

## Characteristic motion of self-propelled objects induced by nonlinearity under nonequilibrium conditions

(非平衡条件下で非線形性の導入により生じる自己駆動体の特徴的な運動)

理学研究科数理分子生命理学専攻 松田 唯

### Chapter I General Introduction

自己駆動系の研究は微小空間中の物質輸送、欠陥検出、修復などを目的として広く行われてきた。ところがそれらの多くは単指向運動やランダム運動を示すだけであった。これに対してミドリムシなどの単細胞生物は、非平衡状態から生じる化学エネルギーを直接運動エネルギーに変換し、鞭毛を使って運動している。また、外部刺激や環境に対して特徴的なふるまいで応答する「走性」を持ち、群れを形成する種もある。

本研究では、主に界面張力差を駆動力とした気/液界面上での自己駆動素子の運動を用いた。そして運動様相を高めるために非線形性を導入し、生物の運動が持つ振動・履歴・同調・パターン形成といった非線形現象を運動として発現した。具体的には、自己駆動素子の異方性に依存した流れとバルク相の深さが運動に反映される系と、光反応や酵素反応等、反応拡散が運動に反映される系について実験し、これらの物理化学的要因に基づく運動様相と分岐構造の機構を解明した。

### Chapter II: Acceleration or deceleration of self-motion by the Marangoni effect

自己駆動素子として使用する樟脳粒を水面に浮かべると、樟脳分子の展開から生じる界面張力差を駆動力として運動する。樟脳円板周りの濃度場の対称性が摂動により崩壊することで運動を開始し、単指向運動による非対称性の維持が等速運動を発現する。プラスチック板と樟脳円板を組み合わせた樟脳船はその非対称性を反映して表面張力の高いプラスチック板の方向に運動する。このような濃度場やが界面に存在すると、液相の深さに依存して流束が大きくなるマランゴニ流が生じることが知られている。マランゴニ流の構造は自己駆動系の対称性によって異なる。特に擬一次元水路において、ロール状の流れが樟脳船では進行方向後方(船尾側)に1つ(図1上)、樟脳円板では進行方向の前後に2つ発生する(図1下)。本研究ではこのような素子の対称性に依存したマランゴニ流の構造による、素子自身の速度の水深依存性について考察した。

ここでは樟脳船(非対称系)と樟脳円板(対称系)の二種類の自律運動素子を用い、マランゴニ流の構造と流束が異なる条件下で素子の速度を観察した。擬一次元水路において、水深に依存して船の速度は減少したのに対して、円板の速度は増加した(図2)。この異なる依存性は流れの構造の違いに起因する。つまり、水面においてマランゴニ流は素子から離れる方向に生じる。船は進行方向と流れの方向が逆向きのため、流れがブレーキとして働き減速する。円板は前後両方向に流れの力を受けるが、自身の運動により進行方向に生じた流れに近づくことで、進行方向と同方向の流れによって加速される。またシャーレのような二次元場では水深に依存した速度変化は観察されなかった。この流れの効果は一次元場では進行方向軸に流れが集約されるため顕著に現れるが、二次元場では流れが分散してしまい十分な力が得られないと考えられる。

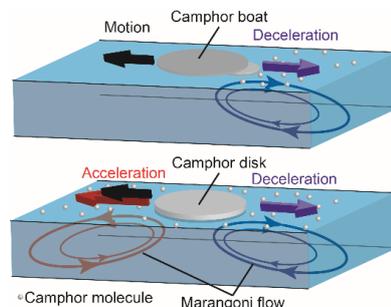


図1. マランゴニ効果を受けた  
(上)樟脳船,(下)樟脳円板の運動模式図

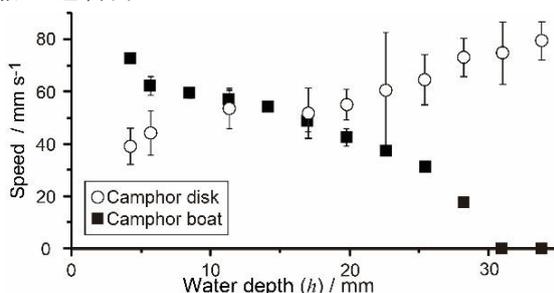


図2. 各水深における樟脳船(■),  
樟脳円板(○)の平均速度

### Chapter III Photo-sensitive self-motion of a BQ disk

自律運動素子(*p*-benzoquinone (BQ))は樟脳と同様に水面に設置すると界面張力を低下させ運動の駆動力になる。一方で BQ の還元により生成される hydroquinone (HQ)は水に可溶性な物質であり駆動力にならない。また、BQ と HQ は水に難溶性な複合体である quinhydrone (QH)を生成する。本研究は、複合体形成反応を用いて界面に展開した BQ 分子の濃度に非対称性を持たせるとともに、光反応により HQ を生成することで特徴的な運動様相を発現することを目的とした。

BQ 円板を HQ 水溶液に浮かべると、水相中の HQ 濃度に依存して連続運動、振動運動、停止の 3 種の運動様相が観測された(図 3)。これは生成した QH が溶解度を超えると円板上に析出し、運動を阻害するためである。また、BQ と水相内の物質間の反応に加えて、光反応で水面に展開した BQ 分子を還元することで連続運動→振動運動、振動運動→停止の様相変化が生じた。さらに分光光学測定により反応の進行度を評価し、それぞれの運動様相が生じるメカニズムを提唱した。

これは濃度場の非線形性に応答して生じた振動運動に加えて、外部刺激(光照射)によってさらに濃度場が変化することで運動分岐の濃度領域が変化する、より生物の運動に近いシステムであると考えられる。

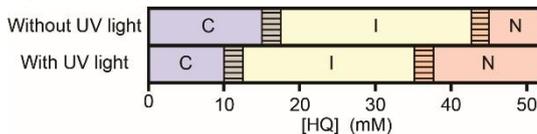


図 3. 各 HQ 濃度での(上)照射無、(下)照射有の様相  
C: 連続運動, I: 振動運動, N: 停止

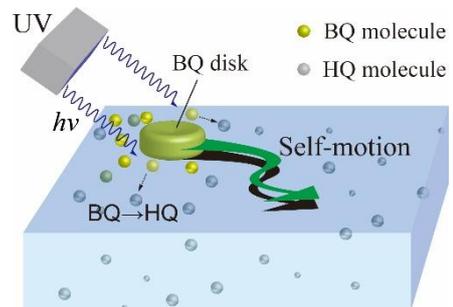


図 4. 光照射による運動様相の制御の模式図

### Chapter IV : Self-propelled motor driven by a glucose engine

界面張力差を駆動力とした系以外に、過酸化水素の分解で生じる酸素を駆動力とした自己駆動系について発展研究を行った。本研究では、解糖系の振動現象など高い非線形性を持つ酵素反応系を用いて特徴的な運動様相を取り出し、合わせて自己駆動素子自らがより生体系に近い原料から駆動力を生む自己駆動系を作成した。

酵素(グルコースオキシダーゼ(GOx))を含有させたろ紙と金属触媒(白金)を組み合わせさせた自己駆動体をグルコース水溶液に浮かべると、ろ紙中で酵素反応により過酸化水素が発生する(図 5)。この過酸化水素が白金周辺で分解、生成する酸素を駆動力として自己駆動体は運動する。素子の運動速度と速度の「揺らぎ」はグルコース濃度に依存して増加した。この「揺らぎ」の増大は酵素反応が触媒反応に対して律速であり、過酸化水素の供給が連続的でないことを示唆している。また、素子はその非線形性に応答することで振動運動を生じる可能性を示唆している。さらに水相中の酸素量測定により、反応速度を評価した。実際に反応中で酸素を使用しない酵素反応を用いたシステムにおいて、振動運動する条件を発見している。

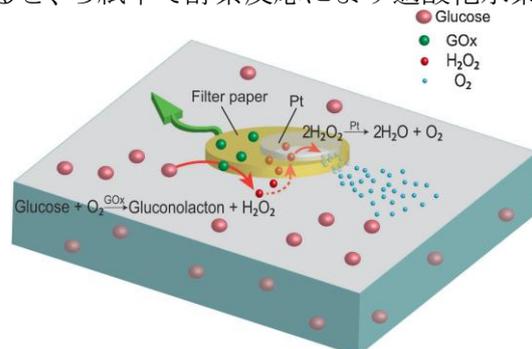


図 5. 酵素反応による白金の運動システム

### 公表論文

**Y. Matsuda**, N. J. Suematsu, H. Kitahata, Y. S. Ikura, and S. Nakata, “Acceleration or deceleration of self-motion by the Marangoni effect”, *Chemical Physics Letters*, **654**, 92-96 (2016).

**Y. Matsuda**, M. Yoshii, N. J. Suematsu, S. Izumi, and S. Nakata, “Self-propelled motor driven by a glucose engine”, *Chemistry Letters*, **43**, 453-455 (2014).

**Y. Matsuda**, N. J. Suematsu, and S. Nakata, “Photo-sensitive self-motion of a BQ disk”, *Physical Chemistry Chemical Physics*, **14**, 5988-5991 (2012).