

時間非整数階微分に基づいた異常拡散のモデリング

東京大学・大学院工学系研究科 島本憲夫

Norio SHIMAMOTO

Graduate School of Engineering,

The University of Tokyo

1. はじめに

不均質で複雑な構造を持った多孔質媒体の中を粒子が拡散する場合には、拡散する粒子が媒体の表面に吸着や離脱をしたり、媒体が持つ空間的な構造によって粒子の運動が制限を受けるなど、通常の拡散とは異なる拡散特性を示すことが予想される。その一例として、生体における細胞近傍での物質の拡散においては、Brown 運動に基づいた通常の拡散とは異なる、異常拡散 (Anomalous diffusion) と呼ばれる現象が観測されている[1,2]。異常拡散では、ある観測時間の領域で拡散係数が時間変化に対してべき乗的に減少する拡散特性を示す。これは細胞近傍での物質拡散の場合に限ったものではなく、高分子溶液のような不均質な媒体中での拡散、土壌中での汚染物質の拡散においてなど、様々な物理現象の中で観測されている。

このような異常拡散の振る舞いは、媒体が持つ複雑な構造が拡散する粒子の運動を阻害することによりもたらされる効果だと考えられるが、本稿ではこれを、時間フラクタル性を伴った時間発展による現象として捉え、拡散現象を記述する従来の微分方程式において、時間微分を非整数階微分を導入した微分方程式により記述する方法について考えていく。拡散現象を記述する方法としては、拡散方程式による方法と Langevin 方程式による方法があるが、本稿ではこの2つの側面から見た異常拡散のモデリングについて紹介する。

2. 異常拡散と時間フラクタル性

拡散の特性を示す物理量の一つに拡散係数がある。Brown 運動に基づいた通常の拡散では、粒子が移動していく軌跡の平均二乗変位 $\langle x^2 \rangle$ は時間 t に対して線形に比例した $\langle x^2 \rangle = 2Dt$ の関係にある。このときの傾き D が拡散係数であり Brown 運動では一定値である。これに対して、平均二乗変位や拡散係数が観測時間に関してべき乗に変化する $\langle x^2 \rangle \propto t^\alpha$, $D \propto t^{\alpha-1}$, ($0 < \alpha < 1$) のような拡散特性を異常拡散と呼んでいる。

異常拡散の例として、ここでは生体の細胞近傍での例について紹介する。生体の細胞外マトリックスを構成する物質の代表的なものの一つにヒアルロン酸があり、これは非常に長い高分子鎖により網目構造を作ることが知られている。細胞外マトリックスを模擬する形でヒアルロン酸水溶液中に蛍光分子を入れて、蛍光分子の拡散係数を測定した実験報告があり[1]、ある拡散距離や時間領域で拡散係数が減少していく現象が観測されている。この実験報告では、ヒアルロン酸水溶液の重量濃度 WT% との関係について観測されており、重量濃度が大きくなると、全体として拡散係数が小さくなる傾向が示されている。これは水溶液中におけるヒアルロン酸の重量濃度が大

きくなると、それに伴い高分子鎖が作る網目構造が密となるため、蛍光分子が移動できる領域がより制限を受けることから拡散係数を減少させることとなるものと考えられる。

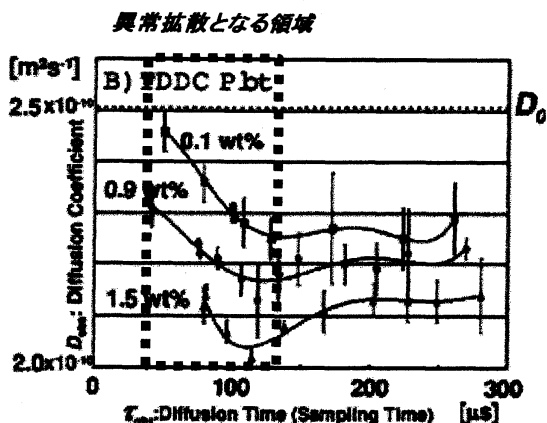


図 2.1. ヒアルロン酸水溶液中の拡散係数の測定例 [文献 1 から引用(一部改変)]

細胞近傍では様々な蛋白物質が混在し、それらが複雑に絡み合った組織の中を物質分子が拡散運動することになる。拡散分子は、複雑な組織構造によって運動が阻害されることにより、Brown 運動とは異なった停留を伴うような軌跡の拡散運動になるものと考えられる。このような、分子の軌跡が間欠的な変位となるような場合に異常拡散の現象が現れるものと考えられるが、本稿では、この過程を時間フラクタル性として捉えることにする。時間フラクタル性を伴った現象について時間発展方程式を記述する場合、時間に関する微分はこれまでの微分演算をそのまま用いることはできない。そのため、本稿では、時間微分に関して非整数階微分を導入して運動を記述することで、異常拡散の特性をモデル化することを考えていく。

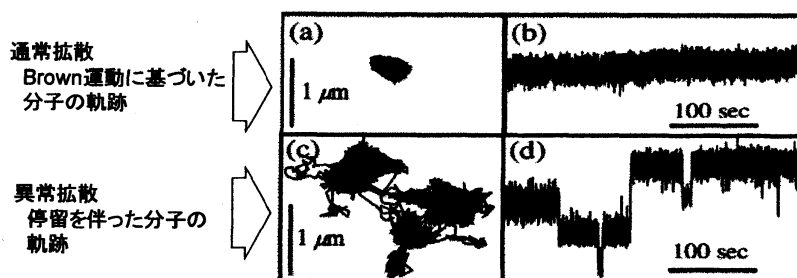


図 2.2. 拡散分子の軌跡の例 [文献 2 から引用(一部改変)]

3. 非整数階微分積分

通常、数学や物理学あるいは工学などの分野で用いられる微分積分は整数の階数で実行される演算であるが、非整数階微分積分は非整数値の階数に拡張したものである[3,4]。非整数階微分積分 (Fractional Calculus, Fractional Integrals/Derivatives) は、過去からの履歴を積算する演算によって導かれるため、記憶性・履歴性のある現象やフラクタル性の特長であるべき乗特性を示す現

象についての物理モデルを記述する場合に有効な手法であると考えられる。粘弾性力学や流体力学での1/2階微分や経済物理学での非整数Brown運動など、多くの分野で応用が試みられている。

非整数階微分は、対象とする問題、理論解析や数値解析などのそれぞれの用途によって定義が使い分けられることがある。ここではその中の代表的な定義である、Riemann-Liouville の定義と Caputo の定義を紹介する。(非整数階微分積分に関する事項については、文献 11 で紹介しているので参照願いたい。)

(1) Riemann-Liouville (R-L)の定義

Riemann-Liouville の定義は、整数階の Cauchy の積分公式を非整数階の積分に拡張したものである。変数 t をもつ関数 $f(t)$ について、 n 階の Cauchy 積分公式は、次のようにあらわされる。

$$I^n f(t) \equiv \int_0^t du_{n-1} \int_0^{u_{n-1}} du_{n-2} \cdots \int_0^{u_1} f(u_0) du_0 = \frac{1}{(n-1)!} \int_0^t (t-u)^{n-1} f(u) du = \frac{1}{\Gamma(n)} \int_0^t (t-u)^{n-1} f(u) du \quad (3.1)$$

ここで、 $\Gamma(\cdot)$ はガンマ関数である。この式において整数値 n を実数値 α に置き換えることで、非整数階の積分を定義する。

$${}_0 I_t^\alpha f(t) \equiv \frac{1}{\Gamma(\alpha)} \int_0^t (t-u)^{\alpha-1} f(u) du, \quad (\alpha \in \mathbb{R}_+) \quad (3.2)$$

非整数階の微分の定義は積分の逆演算として考えることになるが、この式(3.2)の定義で整数階の微分をとった場合には α が負の整数となりガンマ関数が発散してしまうため、整数階の微分との整合性が保てない。そのため Riemann-Liouville 定義の微分では、次のような修正された定義を用いることが一般的である。

$$\begin{aligned} {}_0 D_t^\alpha f(t) &\equiv \frac{d^n}{dt^n} {}_0 D_t^{(\alpha-n)} f(t) = \frac{d^n}{dt^n} {}_0 I_t^{(n-\alpha)} f(t) \\ &\equiv \frac{1}{\Gamma(n-\alpha)} \frac{d^n}{dt^n} \int_0^t (t-u)^{n-\alpha-1} f(u) du, \quad (n-1 \leq \alpha < n, n \in \mathbb{N}_+) \end{aligned} \quad (3.3)$$

(2) Caputo の定義

Caputo 定義は、Riemann-Liouville 定義において微分の順序を入れ替えた形式をとり、次のように定義される。

$${}_0^C D_t^\alpha f(t) \equiv {}_0 D_t^{(\alpha-n)} \frac{d^n}{dt^n} f(t) \equiv \frac{1}{\Gamma(n-\alpha)} \int_0^t (t-u)^{n-\alpha-1} \frac{d^n}{du^n} f(u) du, \quad (n-1 \leq \alpha < n, n \in \mathbb{N}_+) \quad (3.4)$$

この Caputo 定義は、Riemann-Liouville 定義に初期条件を組み込んだ関係となっている。ここでは、 $0 < \alpha < 1 (n=1)$ の場合を示しておく、Caputo 定義と Riemann-Liouville 定義との関係は次のようにあらわされる。

$${}_0^C D_t^\alpha f(t) = {}_0 D_t^\alpha [f(t) - f(0)] \quad (3.5)$$

Caputo 定義は、 $f(0)=0$ の場合には Riemann-Liouville 定義と一致する。

本稿では、解析を行う上で初期条件を導入しやすい Caputo の定義による非整数階微分を用いることにする。非整数階微分の表記方法は、ここで示したような表記を用いられることが多いが、

本稿では、通常微分との理解性の観点から、次のような便宜的な表記を用いることにする。

$${}_0^C D_t^\alpha f(t) \Leftrightarrow \frac{d^\alpha}{(dt)^\alpha} f(t) \quad (3.6)$$

4. 拡散方程式に基づいた異常拡散モデル

拡散方程式をベースとした粒子拡散についてのモデルを考える。ここでは無限長で初期分布は $W(0,x)=\delta(x)$ の場合を考え、拡散モデルが示す分布の基本解と拡散係数について調べていく。(ここで紹介する内容は文献 11 に基づいている。詳細についてはそちらを参照願いたい。)

4. 1 通常微分による拡散方程式 (Brown 運動)

一般に Brown 運動に従う粒子の拡散は、時刻 t 、変位 x での濃度分布を $W_1(t,x)$ としたとき、次のような時間について 1 階、空間について 2 階の拡散方程式としてモデル化される。

$$\frac{\partial}{\partial t} W_1(t,x) = D_1 \frac{\partial^2}{\partial x^2} W_1(t,x) \quad (4.1)$$

ここで、 D_1 は拡散係数であり Brown 運動の場合は一定値である。この拡散方程式について、無限長で初期分布 $W_1(0,x)=\delta(x)$ とした場合の基本解は以下である。

$$W_1(t,x) = \frac{1}{\sqrt{4\pi D_1 t}} \exp\left(-\frac{x^2}{4D_1 t}\right) \quad (4.2)$$

4. 2 時間非整数階微分に基づいた拡散方程式

ここでは、式(4.1)の時間微分について非整数階 α の微分を導入した拡散方程式を考え、この拡散係数が時間のべき乗で変化する異常拡散の特性を示すを見ていく。

(1) 時間非整数階微分の拡散方程式

時間微分に非整数階微分を導入するにあたり、時間フラクタル性によって生じるスケーリングを考えておく。一般にフラクタル性が成り立つ領域では、単位長さ ε を使ってフラクタル次元 α のフラクタル曲線を被覆するとき、差し渡しの長さ x とフラクタル曲線の実質的な長さ x^* との間には、 $x^* = \varepsilon^{1-\alpha} x^\alpha$ の関係が成り立つ。このスケール関係を、非整数の微分階数 α の時間微分の場合にあてはめて考えてみると、べき指数が微分階数 α 、差し渡し長さが dt に相当する。時間に関する単位長さとして、時間フラクタル性が成り立つ (異常拡散が生じている) 観測時間 τ とする。これは Brown 運動が成り立つ限界の観測時間と考えても良い。非整数階の時間微分による実質的な時間の変化量を dt^* とすると、先ほどのスケーリングの関係から $dt^* = \tau^{1-\alpha} (dt)^\alpha$ として評価することになる[5,6,11]。

時間に関する非整数階微分は、フラクタル性によってスケーリングされた時間変化に対する物理量の変化として考えることができる。時刻 t 、変位 x での濃度分布 $W_\alpha(t,x)$ に対して、時間の非整数階微分を、フラクタル性をもった時間変化 dt^* との比 $dW_\alpha(t,x)/dt^*$ として考えると、濃度分布に関する時間の非整数階微分は、次のように考えることができる。

$$\frac{\partial}{\partial t^*} W_\alpha(t, x) = \frac{\partial^\alpha}{\tau^{1-\alpha} (\partial t)^\alpha} W_\alpha(t, x) \quad (4.3)$$

これを用いて整理すると、以下のような時間についての非整数階微分による拡散方程式が得られる。ここでの非整数階微分は Caputo 定義とする。

$$\frac{\partial^\alpha}{(\partial t)^\alpha} W_\alpha(t, x) = D_\alpha \frac{\partial^2}{\partial x^2} W_\alpha(t, x), \quad (0 < \alpha < 1, D_\alpha \equiv D_1 \tau^{1-\alpha}) \quad (4.4)$$

ここで、 $\alpha=1$ とした場合は、通常の拡散 (Brown 運動) となる。

(2) 基本解

時間非整数階微分の拡散方程式(4.4)について、時間に対して Laplace 変換 (演算子 L , 変数 s)、空間に対して Fourier 変換 (演算子 F , 変数 k) を行う。Caputo 定義による非整数 α 階微分した関数 $W_\alpha(t, x)$ の Laplace 変換は、

$$L \left[\frac{d^\alpha}{(dt)^\alpha} W_\alpha(t, x) \right] = s^\alpha W_\alpha(s, x) - s^{\alpha-1} W_\alpha(0, x), \quad (0 < \alpha < 1) \quad (4.5)$$

となる。Fourier 変換について、初期分布が $W_\alpha(0, x) = \delta(x)$ であることに留意して整理すると、特性関数として、

$$W_\alpha(s, k) = \frac{s^{\alpha-1}}{s^\alpha + D_\alpha k^2} \quad (4.6)$$

が得られる。この $W_\alpha(s, k)$ について逆 Fourier 変換および逆 Laplace 変換することにより、基本解 $W_\alpha(t, x)$ として次式が得られる。

$$W_\alpha(t, x) = \frac{1}{\sqrt{4D_\alpha t^\alpha}} \sum_{n=0}^{\infty} \frac{(-1)^n}{n! \Gamma(1-\alpha(n+1)/2)} \left(\frac{x^2}{D_\alpha t^\alpha} \right)^{n/2} \quad (4.7)$$

(3) 拡散係数

$W_\alpha(s, k)$ から、次のように平均二乗変位 $\langle x^2 \rangle$ を求めることができる[7]。

$$\langle x^2 \rangle = \int_{-\infty}^{\infty} x^2 W_\alpha(t, x) dx = L^{-1} \left[-\frac{\partial^2}{\partial k^2} W_\alpha(s, k) \right]_{k=0} = L^{-1} \left[\frac{2D_\alpha}{s^{\alpha+1}} \right] = \frac{2D_\alpha}{\Gamma(1+\alpha)} t^\alpha \quad (4.8)$$

拡散係数はこの平均二乗変位の時間微分によって求めることができるので、拡散係数 D は次式のように導出できる。

$$D = \frac{1}{2} \frac{d}{dt} \langle x^2 \rangle = \frac{D_\alpha}{\Gamma(\alpha)} t^{\alpha-1} = \frac{D_1}{\Gamma(\alpha)} \left(\frac{t}{\tau} \right)^{\alpha-1}, \quad (0 < \alpha < 1) \quad (4.9)$$

ここで得られた拡散係数は、時間 t について指数 $\alpha-1$ のべき乗関数となっており、 $0 < \alpha < 1$ であるから、時間の経過に対して拡散係数は減少することになる。これは時間非整数階微分による拡散方程式が異常拡散になることを示している。 $\alpha=1$ の場合には $D=D_1$ となり、拡散係数が一定値をとる Brown 運動になる。

4. 3 時間関数の拡散係数を持つ拡散方程式

異常拡散においては、拡散係数が時間に対してべき乗に変化する。そこで、拡散係数を次のような時間のべき乗関数として考えて、

$$D = \alpha D_\alpha t^{\alpha-1}, \quad (0 < \alpha < 1, D_\alpha \equiv D_1 \tau^{1-\alpha}) \quad (4.10)$$

このような時間関数で拡散係数が与えられる拡散方程式として異常拡散のモデルを考えることもできる。

$$\frac{\partial}{\partial t} W_t(t, x) = \alpha D_\alpha t^{\alpha-1} \frac{\partial^2}{\partial x^2} W_t(t, x), \quad (0 < \alpha < 1, D_\alpha \equiv D_1 \tau^{1-\alpha}) \quad (4.11)$$

$\alpha=1$ 場合には $D=D_1$ であり通常の拡散方程式となる。この拡散方程式について、無限長で初期分布 $W_\alpha(0, x)=\delta(x)$ とした場合の基本解は、以下ようになる[8]。

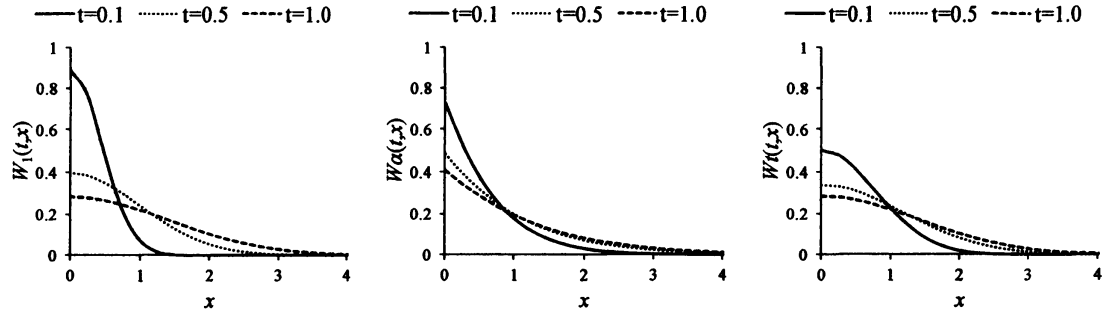
$$W_t(t, x) = \frac{1}{\sqrt{4\pi D_\alpha t^\alpha}} \exp\left(-\frac{x^2}{4D_\alpha t^\alpha}\right) \quad (4.12)$$

4. 4 各モデルの拡散分布特性

ここでは、先に述べた3つのモデルが示す分布特性の違いについて見ていくことにする。以降では各モデルについて次のようにとる。式(4.1)の通常微分の拡散方程式によるモデルを通常微分モデルと呼び、その分布関数は式(4.2)による。式(4.4)の時間非整数階微分の拡散方程式によるモデルを非整数階微分モデルと呼び、その分布関数は式(4.7)による。式(4.11)の時間関数の拡散係数を持つ拡散方程式によるモデルを時間関数の拡散係数モデルと呼び、その分布関数は式(4.12)によるものとする。

(1) 拡散分布の経時変化の比較

3つのモデルについての分布関数の時間推移 ($t=0.1, 0.5, 1.0$) の経時変化をみていく。非整数階微分モデルと時間関数の拡散係数モデルでの計算条件として $\alpha=0.5$, $D_\alpha=1$ とし、また式(4.7)における級数の総和は100項までとした。図4.1(a)は、通常微分モデルにおける分布関数についての経時変化である。通常微分モデルで得られる分布の形状は、良く知られているように Gaussian の分布を示している。図4.1(b)は、非整数階微分モデルにおける分布関数の経時変化である。非整数階微分モデルの分布は、Gaussian 分布とは異なり裾野が広がったロングテイルの分布となっており、記憶性のある拡散過程の様相を示している。図4.1(c)は、時間関数の拡散係数モデルの分布関数についての経時変化である。非整数階微分モデルの分布がロングテイルの分布特性であるのに対して、時間関数の拡散係数モデルの分布は、指数 α によって分布の形状がスケーリングされているものの、得られる分布形状は Gaussian 分布である。非整数階微分モデルと時間関数の拡散係数モデルは、双方ともに時間について指数 $1-\alpha$ のべき乗関数となる拡散係数を持った異常拡散になっているが、拡散分布の特性としては本質的に異なったモデルである。

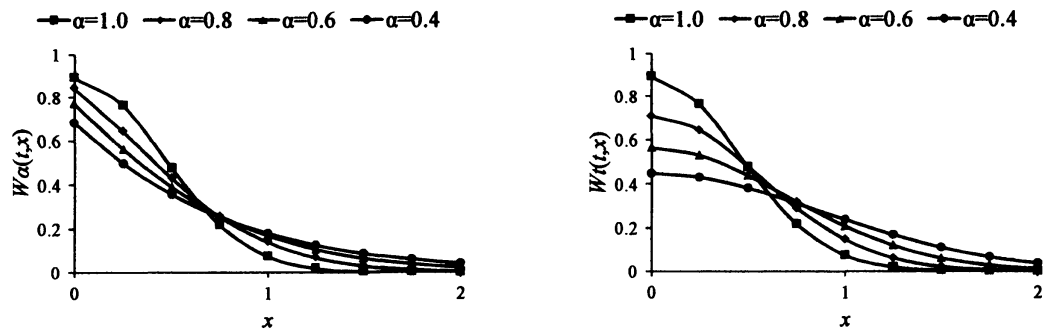


(a)通常微分モデル(Gaussian) (b)非整数階微分モデル (c)時間関数の拡散係数モデル

図 4.1. 各モデルの分布関数の比較 [文献 11 から引用]

(2) 指数 α の違いによる分布の比較

異常拡散となる非整数階微分モデルと時間関数の拡散係数モデルについて、指数 α の違いによる分布特性について比較しておく。図 4.2(a)は非整数階微分モデルについて、図 4.2(b)は時間関数の拡散係数モデルについて、 $t=0.1$, $D_a=1$ の条件で計算したものである。非整数階微分モデルは、指数(微分階数) $\alpha=1$ の場合には Gaussian 分布を示しているが、指数 α が小さくなるにつれロングテイルの分布特性が顕著になっていくことがわかる。一方、時間関数の拡散係数モデルは、指数 α が違うことにより分布の形状はスケーリングされるが、いずれの場合にも Gaussian 分布となっている。



(a)非整数階微分モデル

(b)時間関数の拡散係数モデル

図 4.2. 2つの異常拡散モデルでの指数による比較 [文献 11 から引用(一部改変)]

5. Langevin 方程式に基づいた異常拡散モデル

ここでは、粒子に作用する力の Newton 力学的な運動方程式に基づいた拡散モデルについて考える。粘性を持った媒体の中を球形の粒子が運動する場合を考える。外力が作用しない場合、粒子が受ける力としては、媒体の粘性がもたらす粘性抵抗力と媒体の分子が粒子に衝突することによって生じる揺動力が考えられる。ここでは一次元の問題として考えて、粒子の質量を m とし、時刻 t での粒子の変位を $x(t)$ 、速度を $v(t)$ とする。

5. 1 Brown 運動 Langevin 方程式

粒子に作用する粘性抵抗力について Stokes の法則が適用できるものとする、媒体の粘性抵抗を η としたとき、速度に比例する力として $-\eta v(t)$ となる。また揺動力は、時間に関無相関な Gaussian Noise の確率的な力 $f(t)$ が作用するものとする。揺動力のアンサンブル平均は $\langle f(t) \rangle = 0$ であり、時間相関は $\langle f(t_1)f(t_2) \rangle = 2\eta k_B T \delta(t_1 - t_2)$ で、時間に関無相関な関係にある。ここで、 k_B はボルツマン定数、 T は温度である。このときの粒子の運動方程式は、

$$\begin{cases} m \frac{d}{dt} v(t) = -\eta v(t) + f(t) \\ \frac{d}{dt} x(t) = v(t) \end{cases}, \quad \langle f(t) \rangle = 0, \quad \langle f(t)f(0) \rangle = 2\eta k_B T \delta(t) \quad (5.1)$$

となり、これは Brown 運動を記述する最も基本的な Langevin 方程式である[9]。この場合の拡散係数は次式で得られる。

$$D(t) = \frac{k_B T}{m\lambda} [1 - \exp(-\lambda t)] \quad (5.2)$$

ここで、 $\lambda = \eta/m$ とした。

5. 2 一般化 Langevin 方程式

粒子に作用する粘性抵抗力 F_v について、ここでは次のような記憶性のある力として考える。(これは Riemann-Liouville 定義による ν 階の非整数階積分のように考えることができる。)

$$F_v = -\eta \int_0^t \frac{1}{(t-t_1)^\nu} v(t_1) dt_1, \quad (0 < \nu < 1) \quad (5.3)$$

このときの揺動力 $F(t)$ については、アンサンブル平均は $\langle F(t) \rangle = 0$ であり、時間相関は揺動散逸定理の関係から、

$$\langle F(t_1)F(t_2) \rangle = \eta k_B T \cdot |t_1 - t_2|^{-\nu}, \quad (0 < \nu < 1) \quad (5.4)$$

の関係にある。この場合の粒子の運動方程式は、

$$\begin{cases} m \frac{d}{dt} v(t) = -\eta \int_0^t \frac{1}{(t-t_1)^\nu} v(t_1) dt_1 + F(t) \\ \frac{d}{dt} x(t) = v(t) \end{cases}, \quad \langle F(t) \rangle = 0, \quad \langle F(t)F(0) \rangle = \eta k_B T \cdot t^{-\nu}, \quad (0 < \nu < 1) \quad (5.5)$$

のように記述できて、これは一般化 Langevin 方程式と呼ばれている。

次に Laplace 変換法を用いてこの方程式の解析解を求めていく。式(5.3)の粘性抵抗力の Laplace 変換は合成積の関係から次のように計算することができる。

$$L \left[-\eta \int_0^t \frac{1}{(t-t_1)^\nu} v(t_1) dt_1 \right] = -\eta \cdot L \left[\frac{1}{t^\nu} \right] \cdot L[v(t)] = -\eta \cdot \frac{\Gamma(1-\nu)}{s^{1-\nu}} \cdot v(s), \quad (0 < \nu < 1) \quad (5.6)$$

これを用いて、式(5.5)の Laplace 変換を行って整理すると、

$$\begin{cases} \hat{v}(s) = \frac{s^{1-\nu}}{s^{2-\nu} + \lambda_\nu} v(0) + \frac{1}{m} \frac{s^{1-\nu}}{s^{2-\nu} + \lambda_\nu} \hat{F}(s) \\ \hat{x}(s) = \frac{1}{s} x(0) + \frac{s^{-\nu}}{s^{2-\nu} + \lambda_\nu} v(0) + \frac{1}{m} \frac{s^{-\nu}}{s^{2-\nu} + \lambda_\nu} \hat{F}(s) \end{cases}, \lambda \equiv \frac{\eta}{m}, \lambda_\nu \equiv \lambda \cdot \Gamma(1-\nu) \quad (5.7)$$

のようになる。これを逆 Laplace 変換することで速度 $v(t)$ と変位 $x(t)$ が得られる。このとき、Laplace 変数 s の非整数のべき乗を含んだ分数式の逆 Laplace 変換が必要になるが、特殊関数の一般化 Mittag-Leffler 関数

$$E_{\alpha, \beta}[t] \equiv \sum_{k=0}^{\infty} \frac{t^k}{\Gamma(\alpha k + \beta)}, \quad (\alpha > 0, \beta > 0) \quad (5.8)$$

を用いると、次の関係で変換することができる[4].

$$L^{-1} \left[\frac{s^{a-b}}{s^a \mp A} \right] = t^{b-1} E_{a,b} [\pm A t^a] \quad (5.9)$$

これにより式(5.7)から変位が得られる。

$$x(t) = x(0) + v(0) \cdot t E_{2-\nu, 2} [-\lambda_\nu t^{2-\nu}] + \frac{1}{m} \int_0^t (t-t_1) E_{2-\nu, 2} [-\lambda_\nu (t-t_1)^{2-\nu}] F(t_1) dt_1 \quad (5.10)$$

得られた変位から平均二乗変位は、以下のように導出することができる。

$$\langle (x(t) - x(0))^2 \rangle = \frac{k_B T}{m} \left(t E_{2-\nu, 2} [-\lambda_\nu t^{2-\nu}] \right)^2 + \frac{2\lambda_\nu k_B T}{m} \int_0^t t_1^{3-\nu} E_{2-\nu, 2} [-\lambda_\nu t_1^{2-\nu}] E_{2-\nu, 3-\nu} [-\lambda_\nu t_1^{2-\nu}] dt_1 \quad (5.11)$$

この平均二乗変位を時間微分することで、拡散係数は次のように計算できる。

$$D(t) = \frac{k_B T}{m} E_{2-\nu, 2} [-\lambda_\nu t^{2-\nu}] \left\{ E_{2-\nu, 1} [-\lambda_\nu t^{2-\nu}] + \lambda_\nu t^{3-\nu} E_{2-\nu, 3-\nu} [-\lambda_\nu t^{2-\nu}] \right\} \quad (5.12)$$

5. 3 非整数階微分 Langevin 方程式

ここでは Brown 運動 Langevin 方程式(5.1)において、時間の微分に非整数階微分を導入した Langevin 方程式を考える[10]. 時間に関して非整数階微分を用いることは、粒子に作用する力に対して時間に関する記憶性の効果を入れることになり、これにより履歴性のある粘性抵抗力和時間相関のある揺動力を伴った粒子の運動を記述することになる。(ここで紹介する内容は文献 5 および文献 12 に基づいている。詳細についてはそちらを参照願いたい.)

時間微分を非整数階微分に拡張することによるスケーリングを考えておく。ここでは時間に関するスケーリングのパラメタ (時間次元におけるフラクタル性の単位長さに相当する量) として $1/\lambda$ をとる。非整数階の時間微分による実質的な時間の変化量を dt^* とすると、フラクタル次元 α のとき、4.2 項で示したスケーリングの関係から $dt^* = (1/\lambda)^{1-\alpha} (dt)^\alpha$ として評価することになる。この

ことに留意して式(5.1)に非整数階微分を適用して整理すると,

$$\begin{cases} \frac{d^\alpha}{(dt)^\alpha} v(t) = -\lambda^\alpha v(t) + \lambda^{(\alpha-1)} \frac{f(t)}{m}, & (\lambda \equiv \eta/m, 0 < \alpha, \beta < 1) \\ \frac{d^\beta}{(dt)^\beta} x(t) = \lambda^{(\beta-1)} v(t) \end{cases} \quad (5.13)$$

となる. 本稿ではこれを非整数階微分 Langevin 方程式と呼ぶことにする. ここで用いる非整数階微分は Caputo 定義によるものとし, α は速度 $v(t)$ に対する微分階数で加速度への寄与, β は変位 $x(t)$ に対する微分階数であり速度への寄与を示すパラメタになる. $\alpha=\beta=1$ のときは, Brown 運動の Langevin 方程式(5.1)に帰着することがわかる.

非整数階微分 Langevin 方程式の解析においても, 先と同様に Laplace 変換による解法を用いる. Caputo 定義に基づく非整数階微分の Laplace 変換 (演算子 L , 変数 s) は,

$$L\left[\frac{d^\alpha}{(dt)^\alpha} v(t)\right] = s^\alpha \hat{v}(s) - s^{\alpha-1} v(0), \quad (0 < \alpha < 1) \quad (5.14)$$

であるから, これを用いて式(5.13)の Laplace 変換を行って代数的に整理すると,

$$\begin{cases} \hat{v}(s) = \frac{s^{\alpha-1}}{s^\alpha + \lambda^\alpha} v(0) + \lambda^{(\alpha-1)} \frac{1}{s^\alpha + \lambda^\alpha} \frac{\hat{f}(s)}{m} \\ \hat{x}(s) = \frac{1}{s} x(0) + \lambda^{(\beta-1)} \frac{s^{\alpha-(\beta+1)}}{s^\alpha + \lambda^\alpha} v(0) + \lambda^{(\alpha+\beta-2)} \frac{s^{-\beta}}{s^\alpha + \lambda^\alpha} \frac{\hat{f}(s)}{m} \end{cases} \quad (5.15)$$

となる. 次にこの式の逆 Laplace 変換を行うが, Laplace 変数 s の非整数のべき乗を含んだ分数式の逆 Laplace 変換は, 前項と同様のやり方で実施する. 結果として, 式(5.15)の逆 Laplace 変換から変位は次のように得られる.

$$x(t) = x(0) + v(0) \frac{1}{\lambda} (\lambda t)^\beta E_{\alpha,(\beta+1)}[-(\lambda t)^\alpha] + \frac{1}{m\lambda} \int_0^t \{\lambda(t-t_1)\}^{(\alpha+\beta-1)} E_{\alpha,(\alpha+\beta)}[-\{\lambda(t-t_1)\}^\alpha] f(t_1) dt_1 \quad (5.16)$$

この変位から平均二乗変位は,

$$\langle (x(t) - x(0))^2 \rangle = \frac{k_B T}{m\lambda^2} \{ (\lambda t)^\beta E_{\alpha,(\beta+1)}[-(\lambda t)^\alpha] \}^2 + \frac{2k_B T}{m\lambda} \int_0^t \{ \lambda t_1 \}^{(\alpha+\beta-1)} E_{\alpha,(\alpha+\beta)}[-\{\lambda t_1\}^\alpha] \}^2 dt_1 \quad (5.17)$$

として得られ, この平均二乗変位を時間微分することで, 拡散係数は次のように導出することができる.

$$D(\lambda t) = \frac{k_B T}{m\lambda} \left[(\lambda t)^{2\beta-1} \{ E_{\alpha,(\beta+1)}[-(\lambda t)^\alpha] \} \{ E_{\alpha,\beta}[-(\lambda t)^\alpha] \} + \{ (\lambda t)^{(\alpha+\beta-1)} E_{\alpha,(\alpha+\beta)}[-\{\lambda t\}^\alpha] \}^2 \right] \quad (5.18)$$

得られた解において, $\alpha=\beta=1$ とした場合には, Brown 運動の解と一致することは容易に確かめられる.

ここで拡散係数の漸近特性について調べておく. 緩和時間程度の短い時間経過の段階では, 粒子は慣性力の影響を強く受け直線的に運動するが, 時間経過とともに慣性力が減衰し, 粘性抵抗力和揺動力との釣り合いの運動に移行していくものと考えられる. Brown 運動の長時間過程では, 粘性抵抗力和揺動力との釣り合い $\eta v(t)=f(t)$ となり, このときの拡散係数は, $D_1=k_B T/m\lambda$ の一定値となる. 同様に, 非整数階微分 Langevin 方程式(5.13)において, 慣性力が減衰 (慣性項を省略) して, 粘性抵抗力和揺動力とが釣り合った状態は,

$$\frac{d^\beta}{(dt)^\beta} [x(t)] = \lambda^{(\beta-2)} \frac{f(t)}{m} \quad (5.19)$$

となり、このときは微分階数 β の非整数階微分方程式で記述されることになる。これを先に行った解析と同様の手法を用いて解いていくと、結果として拡散係数は、

$$D(\lambda) = D_1 \frac{(\lambda t)^{2(\beta-1)}}{\Gamma(\beta)^2} \quad (5.20)$$

として導出できる。これは拡散係数が時間に関して $2(\beta-1)$ のべき乗関数となっており、 $0 < \beta < 1$ であるから、拡散係数は時間経過に対して減少する異常拡散になることを示している。

5. 4 各 Langevin 方程式が示す拡散特性

これまでの解析によって得られた各 Langevin 方程式モデルでの拡散係数について、それぞれの解析式の挙動を調べる。図 5.1 に一般化 Langevin 方程式モデルに基づいた拡散係数と、図 5.2 に非整数階微分 Langevin 方程式モデルに基づいた拡散係数の振る舞いを示している。Brown 運動 Langevin 方程式に基づく拡散係数は、それぞれの図中で BM として示している。Brown 運動の拡散係数は、初期段階で立ち上がり増加し、時間が経過するにしたがって一定値 $D_1 = k_B T / m \lambda$ に収束していく。図 5.1 は、一般化 Langevin 方程式モデルでの拡散係数について、指数 ν を 0.9 から 0.6 まで 0.1 毎に変化させた場合の挙動を示した結果である。初期の経過で立ち上がり増加した後、時間経過とともに拡散係数が減少しており、これは異常拡散が示す特徴的な挙動である。図 5.2 は、非整数階微分 Langevin 方程式モデルでの拡散係数について、微分階数 α, β をパラメタとして、それぞれを 1.0 から 0.8 まで 0.05 毎に変化させた場合の挙動を示した結果である。 $\alpha = \beta = 1$ では BM (Brown 運動) に一致し、 $\alpha = \beta < 1$ の場合には、初期の経過で立ち上がり増加した後、時間経過とともに拡散係数が減少していく異常拡散の挙動を示している。この場合、拡散係数は式(5.20)に示した解に漸近していく[5]。

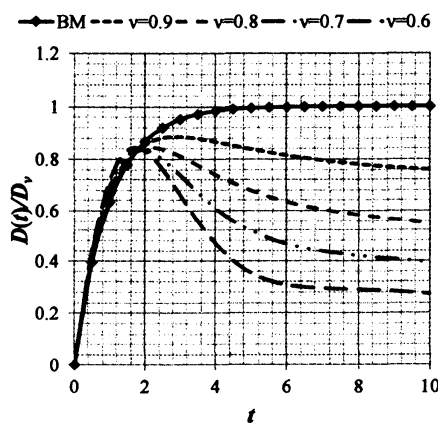


図 5.1. 一般化 Langevin 方程式モデルに基づく拡散係数

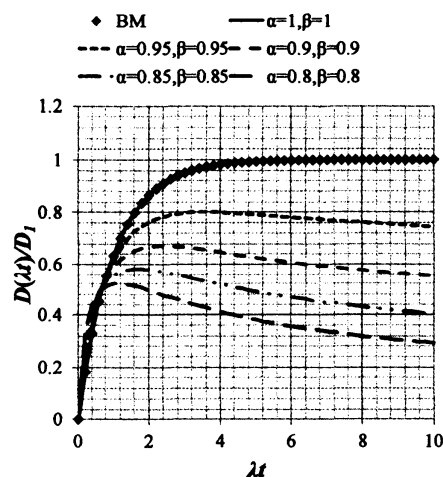


図 5.2. 非整数階微分 Langevin 方程式モデルに基づく拡散係数
[文献 5 から引用]

6. 時間非整数階微分による異常拡散モデルについてのまとめ

本稿では、拡散方程式による方法と Langevin 方程式による方法の2つの側面から異常拡散モデルについて考えてきた。拡散方程式に基づいた異常拡散モデルとして、非整数階微分モデルと時間関数の拡散係数モデルを考えた。双方ともに、異常拡散の特性である時間経過とともに減少する拡散係数となるが、拡散分布の特性は異なっていることを示した。Langevin 方程式に基づいた異常拡散モデルでは、一般化 Langevin 方程式および非整数階微分 Langevin 方程式に基づいた粒子の拡散運動は異常拡散になることを示した。一般化 Langevin 方程式では、粒子に作用する粘性抵抗力は非整数階積分の形式で記述できることを述べた。つまり一般化 Langevin 方程式の場合においても非整数階の演算で記述した方程式として考えることができる。非整数階の微分積分は過去からの履歴を積算する演算になっている。粒子運動の記述に非整数階の時間微分積分の演算を導入することは、履歴性のある力が作用する粒子の運動を記述することになり、これによりべき乗特性を示す異常拡散の過程を表現できるものと考えられる。

表 6.1 に、本稿で紹介した拡散方程式によるモデルと Langevin 方程式によるモデルについてまとめた。各モデルの対応関係を表中で見える。通常拡散については、(A-i)と(B-i)とが対応している。異常拡散において、(A-ii)は(B-ii)に対応していることが知られている[8]。非整数階微分によるモデルについては、(B-iii)は(B-ii)の一般化に対応している。

表 6.1. 拡散方程式モデルと Langevin 方程式モデルの対応

	(A) 拡散方程式によるモデル	(B) Langevin 方程式によるモデル
通常 拡 散	(i) 通常微分 $\frac{\partial}{\partial t} W_1(t, x) = D_1 \frac{\partial}{\partial x^2} W_1(t, x)$	(i) Brown 運動(Stokes 粘性) $m \frac{d^2}{dt^2} x(t) = -\eta \frac{d}{dt} x(t) + f(t)$ $\langle f(t) \rangle = 0, \quad \langle f(t) f(0) \rangle = 2\eta k_B T \delta(t)$
異常 拡 散	(ii) 時間関数の拡散係数 $\frac{\partial}{\partial t} W_\nu(t, x) = (\nu D_\nu t^{\nu-1}) \frac{\partial}{\partial x^2} W_\nu(t, x)$ $(D_\nu = D_1 \tau^{1-\nu})$	(ii) 一般化(履歴粘性) $m \frac{d^2}{dt^2} x(t) = -\eta \int_0^t \frac{1}{(t-t_1)^\nu} \frac{d}{dt} x(t_1) dt_1 + F(t)$ $\langle F(t) \rangle = 0, \quad \langle F(t) F(0) \rangle = \eta k_B T \cdot t^{-\nu}$
	(iii) 非整数階微分 $\frac{\partial^\alpha}{(\partial t)^\alpha} W_\alpha(t, x) = D_\alpha \frac{\partial}{\partial x^2} W_\alpha(t, x)$ $(D_\alpha = D_1 \tau^{1-\alpha})$	(iii) 非整数階微分 $m \frac{d^{\alpha+\beta}}{(dt)^{\alpha+\beta}} x(t) = -\eta \frac{d^\beta}{(dt)^\beta} x(t) + f(t)$ $\langle f(t) \rangle = 0, \quad \langle f(t) f(0) \rangle = 2\eta k_B T \delta(t)$

7. おわりに

拡散現象を記述する従来の微分方程式モデルにおいて、時間微分に非整数階の演算を導入することで、異常拡散となるモデルについて紹介した。非整数階の微分積分は、過去の経過が現時点での振舞いに影響を与えるような、記憶性・履歴性のある物理現象を記述するのに有効な手法であると考えられる。本稿では拡散現象を対象としたが、他の物理現象においても、これまで用いられてきた現象方程式において、従来の微分積分を非整数階の演算に置き換えることでフラクタル性を示すモデルに拡張することができるものと予想され、様々な領域での応用が期待される。しかしながら、非整数階の微分積分は、対象とする問題によって異なった定義が使われる等の状況であることからわかるように、数学的にまだ整備されていない部分がある。これまでの微分積分学に基づいて構築されてきたモデルと呼応した形で、統一的な定義のもと、非整数階微分積分学として体系化されることがのぞまれる。

参考文献

- [1] Akiko Masuda et al. , “Direct observation of spatiotemporal dependence of anomalous diffusion in inhomogeneous fluid by sampling-volume-controlled fluorescence correlation spectroscopy,” *Physical Review E*, Vol.72, pp.060101-1-4, 2005.
- [2] I.Y.Wong et al. , “Anomalous Diffusion Probes Microstructure Dynamics of Entangled F-Actin Networks,” *Physical Review Letters*, Vol.92, No.17, pp.178101-1-4, 2004.
- [3] 杉本信正, “非整数階微分・積分とその応用,” *ながれ* 4, pp.110-120, 1985.
- [4] Igor Podlubny, *Fractional differential equations*, Academic Press, 1999.
- [5] 島本憲夫, “非整数階微分ランジュバン方程式における拡散特性の解析,” *信学論* Vol.94-A, No.12, pp.932-940, 2011.
- [6] 島本憲夫, “不均質媒質における拡散現象の非整数階微分方程式によるモデル化, シミュレーション,” *数学セミナー*, Vol.12, pp.60-64, 2011.
- [7] Ralf METZLER, Joseph KLAFTER, “THE RANDOM WALKS GUIDE TO ANOMALOUS DIFFUSION: A FRACTIONAL DYNAMICS APPROACH,” *Physics Reports* 339, pp.1-77, 2000.
- [8] Eric Lutz, “Fractional Langevin equation,” *Physical Review E*, Vol.64, pp.051106-1-4, 2001.
- [9] 湯川秀樹監修, 戸田盛和・久保亮五編集, *現代物理学の基礎*[第2版] 5 統計物理学, 岩波書店, 1978.
- [10] V. Kobelev and E. Romanov, “Fractional Langevin equation to describe anomalous diffusion,” *Prog. Theor. Phys. Supp.* 139, pp.470-476, 2000.
- [11] 島本憲夫, 非整数階微分による異常拡散のモデル化について(その1)「非線形拡散の数理」, *京都大学数理解析研究所講究録* No.1810, pp.59-84, 2012.
- [12] 島本憲夫, 非整数階微分による異常拡散のモデル化について(その2)「非線形拡散の数理」, *京都大学数理解析研究所講究録* No.1810, pp.85-112, 2012.