

論文内容の要旨

論文題目 **Self-maintained Movements of Droplets
with Convective Flow**
(対流によって維持される液滴の自発運動)

氏名 松野 弘樹

ノイマンの自己複製オートマトンに関する先駆的成果、それに続くラングトンらの研究以来、自己複製は、人工生命において精力的に研究されてきた。自己複製は、生物進化に関連しておりその重要性は言うまでもないが、同程度に運動も生物の重要な特徴である。生物は、非平衡なマクロ構造であり、運動性を示すものが多い。代謝作用によって生物は、リソースの取り込みと生成物の排出を行うが、それによって外部環境は局所的な変化をこうむり、平衡へと近づいてゆき、非平衡性を保つ上で不利に働く。環境を移動する能力は、そのような状況を回避し、また新たなリソースの獲得につながり、生存上優位に働き得る。このように、生物の移動性は、物理的条件からも、また探索的行動という認知的能力の点からも重要である。

一方、物理実験によって、ミセル、ベシクルなどの脂肪酸で構成された細胞状構造は、自己組織化による形成、内部の化学反応による膜生成と分裂、また化学反応に起因した運動性を示すことが近年示されている。これらは、自己複製や運動性といった特徴を備えた非平衡なマクロ構造であり、生物システムの基本的特徴を持っているため、それら基本的特徴を研究する上でのプロトタイプとして注目されている。

これらを踏まえ、最近、Hanczyc et al. は脂肪酸を境界とする油の自発運動の実験を行なった。オレイン酸を境界に、無水オレイン酸を内部に持つニトロベンゼンの液滴を、オレイン酸ミセルの溶け込んだ水相に導入したところ、液滴の運動が確認された。これは、境界付近で発生する無水オレイン酸の加水分解に起因している。加水分解の結果、界面活性剤であるオレイン酸が生成され、また局所的な pH を変化させる。両者とも、界面張力に影響を与えるため、界面張力の非対称性により、運動が生じる。また、界面張力差に由来する対流(マランゴニ効果)も合わせて観測された。この実験は、液滴が化学エネルギーを力学エネルギーに変換しながら、運動を作り出す例となっている。

この実験では、対流が運動に伴う副産物として生じているだけなのか、運動に積極的な寄与をしているのかは、不明確であった。運動する上で環境に pH 勾配が作られているが、化学反応、運動、対流の協調の下で成立していると考えられ、その点の具体的なメカニズムの解明が待たれている。この学位論文の研究では、対流が果たす液滴運動への寄与について探るために、数理モデルを構成し、計算機シミュレーションを行い、その振る舞いを分析することを目的とする。

上記をモデル化する上で、次の3点が欠かせない。(1)境界の移動や変形、(2)境界付近での化学反応、(3)対流。関連した先行研究として Karin et al.、や Kitahta et al.らの事例があるが、上記3点を満たした液滴運動モデルはまだ提案されていない。本研究では、それら要件を満たし

た上で、液滴の運動のシミュレーション、分析を行った点が新奇である。液滴と周囲の流体から成る2相系を扱い、流体運動と化学反応をカップルした数理モデルを構成した。支配方程式は、界面張力項を持たせた Navier-Stokes 方程式、流体の連続の式、移流項を持たせた反応拡散方程式となる。界面張力に影響を与える化学成分を仮定し、境界付近で生成し液滴内部で拡散するとした。空間は2次元とし、有限差分法によって数値計算を行った。初期状態として液滴内部の化学成分の濃度勾配を与えたところ、次のような結果が得られた。

- 液滴は一方向的な運動を開始し、同時に液滴内部では運動を軸とするような対流が観察された(図1)。この運動は内部の化学成分が平衡に達するまで間、しばらく続いた。これらは、Hanczyc et al. の実験に定性的によく合致する。
- 化学反応と対流の効果を調べるために、反応を抑制した場合と、対流の効果を仮想的に打ち消すような2つの状況で実験を行った。前者は、化学成分が表面から押し流されることにより、また後者は化学成分が境界付近で飽和することによって、いずれも初期の勾配が等方化した。そのため、反応と対流の両者が同時に働く通常の場合より、液滴の移動距離は短かった。また、移動速度も遅くなった。つまり、反応と対流の効果は、一方だけでは運動が非効率となるが、両者がバランスして協調的に働くとき、より長い移動を達成できる。
- 対流は攪拌効果を持ち、化学反応は飽和状態へと系を近づけるため、いずれ一方が働いている状況では系の緩和を速くする。一方で、両者が同時に作用している状況では、緩和時間が長くなることが確認された(図2)。この特徴は非平衡性の維持の観点から重要である。以上では、初期条件として、化学成分の勾配を仮定しているの、液滴が動くこと自体は自明であるが、反応と対流の協調的作用が、効率的な運動生成、非平衡性維持に寄与していることが分かった点が、成果である。

さらに、初期条件の勾配を仮定せずに界面付近でのランダムな化学濃度分布から開始し、どのように運動が開始されるかを調べた。まず、ランダム性に起因して界面付近で、多数の小さな渦が形成される。それらが時間とともに少数の大きな渦へと統合された状態へと推移する。このような対流の下では、液滴内部の領域が対流によって界面の特定の局所へと輸送され、界面での化学濃度ゆらぎ拡大されるという結果が得られた(図3)。この濃度勾配は、マランゴニ対流を生じさせるため、渦の成長を促すというポジティブフィードバック効果が働いている。化学濃度の非対称性がいったん作られると、液滴は一方向性の運動を始める。

以上をまとめると、次の通りである。自発運動のプロトタイプとして、化学反応に起因する液滴運動実験を扱った。界面運動、化学反応、対流の要件を満たした数理モデルを構成し、計算機シミュレーションを実施し、実際の実験結果と定性的にあう、運動や対流を再現した。化学反応と対流のバランスによって、効率的な運動が実現され、また非平衡性の維持にも寄与していることが分かった。また、ランダムな初期値からの実験により、対流の動態は化学濃度の非対称性を生成する要因にもなっていることが分かった。

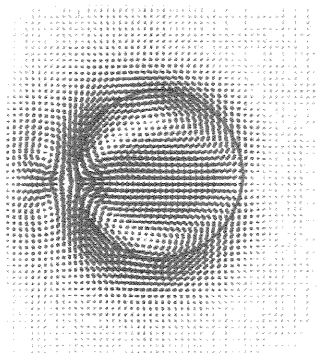


図1: 速度場

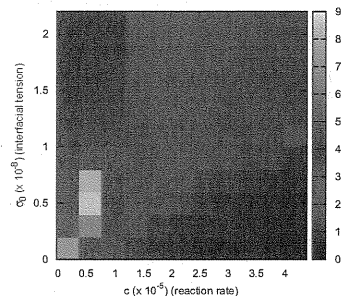


図2 緩和時間
x: 反応レート, y: 界面張力

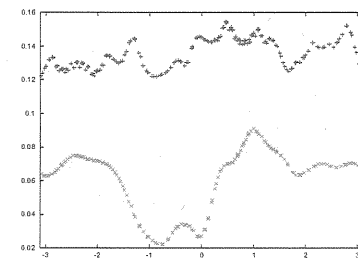


図3 界面でのケミカル濃度
赤: 初期値、緑: 運動開始後