

## 論文審査の要旨

博士の専攻分野の名称	博 士 （ 理 学 ）	氏名	XU YU
学位授与の要件	学位規則第4条第1・2項該当		
論 文 題 目			
Bifurcation of Oscillatory Motion in Self-Propelled Objects at an Air/Water Interface (水面滑走する自己駆動体における振動運動の分岐現象)			
論文審査担当者			
主 査	教 授	中田 聡	
審査委員	教 授	飯間 信	
審査委員	教 授	泉 俊輔	
審査委員	准教授	田中 晋平	
〔論文審査の要旨〕			
<p>XU YU 氏は、水面を滑走する自己駆動体について博士論文を作成した。従来の自己駆動体ではランダム運動又は外力による単指向運動しか示さなかった。それに対して本研究では、非線形科学の導入により駆動体の自律性を向上し、多様な運動様相の発現とそれらの間にある分岐点の解明を目的とした。本論文は3つの内容から構成される。</p> <p>1 つ目は、表面張力差で駆動される自己駆動体について、底面に拡散する分子の効果を明らかにする研究である。具体的には、振動運動を示す樟脳円板の水面との接触面積を変え、ドデシル硫酸ナトリウム (SDS) を駆動力制御分子として水相に加えて実験した。具体的には自己駆動源である樟脳円板の底面にプラスチック円板を付着し、水面への分子の展開量を制御するためにプラスチック円板の面積を変えた。その結果、樟脳円板底面の被覆率が高い場合の停止状態と被覆率が低い振動運動の2種類の運動モードが発現し、被覆率60%付近に分岐点が生じることを見出した。振動領域における被覆率と最高速度との関係や樟脳と SDS 分子との会合体形成に基づいて、閾値濃度と分岐の関係及び駆動力の大きさについて議論した。本研究の内容はアメリカ化学会の <i>The Journal of Physical Chemistry B</i>, 2021, <b>125</b>, 1674-1679 に掲載された。</p> <p>2 つ目は、樟脳円板の水面滑走における深さ依存性に関する研究である。通常水相が深いほどマランゴニ流が大きくなるため、自己駆動体の速度は高くなる。ところが本研究では、SDS 水相では水槽が深いほど速度が低下することを見出した。この現象を解明するために、樟脳円板を SDS 水相水面に接した際に発生する樟脳分子層の展開を可視化と駆動力に関わる表面張力測定を行った。また反応拡散移流方程式と Navier-Stokes の式から、マランゴニ流の大きさを数値計算により求めた。これらの結果に基づいて、運動速度に関する水深依存性の逆転現象が、SDS と樟脳との会合体形成及び会合体の水相への溶解によることを実験と理論の両面から明らかにした。本研究の内容は Elsevier の <i>Colloids and Surfaces A</i>, 2022, <b>635</b>, 128087 に掲載された。</p> <p>3 つ目は、酵素反応と結合した自己駆動体の運動モード分岐に関する研究である。酵素反応は非線形性の高い化学反応系であることから、運動方程式と酵素反応を駆動力で結合すると、特徴的な運動様相を導出することが可能である。具体的には、ウレアーゼを吸着させたろ紙から構成される自己駆動体を、尿素水溶液の水面に浮かべて実験を行った。そ</p>			

の結果、水相の初期 pH ( $\text{pH}_{\text{ini}}$ ) に依存して、酸性で停止、中性付近で振動運動、塩基性で停止の 3 つの運動モード分岐が生じることを見出した。まずウレアーゼの酵素活性を測定したところ、pH 5.5 で酵素活性が最大となるベル型曲線が得られた。次に振動運動領域 ( $4.0 \leq \text{pH}_{\text{ini}} \leq 6.5$ ) において、 $\text{pH}_{\text{ini}} 5.5$  において振動周波数と最高速度が最大値となった。また酵素反応による生成物の一つである  $\text{NH}_3$  が表面張力を下げることから駆動力になることと、その閾値が 1 M であることを、表面張力測定、pH 指示薬による運動との同時可視化、及び  $\text{NH}_3$  水の滴下実験により確認した。そして pH の酵素活性に関するベル型曲線による正と負のフィードバックが反映されて振動運動が生じることを示した。本研究の内容は Wiley の *Chemistry an Asian Journal*, 2021, **16**, 1762–1766 に掲載された。

以上 3 つの研究から、非線形科学に基づいて、表面張力差を駆動力として、振動運動等の特徴的な運動様相とモード分岐を示す自律性の高い自己駆動体の構築が可能であることを報告した。

以上、審査の結果、本論文は統合生命科学研究科学位論文評価基準を満たし、著者は博士（理学）の学位を授与される十分な資格があるものと認められる。