and backward transition rates, which would diverge in systems with strictly irreversible transitions. We discuss the degree of anomaly in this quantity, and also compare with the Joule heat measured simultaneously. This report is concluded with some prospective views.

研究目的

近年の非平衡物理学の進展として、熱平衡から遠く離れた非平衡状態を記述できる「ゆらぎの定理」の発見と深化、および大規模非平衡系の相転移等で出現する普遍法則の実験的検証等が挙げられる。

ゆらぎの定理には様々な種類があるが、エントロピー生成に関する「定常状態ゆらぎの定理」が代表的である。それによると全系のエントロピー生成 ΔS の分布 $P(\Delta S)$ は次の関係式を満たす[1]。

$$\frac{P(-\Delta S)}{P(\Delta S)} = \exp(-\Delta S) \quad (1)$$

ここで、 $\Delta S = \Delta S_s + \Delta S_m$ は、注目している系におけるエントロピー変化量 ΔS_s と環境に受け渡されたエントロピー量 ΔS_m に分けられ、長時間計測の場合は ΔS_m が支配的となる。さらに、熱的な系の場合、 ΔS_m は、確率過程の状態遷移率 $w_{m \rightarrow n}(t)$ を使って、次式のように表せる[1]。

$$\Delta S_m = \sum_j \log \frac{w_{n_{j-1} \rightarrow n_j}(t_j)}{w_{n_j \rightarrow n_{j-1}}(t_j)} \quad (2)$$

これはすなわち、順方向と逆方向の状態遷移率の比が、エントロピー生成の主たる成分になる、ということである。非熱的な系であっても、式(2)で定義する ΔS_m を使って、式(1)の定常状態ゆらぎの定義が成り立つことが知られている。

一方、大規模非平衡実験で検証された普遍法則の例としては、不可逆的な相転移を支配する directed percolation (DP) 普遍クラスの臨界現象が知られている[2]。しかし、このような不可逆相転移は、逆方向の遷移が起こらない状況、すなわち $w_{m \rightarrow n}(t) > 0$ だが $w_{n \rightarrow m}(t) = 0$ であるような状況で現れる。このとき式(2)は発散してしまうため、ゆらぎの定理(1)の理論体系との整合性は明らかでなく、一定の解釈を与えた理論研究は存在する[3]が解決していない。

そこで本研究では、DP 転移が観測された液晶乱流

実験系[4]を用い、新たに Joule 発熱を計測することで環境に受け渡された熱量 Q_m を推定し、本問題に貢献することを目指す。本実験系では、転移電圧 V_c より低い印可電圧 $V < V_c$ では動的散乱モード 1 (DSM1) という乱流状態、 $V \gg V_c$ では動的散乱モード 2 (DSM2) という乱流状態が出現し、 $V > V_c$ かつ V_c 近傍では、DSM1 と DSM2 の共存状態が観察される。そこで、Joule 発熱 Q_m のゆらぎの性質を、DSM1 乱流、DSM2 乱流、DSM1-DSM2 共存状態のそれぞれで計測し、特異性の有無や、ゆらぎの定理との関係を考察する。また、乱流の様相を顕微鏡観察で記録し、画像解析することで、乱流の状態遷移率 $w_{m \rightarrow n}(t)$ を推定し、式(2)の特異性の程度を調査する。これは、マクロスケールで定義されたエントロピー生成に相当するため、Joule 発熱との測定結果の比較を通して、エントロピー生成における粗視化の効果を考察する。

研究経過

液晶電気対流における Joule 発熱の計測のため、電圧と電流を同時計測できる実験系を新たに製作した。本実験には nA 程度の高い精度の電流計測が必要なため、精密抵抗と低入力バイアス電流オペアンプを組み合わせて電流電圧変換器を自作し、必要な精度を有する測定系を構成した。また、本研究では、電流計測と同時に対流セル全体の様子を顕微鏡でモニターし、乱流の占有面積と Joule 発熱の関係を併せて解析する必要がある。そのため、乱流の画像識別が可能で、カメラの視野に対流領域全体が収まるよう、電極をエッチングした専用の対流セルを製作した。

以上の実験系において、必要な温度制御をしたうえで対流セルに電圧 V を印加し、電流 $I(t)$ を計測して、 $Q_m(t) = \int_t^{t+\Delta t} VI(t')dt'$ によって Joule 発熱 $Q_m(t)$ の時系列を取得した。その際、液晶乱流の顕微鏡画像も同時に記録した。以下、本研究で得られた結果の概略を述べる。

(1) DSM1 → DSM2 成長過程における Joule 発熱

はじめに、 $V \gg V_c$ で DSM2 が核生成により発生し、領域成長していく過程に注目し、計測を行った。DSM2 発生前は DSM1 が全面積を占めており、DSM2 発生後、十分時間が経過すると、DSM2 が全面積を占める。本過程において、Joule 発熱 $Q_m(t)$ と DSM2 占有面積の割合 $\rho(t)$ の時系列を同時計測したところ、

全面 DSM1 状態 ($\rho = 0$) と全面 DSM2 状態 ($\rho = 1$) では計測される Q_m の値が有意に異なること、DSM2 の領域成長に伴い $Q_m(t)$ の値が増大することが観察され、本研究の測定系が必要な精度を達成していることが確認できた。また、 $Q_m(t)$ と $\rho(t)$ の散布図から、両者が近似的に線形関係で結ばれることが判明した。すなわち

$$Q_m(t) \approx \rho(t)Q_{\text{DSM2}} + [1 - \rho(t)]Q_{\text{DSM1}} \quad (3)$$

という関係が成り立ち、DSM1 乱流、DSM2 乱流のそれぞれにおいて、発熱量が占有面積に比例する示量性をもつことが裏付けられた。ただし、式(3)が平均値だけでなく、ゆらぎのレベルでどの程度の精度で成立するかは、後述するように現段階では明らかでなく、より慎重な統計解析を必要とする。

(2) 定常状態における Joule 発熱

次に、定常状態において Joule 発熱の時系列を取得し、そのゆらぎの性質を調査した。以下、全面的に DSM1 乱流のとき、全面的に DSM2 乱流のとき、DSM1-DSM2 共存状態のときの 3 つにわけて報告する。なお、DSM1 乱流は $V < V_c$ では真の定常状態として出現するが、本解析では印可電圧による差を軽減するため、 $V > V_c$ で DSM2 が出現する前の、準定常的な状態を用いて DSM1 の解析を行っている。

2-1) 全面的に DSM1 乱流のとき

ヒストグラムの解析により、このときの Joule 発熱 Q_m のゆらぎは、統計精度の範囲内で Gauss 分布に従うことが判明した。

なお、理論的には、ゆらぎの定理(1)を満たすエントロピー生成 ΔS が Gauss 分布に従う場合、平均値 $\langle \Delta S \rangle$ と分散 $\langle \Delta S^2 \rangle_c = \langle \Delta S^2 \rangle - \langle \Delta S \rangle^2$ の間には

$$\langle \Delta S^2 \rangle_c = 2\langle \Delta S \rangle \quad (4)$$

という関係が成り立つことが(直ちに)わかる。ここで、熱的な系の場合は $\Delta S_m = Q_m/k_B T$ (T は温度、 k_B は Boltzmann 定数)であることを踏まえると、式(4)と併せて

$$T_{\text{eff}} \equiv \frac{\langle Q_m^2 \rangle_c}{2k_B \langle Q_m \rangle} \quad (5)$$

によって非平衡有効温度 T_{eff} が定義できる。この方法によって、DSM1 乱流の定常状態における有効温度を評価したところ、測定の時間刻み $\Delta t \approx 0.13$ s に対しては $T_{\text{eff}} \approx 1 \times 10^9$ K、 $\Delta t \approx 1.3$ s に対しては $T_{\text{eff}} \approx 5 \times 10^8$ K という結果を得た。本実験が室温近傍で行われていることを考慮すると、この結果は、

極めて高い温度の熱源と同程度の発熱ゆらぎ強度が乱流によって作られていることを形式上意味する。ただし、結果が Δt に依存してしまうことからわかるとおり、 T_{eff} は相関時間をはじめとする非平衡ゆらぎの様々な特徴を1つの値に押し込んだものと考えべきであり、この値が意味するところを考察するのは今後の課題である。

2-2) 全面的に DSM2 乱流のとき

2-1)と同様の解析により、このときの Joule 発熱 Q_m のゆらぎも、統計精度の範囲内で Gauss 分布に従うことが判明した。そこで、やはり 2-1)と同様に式(5)で有効温度 T_{eff} を推定したところ、 $\Delta t \approx 0.13$ s に対しては $T_{\text{eff}} \approx 7 \times 10^9$ K、 $\Delta t \approx 1.3$ s に対しては $T_{\text{eff}} \approx 5 \times 10^9$ K という結果を得た。有効温度の解釈については 2-1)で述べたのと同様の注意を要するが、印可電圧は 2-1)では $V = 29.93$ V、2-2)では $V = 30.13$ Vと、1%弱しか変わっていないにも拘らず、有効温度が1桁増しているのは注目に値する。

2-3) DSM1-DSM2 共存状態のとき

このとき、Joule 発熱 Q_m のゆらぎは、非 Gauss 性が顕著に見られることが判明した。我々は、DSM2 占有面積の割合 $\rho(t)$ についても解析し、統計精度の範囲内で Gauss 分布と矛盾しないことが確認できた。もっとも単純なシナリオは、式(3)の右辺に現れる ρ , Q_{DSM1} , Q_{DSM2} がすべて異なる Gauss 乱数のため、その結果現れる Q_m (左辺)は非 Gauss 乱数になる、という可能性である。しかし、共存状態が現れる印可電圧では Q_{DSM2} の統計的性質 (Gauss 分布として、平均値と分散)を推定することが困難なため、本仮説を検証する方法を現在考察中である。

(3) DSM2 \rightarrow DSM1 不可逆相転移における Joule 発熱

本実験系において、 $V > V_c$ で見られる DSM1-DSM2 共存状態を初期状態とし、 V を下げて $V < V_c$ とすると、やがて DSM2 は消滅する。ひとたび DSM2 が消滅すると、転移点近傍では DSM2 の自発的生成は原則起こらない。これが、DSM1-DSM2 転移を不可逆的相転移と呼ぶ所以であり、その臨界現象が DP 普遍クラスに従う根拠となっている。このとき、遷移確率の可逆性から定義されるエントロピー生成(2)が発散してしまうことが、本研究課題で理解を目指す問題であった。

現時点での我々の計測で、DSM2 消滅時に Joule 発熱に異常性は検出されていない。例えば、発熱 Q_m の

平均値と同じオーダーの発熱変化は見られない。ただし、詳細な検討は、DSM2 占有面積 $\rho(t)$ の変化を考慮し、適切に規格化した発熱量の統計的性質の調査に基づく必要があるだろうと考えている。従って、2-3)で述べた、DSM1-DSM2 共存状態における Joule 発熱の統計的性質の解析手法をまず開発すべきであり、それに基づいて転移点近傍の臨界挙動を調査することで、本実験系における不可逆相転移と Joule 発熱の関係について確かな理解が得られるであろう。これは今後の重要な課題である。

(4) 粗視化した状態遷移率の推定

DSM1-DSM2 共存状態の定常状態において、顕微鏡画像の画像解析で各地点が DSM1 か DSM2 かを判定し、その状態が遷移する事象数を計測することで、状態遷移率を推定した。事象数の集計は隣接地点の状態ごとに行い、条件付き確率の形で状態遷移率を求めている。結果、DSM1 \rightarrow DSM2 の局所的な状態遷移率は、DSM2 状態にある隣接地点の数に比例することがわかった。これは、DP 転移を示す代表的モデルである contact process [2] と同様の結果であり、本実験系が DP 転移を示すことと整合的である。

本解析で推定した状態遷移率のうち、特に重要な意味をもつのは、隣接地点はすべて DSM1 であるにも拘らず DSM1 \rightarrow DSM2 の局所状態遷移が起こる確率 $w_{1\rightarrow 2}\Delta t$ と、その逆過程の確率 $w_{2\rightarrow 1}\Delta t$ である。我々の推定結果は、 $w_{2\rightarrow 1}/w_{1\rightarrow 2} \approx 10^3$ 程度であり、1 程度の値をとる他の状態遷移率と比べると特異性は大きい。ただし、エントロピー生成 ΔS_m にはその対数が寄与するため、局所的な遷移率の比だけでなく、系全体としてどの程度局所的な DSM2 の消滅イベントが発生するかも ΔS_m の値に重要な影響を及ぼすことに注意が必要である。

以上の、粗視化された状態遷移率を用い、式(2)によって定義されるエントロピー生成の時系列 $\Delta S_m(t)$ を取得した。これと Joule 発熱の時系列 $Q_m(t)$ との比較は、本研究課題の関心の1つである。一対一対応のような極端な対応関係がないことは当初より期待でき、データからも明らかである。一方、 $\Delta S_m(t)$ は状態遷移から評価している以上必然的に、DSM2 状態の実現確率である $\rho(t)$ に依存する。 $\Delta S_m(t)$ も $Q_m(t)$ も $\rho(t)$ に依存するため、 $\rho(t)$ を介した相関は期待される。従って、 $\Delta S_m(t)$ と $Q_m(t)$ の間の相関が、 $\rho(t)$ 依存性で尽きているのか、それ以上の非自明な相関が

あるのかを明らかにする必要がある、現段階では明らかではない。また、成果(2)で求めた有効温度を用いて、粗視化したエントロピー生成 $\Delta S_m(t)$ を熱量に換算したところ、Joule 発熱 $Q_m(t)$ の値からは数桁小さいという結果が得られた。従って、粗視化したエントロピー生成の寄与は Joule 発熱全体からすると僅かであり、前者に特異性があっても、後者に埋もれてしまい検出できていない可能性も考えられる。

考察

本研究では、不可逆的な非平衡相転移におけるエントロピー生成の統計的性質の理解を目指し、液晶電気対流の乱流状態において、エントロピー生成と関わる二つの物理量を計測した。1つは Joule 発熱であり、本実験系の不可逆相転移に関わる二つの乱流状態である DSM1 と DSM2、およびその共存状態や成長・消滅過程において計測を行った。結果、DSM1 または DSM2 の一方だけが存在する定常状態では Joule 発熱のゆらぎが Gauss 分布に従うこと、そこから算出した非平衡有効温度は室温より極めて高い値を示すことがわかった。先に述べたとおり、本実験系のような非熱的な系では有効温度の物理的意味や役割は自明ではないが、同様の手法で非平衡度を評価する試みはほかの実験系でもなされており[5]、それらとの比較という観点からは、有効温度は便利な指標であろう。一方で、平衡熱統計力学における真の温度には、状態変数としての役割や、熱力学的な不可逆性との密接な関わりなど、様々な側面がある。非平衡系の理解や記述などの観点から、有効温度がどれほど有効な概念かは今後の研究を俟たねばならない。

不可逆的相転移とエントロピー生成の関わりについては、既に述べたように、確かな結論を引き出すには更なる解析が必要であるが、取得した時系列から直ちにわかるような特異性は Joule 熱には認められていない。非熱的な非平衡系において、式(2)で定義される(確率論的な)エントロピー生成と、熱量計等で計測可能な発熱との関係は明らかでなく、前者に明らかな異常性が期待される本実験系で両方の物理量を計測した意義は大きいだろう。本報告書で記載したとおり、本研究の目的達成には追加実験と詳細な統計解析の継続が必要であるが、本研究課題の実施でその道筋をつけることができた。

本研究に携われた共同研究者である Somayeh

Zeraati 氏、犬塚悠剛氏、深井洋祐氏、それに本研究課題をご支援下さった山田科学振興財団にお礼を申し上げ、本報告書の結びとしたい。

参考文献

- [1] ゆらぎの定理に関するレビューの例 : U. Seifert, Rep. Prog. Phys. **75**, 126001 (2012).
- [2] DP クラスに関するレビューの例 : H. Hinrichsen, Adv. Phys. **49**, 815 (2000); 竹内一将, 日本物理学会誌 **70**, 599 (2015).
- [3] S. Zeraati *et al.*, J. Stat. Mech. (**2012**), L12001; Y. Murashita *et al.*, Phys. Rev. E **90**, 042110 (2014) など.
- [4] K. A. Takeuchi *et al.*, Phys. Rev. Lett. **99**, 234503 (2007); Phys. Rev. E **80**, 051116 (2009).
- [5] K. Hayashi *et al.*, Mol. Biol. Cell **29**, 3017 (2018) など.

研究の発表

口頭発表

1. 竹内一将, “液晶のトポロジカル欠陥乱流 : 非平衡統計力学として、材料科学として”, 日本物理学会 2019 年次大会, 九州大学, 2019 年 3 月 14 日.
2. K. A. Takeuchi, “Revisiting circular vs flat interfaces and application of variational principle”, MECO44: 44th Conference of the Middle European Cooperation, Key Challenges in Statistical Physics, Secon (Gernamy), May 3, 2019.
3. 竹内一将, “KPZ 普遍クラス - 厳密解と実験が奏でる非平衡のスケーリング則 -”, 第 64 回 物性若手夏の学校, 岐阜, 2019 年 8 月 6-8 日.
4. 竹内一将, “乱流転移に現れる臨界現象、普遍性”, 流体若手夏の学校 2019, 京都, 2019 年 8 月 20-21 日.
5. K. A. Takeuchi, “Disclination turbulence - from defect dynamics to macroscopic scaling laws -”, 2019 Gordon Conference on Liquid Crystals, Soft Order and Topology Motives in Biomedicine, Nanoscience, Cosmology, Living Matter and Emergent Industries, New London (USA), July 10, 2019.
6. 竹内一将, “液晶乱流で調べる、非平衡の不可逆的相転移とエントロピー生成”, 山田科学振興財団 2020 年度研究交歓会(新型コロナウイルス感染拡大のため中止)

誌上発表

arXiv:2004.11652 (2020).

1. Y. T. Fukai and K. A. Takeuchi, Phys. Rev. Lett. 124, 060601 (2020).
2. T. Iwatsuka, Y. T. Fukai, and K. A. Takeuchi,
3. 竹内一将, 物性研究・電子版 **8**, 081205 (2020).