

論文審査の結果の要旨

氏名 富樫祐一

本論文は反応系において分子の数の離散性によって生じる新たな振舞いを様々なシミュレーションと理論的解析を通して一般的に論じたものである。

本論文は 8 章 140 ページからなる。第 1 章は導入説明、以下 2-7 章では分子数の離散性がもたらす新しい現象が論じられる。第 2 章では離散性による自己触媒系の状態遷移、第 3 章ではそれがもたらすマクロな性質の変化、第 4 章では離散性による反応拡散系の定常状態の変化、第 5 章ではその結果としての新しいパターン生成がシミュレーションを通して発見され、またそのしくみが詳しく議論される。第 6 章では離散性による反応ネットワークのスイッチ、さらに第 7 章では、より大規模なネットワーク構造の変化が論じられる。第 8 章では論文の結果がまとめられ、その意義が議論されている。

化学反応系の濃度の変化やその定常状態を考える際には、各成分の濃度を変数とした微分方程式を用い、必要に応じてそのまわりのゆらぎを連続的なノイズと見なす確率微分方程式的な手法を用いることが多い。しかし実際には、各成分は分子からなるものであり、その量(分子数)は離散的(整数)でしかありえない。分子数が比較的多いうちは、連続的記述は有効であるが、分子数が少なくなると、数の $0, 1, 2, \dots$ といった離散性は無視できなくなる。本論文では、微分方程式・確率微分方程式を用いた方法では現れない、分子の離散性が本質的であるような現象の可能性を、計算機シミュレーションに基づいて論じ、そのしくみを解明している。

第 2、3 章では、粒子の出入りのある、小さな容器内での反応系を例として、分子数の離散性による、新たな状態への遷移について論ずる。モデルとしては、4 種類の成分からなる自己触媒的な反応のループ $X_i + X_{i+1} \rightarrow 2X_{i+1}$ (反応速度定数 r_i) を用いる ($X_5 \equiv X_1$)。反応容器(体積 V) は、物質浴(各成分 X_i の濃度 s_i) と接しており、拡散による分子の出入り(速さ D_i) があるものとする。

第 2 章では反応係数、拡散係数、物質浴の濃度が各成分ごとに等しい場合を例にして、 V が小さくなると、 $N_2 = N_4 = 0$ (1-3 rich 状態) と $N_1 = N_3 = 0$ (2-4 rich 状態) の間をスイッチする状態が現われることが示される(各成分の分子数 N_i)。この変化は秩序パラメータ $N_2 + N_4 - (N_1 + N_3)$ の分布が 1 山から 2 山へ変わる、転移として表現される。1-3rich、2-4rich の状態では反応が完全に停止するが、ただ 1 個の分子の流入により N_i が急激に変化することに着目してこの転移の起こるしくみが説明される。

第 3 章では、物質浴の濃度などが成分ごとに異なる場合を用いて、第 2 章で論じた離散性による状態遷移が、長時間平均をとった、系のマクロな性質にも影響を及ぼしうることが示される。具体的には、連続極限では各成分の平均濃度 \bar{x}_i は V によらないが、 V を小さくするにつれて、この \bar{x}_i に段階的な変化が生じる。この変化を生ずる機構が、Case I - 流入の離散性と反応速度の関係、Case I' - 流入の離散性の非対称性、Case II - 流入の離散性と流出の速さの関係に分類して論じられる。以上、2、3 章ともに連続的記述ではあらわれない、離散性による転移現象であるが、2 章の結果は 2 次転移的、3 章の結果は 1 次転移的ともみなされる。

ここまでは容器内では粒子がよく攪拌されている場合であるが、空間構造まで考えて離散性の効果を論じたのが4、5章である。

第4章では反応拡散系において、分子の離散性によって成分の局在が生じ、それによって連続極限(反応拡散方程式)とは異なる定常状態が生ずることが示される。まず、濃度の低い成分Aと、それによって生成される成分Bを考える。この系の場合、分子がその寿命の間に拡散してゆく距離の典型値、Kuramoto Length $l = \sqrt{2D\tau}$ が重要な基本的なスケールである(D は拡散係数、 τ は平均寿命)。もし生成された分子Bの寿命が短いか拡散が遅く、BのKuramoto LengthがAの平均分子間隔よりも十分に短ければ、成分BはA分子の周りに局在することになる。そこで成分Bの局在によって何らかの反応が一樣分布の場合より加速されるならば、連続極限で考えた場合とは定常状態が変化する可能性があり、実際、この反応加速率の安定固定点として、離散性による新しい定常状態が理論的に求められる。その例として、2次反応を含む反応拡散系のシミュレーションを行い、理論値と定量的に合致することが示される。

第5章ではこの結果をふまえて、分子の離散性が、反応拡散系のパターン生成にも影響を及ぼしうることが議論される。ここでは、第4章の反応拡散系で拡散係数が成分ごとに異なる場合を考え、連続極限(反応拡散方程式)ではパターンが生じないのに対し、分子の離散性を考えた場合にはスポット状のパターンが生成することが数値的に示され、説明される。

6、7章では反応が複雑なネットワークをなしている場合に、分子の離散性が影響して状態のスイッチを起こす可能性が議論される。まず、4成分からなる反応ネットワークモデルを用いて、少数個の分子によって反応ネットワークの振舞いがスイッチする簡単な例が示される。第7章では、酵素反応のネットワークを意識した複雑なネットワークで、分子の離散性がネットワークの実効的な構造を変化させることが示される。具体的にはビット列の連結・切り離しとして高分子の触媒反応ネットワークをモデル化し、その系が外界の変化に適応してスイッチし、多種類の分子を再生産することが示される。

このように、富樫氏は本論文において、分子数の離散性がもたらす新しい状態への転移を、攪拌系、反応拡散系、反応ネットワーク系で発見、それを説明することに成功している。現在、細胞内での反応ダイナミクスは理論的にも興味を持たれているが、その場合、しばしば分子数は非常に少ない。一方微小リアクターによる実験も最近進展している。こうした問題に対し、数の少なさが単にゆらぎを増大させるのではなく新しい状態をもたらすという、富樫氏の結果は大きな意義があり、将来的にはその実験的検証も議論されて来よう。また、第4章で導入された反応加速率の固定点としての状態転移の定式化は新しい理論として注目に値する。もちろん、今後理論的につめるべき問題も残ってはいるが、本論文は離散性による状態変化という新しい分野を切り開く上で重要な寄与を与えていると考えられる。

なお、本論文の第2章、第3章はそれぞれすでに論文が出版されており、第4章は現在投稿済み(査読中)である、さらに第5-7章の結果も投稿準備中である。これらは金子邦彦との共同研究であるが、いずれも論文の提出者が主体となって行なったもので、提出者の寄与がほとんどである。

以上の点から本論文は博士(学術)の学位請求論文として合格と認められる。