

科学研究費助成事業（学術研究助成基金助成金）研究成果報告書

平成 25 年 6 月 4 日現在

機関番号：32682

研究種目：若手研究（B）

研究期間：2011 年度～2012 年度

課題番号：23740299

研究課題名（和文） 場を介して相互作用する自己駆動粒子の集団運動

研究課題名（英文） Collective motion of self-propelled particles

研究代表者

末松 信彦（SUEMATSU NOBUHIKO）

明治大学・先端数理科学研究科・講師

研究者番号：80542274

研究成果の概要（和文）：本研究は、水面を自発的に滑走する樟脳船の集団に現れる秩序構造の発見と解析を目的として行った。樟脳船を円形の擬一次元水路に多数浮かべると時空間的な周期構造を示す。この機構を数理的に詳しく解析するために、樟脳船からの分子供給速度や昇華速度などの基礎データを測定した。この成果と数理モデルを元に、水面における樟脳船が相互作用可能な距離を見積もることに成功した。新たな秩序構造発見のために、2次元水面に樟脳粒を多数浮かべ、その集団運動を観察した。その結果、数密度がある一定以上に増えると停止と運動を非周期的に繰り返す間欠運動が現れることを発見した。一定数以上になると樟脳粒は動かなくなることは既に知られていたが、間欠運動の発現は新たな集団運動の発見である。

研究成果の概要（英文）： Collective motion is one of the hot topic in an interdisciplinary research field. Collection of camphor boats exhibits spacio-temporal pattern on a ring-shaped water channel. To clarify the mechanism in detail, we measured the basic parameters such as supply and sublimation rate of camphor molecules. Based on our measurement, we estimated the relaxation distance of camphor surface concentration behind the boat. This distance tells us the interaction between the boats. Next, we observed collective behavior of camphor disks on circular water surface, in order to discover novel collective motion. As the result, we successfully found intermittent motion of camphor disks with high number density. This behavior is novel collective motion induced by interaction between the disks.

交付決定額

（金額単位：円）

	直接経費	間接経費	合計
交付決定額	3,500,000	1,050,000	4,550,000

研究分野：数物系

科研費の分科・細目：数理物理・物性基礎

キーワード：自律運動、集団運動、非線形科学、自己組織化

1. 研究開始当初の背景

集団運動の研究は数理的な解析が先行しており、1995年に Toner らが提唱した微生物の大集団の群れ挙動を記述するモデルをきっかけに、自走する要素の集団運動の統一的な記述を求めた研究が進められてきた。その結果、大きなゆらぎ、伝播波、そして動的な相転移や不安定化を通じた空間構造の発現が共通の特徴として現れる事が明らかにされている。この様な理論研究の進展に伴い、予測される現象の実験的な検証が求められるようになってきた。ところが、実際の生物システムで系統的な実験を行うことは非常に困難であり、いくつかの例外を除いて（例えば、*Nature* (2010) **467**, 73）実験的な検証はあまり進んでいなかった。

実験的な検証を行うためには、単体の運動特性およびそれらの相互作用機構が明らかになっている自走する素子が不可欠である。実験条件の制御が容易で、運動機構が明らかになりつつあるシステムとして、無生物系の自律運動システムが挙げられる。無生物の自律運動システムの研究は 1992 年に G. M. Whitesides らにより報告された液滴の自発的な運動（濡れ性の勾配を与えた固体基板上）に端を発し、運動素子みずからが周囲に異方性を作り出して運動する「自律運動システム」へと発展している（例えば *Phys. Rev. E* (2005) **71**, 065301 や *Phys. Rev. Lett.* (2005) **94**, 068301）。特に後者は、運動素子自らが周辺の化学的環境を変化させながら運動している点で、無生物系の集団運動の要素として高い適性を有している。つまり、化学反応場を利用することで素子が相互作用をすることが可能となるのである（M. I. Kohira *et al.*, *Langmuir* (2001) **17**, 7124）。

2. 研究の目的

この様な背景の中、本研究課題では樟脳船に着目して自律運動素子の相互作用機構の解明およびそこから生み出される集団挙動の発見を目指して研究を行った。具体的には、一次元水路を滑走する 2 体の樟脳船間に働く相互作用の解明、相互作用を元にした集団挙動発生メカニズムの解明、2 次元水面における樟脳粒の集団挙動の発見と解析を目指して研究を進めた。

3. 研究の方法

3-1. 2 体間相互作用

2 体の船の間に働く相互作用は水面の樟脳濃度場を介して行われている。そこで、まずは樟脳濃度場を決める物性の測定を行った。これまで水面の樟脳濃度場は (i) 樟脳粒からの供給、(ii) 水面拡散、(iii) 水面からの昇華・水中への溶解の 3 つの効果が決

ており、これらの効果を踏まえて、以下の様な反応拡散系の方程式で表されている。

$$\frac{\partial c}{\partial t} = D\nabla^2 c - kc + F(\mathbf{x}, t).$$

第一項が拡散、第二項が昇華と溶解、第三項が供給を示している。この数理モデルから、直接測定が困難な水面の樟脳度プロファイルおよび表面張力プロファイルを導くことができる。しかし、各項の定数に関する知見は乏しい。そこで、各項の定数を明らかにするために、次の様な実験を行った。

表面積 A (50–150 cm²) の水相を用意し、樟脳船を 5 隻浮かべたときの表面圧の時間変化を測定した。ここで、表面圧とはベースの表面張力（今回は水の表面張力 72 mN/m）と実際の表面張力の差である。この実験を、表面積を変数として繰り返し行った。得られた表面張力の緩和時間から k を、表面張力の平衡値と表面積の関係から F を求めた。

3-2. 2 次元水面における集団的周期運動

樟脳粒を水面に多数浮かべると粒の運動は抑制され、斥力的な相互作用のため空間一様に分布することが知られている。この駆動力の喪失は水中に溶解した樟脳分子によりベースの表面張力が低下したためであると考えられる。そこで本研究では、大容量の水相を用意し、さらに樟脳粒の運動領域をテフロン板で制限することで、水相の樟脳濃度の増加を抑制するシステムを構築した（図 1）。

樟脳粒には樟脳分子を析出させた寒天粒を用いた。まず寒天ゲルシート（5% w/v, 厚さ 0.5 mm）を用意し、樟脳の MeOH 溶液（0.5 g/mL）に 12 時間以上浸漬した。実験の直前にゲルを取り出し、水で十分に洗浄した後、型抜きで円形にくり抜いた（直径 2, 3, 4, 8 mm）。

水相に樟脳粒を複数浮かべ、運動の様子をビデオカメラに撮影した。撮影した動画の解析は PC 上で画像解析ソフト（ImageJ）を用いて行った。

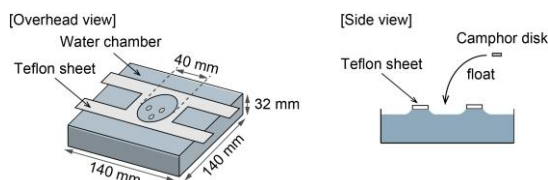


図 1. 大容量水相システムの模式図。

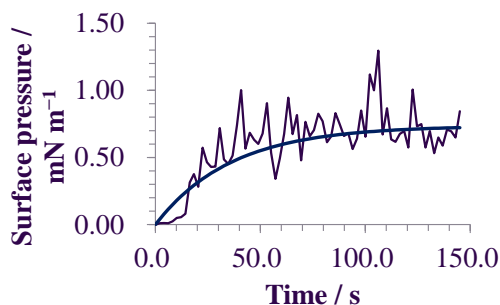


図2. 樟脳船による表面圧の時間変化。

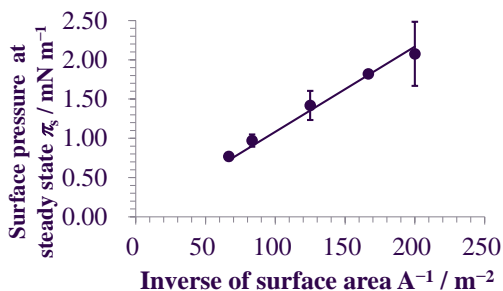


図3. 水相表面積の逆数に対する平衡表面圧

樟脳粒の集団運動と平均的な表面張力との関係を明らかにするために、表面張力計 (Wilfermi 法) を用いて、樟脳粒が運動している水面の表面張力を測定し、運動との相関を調べた。また、樟脳水溶液を用意し、樟脳粒を1つ浮かべ、その運動を観察した。

4. 研究成果

4-1. 2体間相互作用

表面圧は樟脳船を浮かべるとすぐに増加し、およそ100秒で平衡値に達した(図2)。樟脳分子の水面における拡散速度は十分に速く、水面の表面張力が一様であると仮定すると、水面の樟脳濃度は以下の式で書ける。

$$\frac{\partial c}{\partial t} = -kc + \frac{n\alpha}{A}$$

ここで、 c は水面の樟脳濃度、 n は樟脳船の数、 α は一つの樟脳船が単位時間あたりに供給する樟脳の量を意味している。 α は場の樟脳濃度に寄らず一定であると仮定すると、次の関係式が得られる。

$$c = \frac{n\alpha}{kA} (1 - e^{-kt})$$

水面の樟脳濃度と表面圧との間に線形関係が成り立つと仮定すると、表面圧の時間変化は式(3)に比例する。実験結果を式(3)でフィッティングして緩和速度 k は $1.8 \times 10^{-2} \pm 0.5 \times 10^{-2} \text{ (s}^{-1}\text{)}$ であった。

十分に時間が経った後に達する平衡表面圧は式(3)から水相の表面積 A に反比例することが分かる。 A の逆数に対して平衡表面圧をプロットした結果、線形関係が得られた(図3)。この近似直線の傾きから、1個の樟脳船が単位時間あたりに減少させる水面のエネルギーを $4.0 \times 10^{-5} \text{ (mJ s}^{-1}\text{)}$ と見積もることができた。これは樟脳が供給されることによる表面張力低下により引き起こされるものである。

4-2. 2次元水面における集団的周期運動

樟脳粒の集団はその個数 (N) に応じて2つの運動モードを示した。一つは一定速度で動き続ける「連続運動」、もう一つは停止した状態から急加速し、再び停止するという挙動を非周期的に繰り返す「間欠運動」である(図4)。この運動様相は粒の個数を変数として転移し、直径2mmの粒の場合は11個以上で間欠運動が確認できた。

粒の平均速度は連続運動から間欠運動へ転移するところで急激に減少し、間欠運動の領域ではほぼ 0 mm s^{-1} であった。また、間欠運動する粒の運動状態の時の速度は粒の増加に伴い減少し、 0 mm s^{-1} に漸近した(図5)。

粒の大きさと個数を変数として運動様相の変化を調べたところ、大きい粒ほど少ない個数で間欠運動に転移した(図6a)。縦軸を粒の周長の和 ($L = \pi dM$) にしたところ、運動様相はある一定の値 L_c ($\sim 60 \text{ mm}$) で転移した。このことは、粒同士の相互作用が粒の個数や平均距離ではなく、周長に支配されていることを意味している。

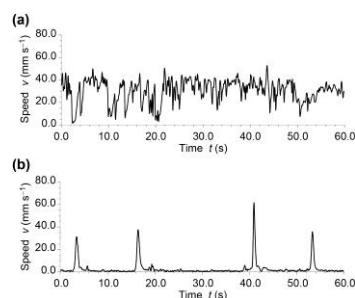


図4. 樟脳粒の速度プロファイル。(a) 連続運動 ($N: 5$)。 (b) 間欠運動 ($N: 11$)。

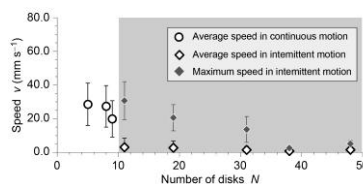


図5. 樟脳粒の個数 (N) に依存した平均速度 (○、◇) と運動状態の速度 (◆)。間欠運動 (◇、◆) の領域の背景に影を付けてある。

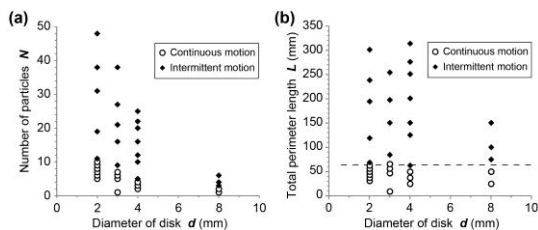


図 6. 運動様相の相図。横軸は粒の直径、縦軸は (a) 粒の個数、(b) 周長の和である。

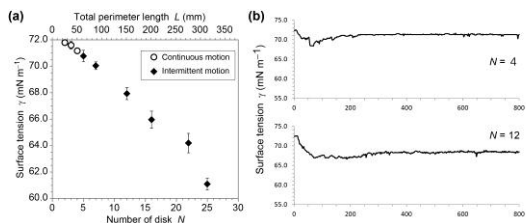


図 7. (a) 平衡に達した表面張力の個数依存性。(b) 表面張力の時間変化。

樟脳粒同士の相互作用は水面の樟脳濃度を介して行われている。そこで、空間平均の表面張力を測定したところ、平衡に達した表面張力の値は粒の増加に伴い単調に低下した (図 7)。間欠運動を示す個数では、表面張力は 70 mN m^{-1} 以下であった。表面張力の時間変化を見ると、粒を加えると急激に低下し、その後ゆっくりと回復して平衡値に達した。表面張力のゆらぎはあったが、間欠運動における停止と運動に同期した変動は確認できなかった。

平均の表面張力の低下と運動様相の関係をさらに調べるために、水相に樟脳水溶液を用い、ベースの表面張力を下げた状態で、単一の樟脳粒を浮かべ、その運動を観察した。その結果、樟脳濃度の増加と共に速度は低下したが、飽和溶液に達して粒が停止するまで全て連続運動であった。このことから、今回観察された間欠運動は粒同士の相互作用から生まれる集団運動であると考えられる。

間欠運動が集団の粒で現れる機構はいまだ明確には分かっていないが、考える機構を提案する。間欠運動は停止と運動を繰り返す。この停止状態は粒通しの斥力相互作用が力学的なバランスを得ることで実現されていると考えられる。しかし、各粒子がゆらぐことで確率的に力学バランスが崩れ、粒が駆動力を得ると、運動が誘起される。小さな運動でも、ひとたび誘起されるとバランスを崩す方に正のフィードバックがかかり、全体が運動状態に遷移する。移動により他の粒子や境界に接近すると駆動力が失われ、再び緩やかに力学バランスが回復する。これを繰り返すことで間欠運動が現れているものと考えられる。

5. 主な発表論文等

(研究代表者、研究分担者及び連携研究者には下線)

[雑誌論文] (計 4 件)

- Eric Heisler, Nobuhiko J. Suematsu, Akinori Awazu, and Hiraku Nishimori "Collective Motion and Phase Transitions of Symmetric Camphor Boats" *J. Phys. Soc. Jpn.* **81**, 074605 (2012). DOI: 10.1143/JPSJ.81.074605 査読有
- Eric Heisler, Nobuhiko J. Suematsu, Akinori Awazu, and Hiraku Nishimori "Swarming of self-propelled camphor boats" *Phys. Rev. E* **85**, 055201(R) (2012). DOI: 10.1103/PhysRevE.85.055201 査読有
- Yui Matsuda, Nobuhiko J. Suematsu, and Satoshi Nakata "Photo-sensitive self-motion of a BQ disk" *Phys. Chem. Chem. Phys.* **14**, 5988-5991 (2012). DOI: 10.1021/jp210990a 査読有
- Yumihiko S. Ikura, Ryoichi Tenno, Hiroyuki Kitahata, Nobuhiko J. Suematsu, and Satoshi Nakata "Suppression and regeneration of camphor-driven Marangoni flow with the addition of sodium dodecyl sulfate" *J. Phys. Chem. B* **116**, 992-996 (2012). DOI: 10.1021/jp210990a 査読有

[学会発表] (計 2 件)

- 末松信彦、「一次元水路における樟脳船の相互作用」、日本化学会第 92 春季年会 (2012)、'12.03.25
- 末松信彦、「Self-Motion of Camphor Boat Depending on the Concentration of Sodium Dodecyl Sulfate」、第 63 回コロイドおよび界面化学討論会、'11.09.09

[その他]

ホームページ等

<http://home.mims.meiji.ac.jp/~suematsu/>

6. 研究組織

(1) 研究代表者

末松 信彦 (明治大学・先端数理科学研究科・講師)

研究者番号: 80542274

(2) 連携研究者

中田 聡 (広島大学)

研究者番号: 50217741

西森 拓 (広島大学)

研究者番号: 50237749

粟津 暁紀 (広島大学)

研究者番号 : 00448234