

令和 6 年 6 月 4 日現在

機関番号：14301

研究種目：基盤研究(C)（一般）

研究期間：2021～2023

課題番号：21K03855

研究課題名（和文）自己推進液滴の運動多様性をもたらす分岐構造の解明と集団運動

研究課題名（英文）Bifurcation structure and collective motions of a self-propelling droplet driven by surfactant

研究代表者

市川 正敏（ICHIKAWA, Masatoshi）

京都大学・理学研究科・講師

研究者番号：40403919

交付決定額（研究期間全体）：（直接経費） 3,100,000円

研究成果の概要（和文）：システムが持つエネルギーを利用しつつ、外力由来ではない内力由来の運動を自ずから示す物体を自己駆動物体と呼びます。本研究ではとくに自己駆動して並進運動を示す微小液滴に着目し、その運動転移メカニズムを実験と理論の両面から明らかにしました。水や油に近い物性のとき、マイクロメートルサイズから大きくなっていくと停止状態から並進運動状態への転移が起きます。我々は、この並進運動が直進安定解を持つことを明らかにすると共に、更に大きくなったときに内外対流の四極子モードの向きが不安定になる転移が起き、外乱や擾乱に対しての運動方向安定性が極めて弱くなることでカーブ運動が引き起こされることを明らかにしました。

研究成果の学術的意義や社会的意義

本研究は、細胞サイズのスケールでの液滴が示す遊泳運動の流体力学的特性と駆動対流の安定構造を解明しました。これによって、液滴の運動モードやその安定性が、サイズや物性が変化した際にどのように変わるかのメカニズムが明らかになりました。この知見は、化学反応を利用して自らを動かすアクティブ液滴の運動制御技術への応用面として重要です。さらに、初期の生物がどのような生体分子やメカニズムを利用して細胞運動を獲得したのかは未解明な謎ですが、本研究はそれら初期生物が利用したと考えられる物理学的な要件と、運動の多様性を生み出す最も単純な要素を明らかにしたという観点で、発展的な意義があります。

研究成果の概要（英文）：A self-propelled object is an object that exhibits motion driven by internal forces utilizing the energy inherent in the system. In this study, we focus on micrometer sized self-propelled droplets that show translational swimming motion and elucidate the mechanism of their motion transition through both experimental and theoretical approaches. When the droplets are composed of water and oil, a drift transition occurs from a stationary state to a translational motion state accompanied with size increase of the droplet. We have revealed that this translational motion has a stable solution for the straight motion. Additionally, as the droplets become more larger, a bifurcation occurs where the direction of the quadrupole mode of internal and external convection becomes unstable. This instability leads to weak directional stability of the motion against disturbances or perturbations, resulting in curved motion.

研究分野：生命現象の物理学

キーワード：自己駆動液滴 アクティブマター エマルジョン マイクロスイマー 細胞運動

1. 研究開始当初の背景

自己推進液滴を観察していると、自ら動き回ることそのものが生き物の様で愛らしく、その運動の様相に興味をそそられます。また、界面でおきる非平衡現象が如何にして系の対称性を破って個体の運動へと転化するかという、界面非平衡現象としての課題や研究も重要です。同様の流れで、生き物よりシンプルでありつつも複雑な自発運動を生み出すモデル実験系としても着目されてきました。これまでに、液滴の動き出しがどのようなメカニズムで起きるかという研究や、あらかじめ非対称を与えた上での運動モードを調べた研究など、我々を含めた様々な研究がありました。運動の多様性がどのように創発するのかという研究はほとんど為されていませんでした。しかし、生物の多様な運動を見れば、生きるという事の中に占める多様な運動の重要性が類推できます。言い換えると、運動の多様性がどのレベルから発生し得るのか、その物理学的な要因は何なのかを知る事は、その性質を利用する生物や、おそらくはその性質そのもので多彩な運動を示したであろう初期の生物の運動メカニズムを理解する上で決定的に重要な知見であると言えます。

2. 研究の目的

本研究はそのような背景のもと、非平衡系が示す生き物らしさの顕れの一つである自己駆動運動について、その運動の多様性がどこから創発するのかに興味をもち、とくに自己駆動する遊泳液滴の運動とその自己駆動対流が、運動モードの転移の中でどのような役割やメカニズムを持っているのか解明する事を目指しました。

また、波及的な研究として、流体力学的に相似である遊泳微生物の運動モードの変化や外界に対する応答、細胞膜に包まれた駆動液滴とも言えるアメーバ細胞の運動にも取り組むことで、多角的な理解も目指しました[K. Okuyama, et al, *Micromachines* (2021); T. Ohmura et al., *Sci. Adv.* (2021)]。

3. 研究の方法

実験およびモデリングでは、自己駆動液滴の中でも最もシンプルな系と言える、油/水/界面活性剤の3要素で構成されたエマルジョン液滴をターゲットにしました。この微小液滴は、外部の界面活性剤溶液から界面活性剤分子が液滴界面に移行するプロセスと、微量の内部液体を包み込む形で界面活性剤が集団で離脱するプロセスがバランスする事で、液滴界面に表面張力の勾配が形成されます。この表面張力勾配はマランゴニ効果を誘起することで、双極子型の対流を生み出します。これが液滴の並進運動を生み出す駆動対流となっています。表面張力勾配と並進運動は長時間にわたって維持され、液滴は泳ぎ続けることができます。このような液滴の運動は、ペクレ数が増加するにつれて停止状態から並進運動状態へ転移する事が知られていました(S. Michelin, et al., *Phys. Fluids* (2013) など)。

本研究はここから更にペクレ数を大きくするアプローチをとります。ペクレ数は拡散による物質の移動と、対流に乗った物質の移流の、どちらが想定する空間サイズに於いて勝るかという指標です。今回の系の場合は、液滴サイズを調整することで定量的に再現良くペクレ数を変化させます。実験ではガラスキャピラリーの先端から溶液を導入することで随意的サイズの液滴を液中に形成しました(図1)。これにより、マイクロ流体デバイスを用いた際に問題となっていた複数液滴による相互作用を排したうえで、液滴サイズを制御しつつ定量的な測定実験を行うことが出来ました。

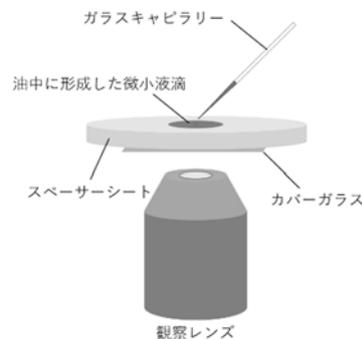


図1. 実験の模式図。

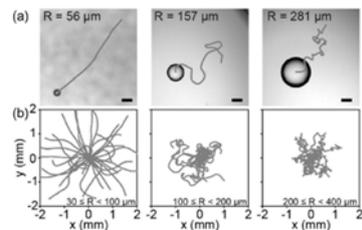


図2. 実験結果。右方ほどサイズが大きい液滴。

4. 研究成果

まず、液滴サイズ変えた際の自己駆動の速度や方向を顕微鏡観察で測定しました(図2)。その結果、液滴サイズが大きくなるにつれて、直進運動が主体だったものからカーブ運動や回転、

振動運動が目立つものへと変化するという実験結果が得られました。次に、この運動モード転移のメカニズムを調べるために、運動のカギとなる駆動対流も粒子画像相関流速測定法によって解析しました。この駆動対流の形状と強度を直進運動の寄与分とそれ以外に分ける為、球面調和展開した各項でフィッティングしてその強度や時間変化を運動方向の変化（角速度）と比較しました。その結果、成分の大きさや時間変化と運動方向変化に統計的な関連は薄いなか、双極子対流と四極子対流の軸の角度差が運動方向の変化と強い相関を示している事を発見しました（図3）。

次に、実験で得られた結果をもとに数理モデルを作成し、そのモデルから実験を説明、予言できるか検証を行いました。内外に誘起されるマランゴニ対流と液滴の表面張力、そして直進運動との間を結ぶ定常の関係式は先行研究によって示されています（M. Schmitt and H. Stark, *Phys. Fluids* (2016).）。そこに界面活性剤が自身で生み出す対流に乗って時間変化するとして方程式をたて、双極子成分と四極子成分などの大きさやそれらの向き、実験で得られた角度差についての関係式を得ました。さらに方程式の解を求めて解の安定性を検討しました。その結果、液滴のサイズが小さい場合には直進運動の安定解が得られること、そこから液滴サイズが大きくなると、小さい時の安定解が不安定化して代わりに別の解が安定になる事が分かりました。この大きい時の安定解は直進運動を示しますが、ゆらぎや外力に対する感受性が大きくなり、運動方向の変化についてゆらぎを拡大する形で応答します。この状態が、実験で得られたふらふら彷徨いながらカーブ運動を示す状態に対応していると考えられます。実際に、速度や運動方向と角度差との間の関係式を導き、そこに実験に対応した物性値を入れてみたところ、実験結果を非常に良く再現する事を確認しました。以上の結果から、感受性が高くなることは四極子の方向の安定性が低くなることに対応しており、僅かなゆらぎや外力によって四極子の向きが変わり、その四極子の向きを追いかけるように双極子が方向転換するというメカニズムが明らかになりました[S. Suda, et al., *Phys. Rev. Lett.*, (2021)]。

さて、上記の結果は解が安定であっても外力を受けた後に安定解に戻るまでの時間がかかれば、液滴の運動としてはその間ずっと回転運動をしている事を示します。これは直進運動解が安定であっても、ノイズ感受性が高くなると我々が目にする運動モードが回転運動主体になるという事です。そのため外力やノイズの性質を変えた時に我々が目にする液滴運動がどの様に変わっているのかの対応を確認する必要があります。そこで、液滴のサイズが小さい時と大きい時に対応するそれぞれの状態について、入力するノイズの性質を変えて数値計算を行いました。その結果、ノイズに対して応答を縮小させるか拡大させるかの性質はノイズの種類にかかわらず統計的に言葉通りの振る舞いを示しましたが、間欠性のランダム刺激を与えた場合には、液滴の見た目の運動が大きく湾曲したものに変わる事が確認されました。これは、液滴サイズが大きくなった場合に間欠ノイズ要因に衝突する頻度が面積に比例して高くなるなどの実験状況を模倣すると、より顕著な振る舞いとなります（図4）。この結果より、濃度ゆらぎなどの周波数が高くホワイトノイズの様な性質をもつものより、航跡に伴う濃度むらや液滴自身の界面活性剤濃度場が生み出す高次項が、ふらふらと彷徨いながらカーブ運動を見せるモードに寄与してることが明らかになりました[S. Suda, et al., *Phys. Rev. E*, (2022)]。

以上の様に、自己駆動液滴の運動とその変化について、その駆動対流と運動との関係を実験と数理モデルの両面から調べ、直進運動からカーブ運動への転移挙動のメカニズムを明らかにしました（図5）。本研究によって、化学反応などで自己駆動する液滴の運動制御を実現する基礎技術や、原始的な生物などの単純な自己駆動運動体の運動の多様化をもたらす最も単純な要素など、重要な成果が得られました。



図5. 自己駆動液滴の運動モード変化についての模式図。

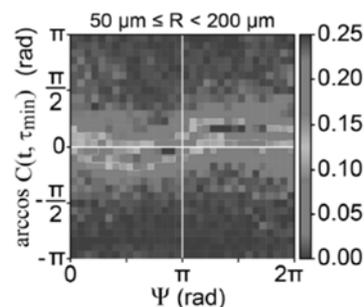


図3. 対流成分の角度差と進行方向の変化速度。

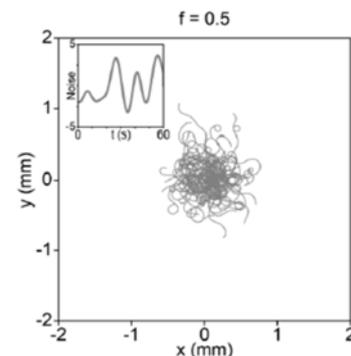


図4. 対流成分の角度差と進行方向の変化速度。

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計6件（うち査読付論文 6件/うち国際共著 2件/うちオープンアクセス 3件）

1. 著者名 Saori Suda, Tomoharu Suda, Takuya Ohmura, Masatoshi Ichikawa	4. 巻 106
2. 論文標題 Motion of a swimming droplet under external perturbations: A model-based approach	5. 発行年 2022年
3. 雑誌名 Physical Review E	6. 最初と最後の頁 034610/1-8.
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1103/PhysRevE.106.034610	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 該当する
1. 著者名 Takuya Ohmura, Yukinori Nishigami, Masatoshi Ichikawa	4. 巻 19
2. 論文標題 Simple dynamics underlying the survival behaviors of ciliates	5. 発行年 2022年
3. 雑誌名 Biophysics and physicobiology	6. 最初と最後の頁 e190026/1-10
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.2142/biophysico.bppb-v19.0026	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスとしている（また、その予定である）	国際共著 該当する
1. 著者名 Suda Saori, Suda Tomoharu, Ohmura Takuya, Ichikawa Masatoshi	4. 巻 127
2. 論文標題 Straight-to-Curvilinear Motion Transition of a Swimming Droplet Caused by the Susceptibility to Fluctuations	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 Physical Review Letters	6. 最初と最後の頁 088005 / 1~6
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1103/PhysRevLett.127.088005	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -
1. 著者名 Ohmura Takuya, Nishigami Yukinori, Taniguchi Atsushi, Nonaka Shigenori, Ishikawa Takuji, Ichikawa Masatoshi	4. 巻 7
2. 論文標題 Near-wall rheotaxis of the ciliate Tetrahymena induced by the kinesthetic sensing of cilia	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 Science Advances	6. 最初と最後の頁 eabi5878 / 1~8
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1126/sciadv.abi5878	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスとしている（また、その予定である）	国際共著 -

1. 著者名 Okuyama Kohei, Nishigami Yukinori, Ohmura Takuya, Ichikawa Masatoshi	4. 巻 12
2. 論文標題 Accumulation of Tetrahymena pyriformis on Interfaces	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 Micromachines	6. 最初と最後の頁 1339 ~ 1339
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.3390/mi12111339	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスとしている (また、その予定である)	国際共著 -

1. 著者名 奥山紘平、市川正敏	4. 巻 61
2. 論文標題 自分で泳ぐ粒子たち 繊毛中の集団運動	5. 発行年 2024年
3. 雑誌名 粉体工学会誌	6. 最初と最後の頁 204 ~ 212
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.4164/sptj.61.204	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

〔学会発表〕 計20件 (うち招待講演 4件 / うち国際学会 8件)

1. 発表者名 Masatoshi Ichikawa
2. 発表標題 Self-propelled droplet makes an end of straight swimming by a size effect
3. 学会等名 9th World Congress of Biomechanics (WCB 2022) (招待講演) (国際学会)
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 奥山紘平、市川正敏
2. 発表標題 繊毛虫テトラヒメナの生物対流における個体の遊泳
3. 学会等名 日本物理学会2022年秋季大会
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 大元隆史, 丸山慶, 市川正敏
2. 発表標題 自己推進液滴が形成するクラスターの規則運動
3. 学会等名 日本物理学会2022年秋季大会
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 小林琢実, 市川正敏
2. 発表標題 遊泳微生物テトラヒメナの脈流への応答
3. 学会等名 日本物理学会2022年秋季大会
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 奥山紘平, 市川正敏
2. 発表標題 繊毛虫テトラヒメナの高濃度懸濁液における集団遊泳の解析
3. 学会等名 2022 年度研究集会「生物流体力学と生物運動」
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 大元隆史, 丸山慶, 市川正敏
2. 発表標題 自己推進液滴が形成するクラスターの運動
3. 学会等名 2022 年度研究集会「生物流体力学と生物運動」
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 小林琢実, 市川正敏
2. 発表標題 繊毛虫テトラヒメナの脈流応答
3. 学会等名 2022 年度研究集会「生物流体力学と生物運動」
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 Masatoshi Ichikawa
2. 発表標題 Self-propelled droplets: from model system to living cell
3. 学会等名 International workshop: Complex motile matter from single agents to collective behaviors (招待講演) (国際学会)
4. 発表年 2023年

1. 発表者名 Masatoshi Ichikawa
2. 発表標題 Transition from straight motion to curvilinear motion of swimming droplet
3. 学会等名 Frontiers in nonequilibrium physics: Active matter topology and beyond (国際学会)
4. 発表年 2023年

1. 発表者名 Saori Suda, Tomoharu Suda, Takuya Ohmura, Masatoshi Ichikawa
2. 発表標題 Swimming droplet makes an end to straight motion by increase in size
3. 学会等名 7th International Soft Matter Conference ISMC2023 (国際学会)
4. 発表年 2023年

1. 発表者名 Kohei Okuyama, Masatoshi Ichikawa
2. 発表標題 Mesoscale dynamics in condensed suspensions of microswimmers <i>Tetrahymena pyriformis</i>
3. 学会等名 7th International Soft Matter Conference ISMC2023 (国際学会)
4. 発表年 2023年

1. 発表者名 Kohei Okuyama, Masatoshi Ichikawa
2. 発表標題 Mesoscale dynamics in condensed suspensions of microswimmers <i>Tetrahymena pyriformis</i>
3. 学会等名 28th International Conference on Statistical Physics Statphys28 (国際学会)
4. 発表年 2023年

1. 発表者名 奥山紘平, 市川正敏
2. 発表標題 繊毛虫テトラヒメナ懸濁液の気液界面におけるメゾスケールダイナミクス
3. 学会等名 日本物理学会第78回年次大会
4. 発表年 2023年

1. 発表者名 Masatoshi Ichikawa, Takumi Kobayashi
2. 発表標題 Measurements of motion response and rheotaxis behavior of ciliate <i>Tetrahymena</i> under shear flow in a microfluidic device
3. 学会等名 日本流体力学会2023
4. 発表年 2023年

1. 発表者名 Kohei Okuyama, Masatoshi Ichikawa
2. 発表標題 Experimental measurement of mesoscale dynamics at air-water interface of suspension of ciliate Tetrahymena
3. 学会等名 日本流体力学会2023
4. 発表年 2023年

1. 発表者名 市川正敏
2. 発表標題 遊泳微生物の走流性について実験上の定義を考える
3. 学会等名 生物流体力学における境界
4. 発表年 2023年

1. 発表者名 Masatoshi Ichikawa
2. 発表標題 Rheotaxis of ciliates
3. 学会等名 Diorama-Ethology Ciliate Workshop (招待講演) (国際学会)
4. 発表年 2023年

1. 発表者名 Masatoshi Ichikawa
2. 発表標題 Measurement of rheotaxis of ciliates
3. 学会等名 Active Matter Workshop 2024
4. 発表年 2024年

1. 発表者名 Masatoshi Ichikawa
2. 発表標題 Emergence of bio mimicry movements of micro swimmers
3. 学会等名 Kyoto Winter School 2024 Towards Holistic Understanding of Life (招待講演) (国際学会)
4. 発表年 2024年

1. 発表者名 奥山紘平, 市川正敏
2. 発表標題 繊毛虫テトラヒメナの懸濁液における気液界面への着脱過程の解析
3. 学会等名 日本物理学会2024年春季大会
4. 発表年 2024年

〔図書〕 計1件

1. 著者名 京都大学大学院理学研究科MACS教育プログラム実行委員会 (編集)	4. 発行年 2022年
2. 出版社 京都大学学術出版会	5. 総ページ数 317
3. 書名 京大式サイエンスの創り方: 狙ってもできないことがある	

〔産業財産権〕

〔その他〕

<p>市川正敏のWEBページ https://chem.sophys.kyoto-u.ac.jp/ichikawa/ 泳ぐ水滴はなぜ直進しないのか? https://www.kyoto-u.ac.jp/ja/research-news/2021-08-23-1 泳ぐ微生物が海まで流されない理由 - SDGsに欠かせない小さな生物たちの振る舞いを解明 - https://www.kyoto-u.ac.jp/ja/research-news/2021-10-21-0</p>
--

6. 研究組織

	氏名 (ローマ字氏名) (研究者番号)	所属研究機関・部局・職 (機関番号)	備考
--	---------------------------	-----------------------	----

7. 科研費を使用して開催した国際研究集会

〔国際研究集会〕 計0件

8. 本研究に関連して実施した国際共同研究の実施状況

共同研究相手国	相手方研究機関
---------	---------