

令和元年6月3日現在

機関番号：32682

研究種目：基盤研究(C) (一般)

研究期間：2016～2018

課題番号：16K05486

研究課題名(和文) 自己駆動粒子の集団に現れるリズム現象

研究課題名(英文) Oscillatory Motion of Collective Self-Propelled Particles

研究代表者

末松 信彦 (Suematsu, Nobuhiko)

明治大学・総合数理学部・専任准教授

研究者番号：80542274

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 3,600,000円

研究成果の概要(和文)：しょうのう粒は代表的な自己駆動粒子であり、水面を自発的に運動することができ、このような系はこれまで多くの研究が進められ、環境の化学物質の濃度勾配に応答したり、環境に応じて運動モードを変えたりすることが知られている。今回、複雑な化学反応を導入することなく、水面の面積だけに応じて運動速度が振動するモード分岐現象に着目し、しょうのう粒1つの場合については、その詳細なメカニズムを明らかにすることに成功した。水相表面の平均しょうのう濃度と粒の運動がカップリングすることで連続運動から振動運動への分岐が起こることを明らかにした。また、実験的には粒の数を分岐パラメータとした場合の相図も明らかにした。

研究成果の学術的意義や社会的意義

自己駆動粒子は、人間による遠隔操作や細かな命令システムを必要としないシンプルな運動システムである。そのような自己駆動粒子の運動モードの多様化は、生命に見られる自律性の起源に迫る学理的な意義や、ソフトロボットのような工学的な応用など、幅広い分野に影響を与える基礎的な研究である。今回、同じ機能を持つ運動素子(しょうのう粒)の数密度が変わるだけで、個々の運動モードが変化するという現象の機構を解明した。これは、周辺環境と運動素子との相互作用により生まれるモード変化であり、微生物に見られるクオラムセンシングの機構にも良く似ている現象であることが分かった。

研究成果の概要(英文)：Self-propelled particles is the object what spontaneously moves using chemical energy. A camphor disk is one of the self-propelled particle that slides on water. We previously observed mode bifurcation of camphor motion with change in the number of disks. However, its mechanism is under investigation. In this project, we approached this problem from both experimentally and mathematically. For simplify the system, the number of disk was fixed, and the area of water surface was sequentially varied. As the results, similar mode bifurcation was observed, i.e., continuous motion in large area, oscillatory motion in middle area, and stationary state in small area. This mode bifurcation for a single disk was successfully reproduced using mathematical model that was obtained with modified the typical model for camphor motion. Our mathematical approach indicated that oscillatory motion is appeared by instability of continuous motion.

研究分野：物理化学

キーワード：界面化学 非線形科学 自己駆動 分岐理論

様式 C-19、F-19-1、Z-19、CK-19（共通）

### 1. 研究開始当初の背景

アリの行列やイワシ玉、雁のV字飛行など、生き物の群れでは、個体同士の協同的な振る舞いによって単体では見られないような新たな機能を発現することがある [1]。このような集団に現れる秩序の形成機構や機能性を明らかにするために、生物集団の観察や数理モデルを用いた理論研究など、様々な角度から研究が進められてきている。フィールド研究では、画像解析技術の向上により、例えば鳥一羽一羽の位置情報を動画から抽出して個体間の相互作用を明らかにするなど、基礎データの収集・解析手法が発展してきている [2]。一方で、数理的な研究は、1995年に Tonerらが提唱した微生物の集団挙動の研究や、Vicsekにより提唱された単純な自走粒子の集団など、種々の数理モデルが考案され、数値計算や数理解析などが進められてきている。その結果、大きな揺らぎや疎密波、動的な相転移や不安定化による空間構造の発現など、様々な集団運動の普遍的な形成機構が明らかにされはじめている。

このような集団運動は生物に限った現象ではない。構成要素や運動機構が比較的単純な無生物系でも、個体間に適切な相互作用があれば集団運動が認められる。例えば、加振機の上で動くコマ [3] や自走する油中液滴 [4]、水面を動き回る固体粒など [5]、自発的に運動する素子（自己駆動粒子）を用いた集団運動の研究は多く進められている。このような無生物系は実験条件の制御が比較的容易なため、系統的に分岐現象を調べたり、個体間の相互作用を詳細に調べたりすることができる。そのため、数理モデルに組み込むべき本質的なファクターを明らかにしたり、理論の正当性を実験的に検証したりすることが可能になるという利点がある。さらに、無生物系の実験で新たな集団運動を発見し、その機構を明らかにすることは、より複雑な生物系で起きる現象を理解するための重要な知見となる。

応募者はこれまで、水面における固体粒の自律運動に関する研究を行い、界面拡散や化学反応を介して、単体の運動特性（運動モードや運動速度）を制御してきた。さらに、その知見を活かし、一次元水路における樟脳船（樟脳の固体粒をプラスチック船に接着したもの）の集団運動において、個体数密度に依存した相転移やクラスター化、疎密波の伝搬を確認している [6]。この研究では、単体の樟脳船の数理モデルを多体系に拡張することで集団運動の機構を説明することに成功している。

さらに、広い水面に樟脳粒を浮かべると、ある数を境に休止と運動を繰り返す現象（間欠運動）が現れることを発見している（図1） [7]。これは、時間構造を持たない運動素子を用いているにもかかわらず、集団になるとリズム現象を生み出すという、新しい集団運動である。研究開始当初、この興味深い現象の機構は明らかにされておらず、説明可能な仮説も提唱されていない。

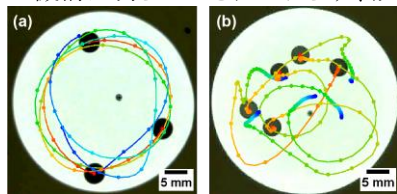


図1. しょうのう粒の運動の軌跡。(a) 連続運動。  
(b) 間欠運動。

### 2. 研究の目的

本研究では、樟脳粒の集団に現れるリズム現象の発現機構を実験的・理論的に明らかにするとともに、その機構の普遍性を検証することを目的とする。研究開始当初にはしょうのう粒の数が変数として用いた実験結果を得ていたが、離散的な分岐パラメータであるという欠点があった。そこで、この現象が数密度に起因して起こる分岐現象であることを仮定して、水相の大きさという連続的な変数を分岐パラメータとして、間欠運動を生み出すための必要条件を明らかにすることを目的とした。さらに、それらの結果をもとにして、数理モデルを構築し、解析することで、間欠運動が現れる機構を説明する新たな理論を構築する。

### 3. 研究の方法

しょうのう粒は、寒天ゲルに樟脳を含侵させることで作成した。寒天 (5w %) のシート (厚さ: 0.5 mm) を作成し、メタノールに1晩漬けて、ゲル内の水をメタノールで置換した。このメタノール置換した寒天シートを樟脳メタノール溶液 (1.1 g/mL = 0.5 M) に一晩以上漬けた。実験の直前にシートを溶液から取り出し、超純水で余分な溶液を洗い流した後、大気中でメタノールを蒸発させて、樟脳を析出させた。これを皮ポンチ (直径  $\phi$ : 1~10 mm) で円形にくり抜いて、樟脳粒とした。

水相は、120 mm × 120 mm × 30 mm のプラスチック容器に超純水 135 mL を注いで、その水面に光学系の絞りを置くことで用意した。この絞りは、直径を 50 mm から 10 mm (表面積は 1940 mm<sup>2</sup> から 78.5 mm<sup>2</sup>) まで変えることができる。この絞りと回転マニピュレータをつなぐことで、一定速度で水相の表面積を変えられるようにセットアップした。

水相を最大に開放し (直径: 50 mm、表面積: 1940 mm<sup>2</sup>)、そこに直径  $\phi$  (1~10 mm) のしょうのう粒を1つ浮かべた。30秒間運動させた後、210秒かけて水相の表面積を直径 10 mm まで絞った。このとき、水相の直径は 0.19 mm s<sup>-1</sup> の速さで減少させた。その後、30秒間、運動を観察した後、最大の表面積まで数秒で広げて、粒そのものの運動能力が時間経過で変化していないかを確認した。これを、粒の直径を変えて、繰り返し実験を行い、樟脳粒の運動が転移する面積を調べた。

樟脳粒の運動は、水相を下から LED 平面ライトで照らして、上からデジタルビデオカメラ (ソニー、30 fps) で撮影した。動画データをコンピュータ上で、画像解析ソフト (ImageJ) を用いて解析した。画像ノイズのために運動速度は0にはならないため、便宜的に 5 mm s<sup>-1</sup> 以下の時に粒は停止しているとした。

#### 4. 研究成果

##### ① 実験結果

直径 4 mm のしょうのう粒を、面積の異なる水相に浮かべてその挙動を確認したところ、連続運動と間欠運動が確認された(図 2)。水相の表面積が十分に大きい場合、しょうのう粒は一定の速度で動き続けた。このとき、しょうのう粒は境界から一定の距離だけ離れた位置を円形に運動し続けた。これに対して、水相が臨界値よりも小さい場合、樟脳粒は停止と運動を繰り返す振動運動を示した。このときの運動の軌跡を見ると、樟脳粒は壁にぶつかることなく運動を自発的に止めていることが分かる。

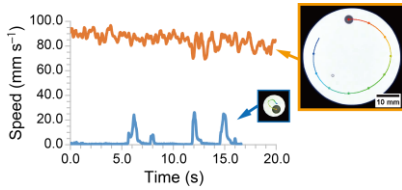


図2. しょうのう粒の速さのプロファイル。直径 4 mm のしょうのう粒を1個、水相に浮かべた結果である。挿入図はそれぞれのプロファイルを示す粒の運動の軌跡を示している。

運動が分岐する水相の表面積を明らかにするために、表面積を連続的に変化させて、しょうのう粒の運動を観察した。その結果、小さな樟脳粒を用いた場合 ( $\phi = 1, 2 \text{ mm}$ )、水相の表面積を小さくするに従い、粒の速度は単調に減少し、やがて停止した。すなわち、連続運動(U)から停止(S)へのモード転移が観測された。一方で、比較的大きな粒を用いた場合 ( $\phi = 3, 4, 5, 6, 8, 10 \text{ mm}$ )、水相の表面積の低下に伴い、連続運動(U)から振動運動(O)への転移が認められ、その後、停止(S)が現れた(図3)。これらの運動モードの分岐点を、以下のように定義した。まず、初期条件では水相の表面積が大きいため、粒は連続運動を示し、その速さは有限の値を持っているとする。水相の表面積の低下に伴って速さが低下し、臨界値 ( $5 \text{ mm s}^{-1}$ ) を初めて下回ったときの表面積を、連続運動から停止または振動への分岐点とした。このとき、実験終了まで停止状態が続いた場合には連続から停止に転移したとし、実験終了までの間に一度でも速い運動が現れた時には連続から振動運動に転移したとした。続いて、振動運動から停止への分岐点については、実験中における最後の加速運動が起きた時の表面積と定義した。ただし、振動運動の休止状態と停止とを区別することはできないため、この分岐点は過大評価(実際よりも大きい表面積になっている)可能性を含んでいる。したがって、同じ条件で複数回実験したうちの、最も小さい値を分岐点とした。こうして得られた分岐点を、表面積(A)と粒の直径( $\phi$ )に対してプロットすることで、運動モードの分岐図を作成した(図4)。前述の通り、小さい粒では連続運動から停止への分岐が、大きい粒では連続→振動→停止のように2回の分岐が認められた。

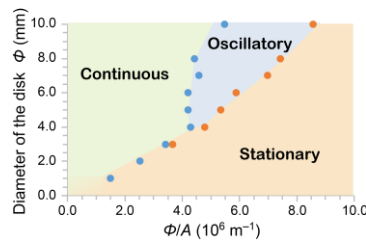
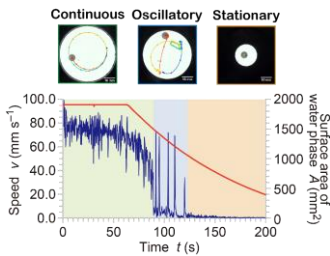


図3. (左図) 水相の大きさを連続的に小さくしたときの運動の軌跡と速度プロファイル。

図4. (右図) 粒の直径と水相サイズの逆数を軸にした、運動モードの相図

##### ② 数理モデルの構築

しょうのう粒の自発的な運動の機構は、これまでに現象論的にも数理的にも説明されており、数理モデルもすでに確立されている [8]。一般的には、しょうのう粒の運動方程式と、水面におけるしょうのう濃度を記述した反応拡散方程式の連立微分方程式で説明されている。しかし、今回の現象はそれだけでは説明が困難である。本論文では、表面の直下、バルクの最表面におけるしょうのう濃度の分布を効力することで、振動運動が現れる仕組みについて説明できることを明らかにした。

水相表面( $u$ ) およびバルク層最表面( $w$ ) におけるしょうのう濃度のダイナミクスを表現するために、(i) 粒から水面への供給、(ii) 表面拡散、(iii) 昇華・溶解の3つを考える。ただし、粒からの樟脳分子の供給は水相表面のみで行われると仮定する。すると、各相の濃度( $u, w$ )のダイナミクスは、次の2つの微分方程式で表すことができる。

$$\frac{\partial u}{\partial t} = D_u \frac{\partial^2 u}{\partial x^2} - (k_1 + k_2)u + S(u(x_c, v)) \delta(x - x_c) + k_3 w$$

$$\frac{\partial w}{\partial t} = D_w \frac{\partial^2 w}{\partial x^2} - (k_3 + k_4)w + k_2 u$$

ここで、 $D_u, D_w$  は拡散係数、 $k_1$  はしょうのう分子の昇華速度、 $k_2$  は水相表面からバルク層への溶解速度、 $k_3$  はバルク層から水相表面への吸着速度、 $k_4$  はバルク最表面相からさらに深いバルク層への溶解速度、 $S(v; u)$  はしょうのう粒から水相表面への分子の供給をそれぞれ意味している。バルク最表面相における拡散は水相表面に比べて遅いと考えられるが、しょうのう粒(しょうのう分子の供給源)が領域内を移動していることを踏まえて  $w$  は空間均一であると仮定する。一方で、水相表面のしょうのう濃度  $u$  は緩和速度が速いため、しょうのう粒の移動速度  $v$  と同じ速さで移動する移動座標系において、濃度分布は常に定常状態にあると仮定する。また、しょうのう粒から水相表面への分子供給速度  $S(v;$



$u$  は、粒から表面への供給  $S_0$  と水相表面から粒への吸着  $k \cdot u$  の差となる。これらを踏まえると、移動座標系における  $u$  の濃度プロファイルおよび供給速度を解析的に求めることができる。これらの解析解は、粒が速く動くと ( $v$  が大きくなると)、 $u(0)$  が低下するために、実効的な供給速度が速くなることを示していた。

続いて  $w$  の偏微分方程式を空間積分して、表面積で割ることで、 $w$  の空間平均の常微分方程式を導くことができる。

さらに、しょうのう粒に働く駆動力は表面濃度分布をもとに計算できるので、しょうのう粒の運動方程式を、表面濃度の関数として書くことができる。これは粒の運動速度  $v$  の常微分方程式となる。こうして、 $v$  と  $w$  の2変数連立微分方程式を得た。これらの特性を明らかにするために、こ無次元化すると、最終的に次のような連立微分方程式が得られる。

$$\begin{cases} \frac{dW}{dT} = -W + \Omega(1 - W) \frac{\sqrt{V^2+1}}{\kappa + \sqrt{V^2+1}} \\ \tau \frac{dV}{dT} = -V + \frac{q\sqrt{V^2+1}}{(\kappa + \sqrt{V^2+1})^2} V(1 - W)^2 \end{cases}$$

実際のしょうのう粒の運動における物理パラメータは既に様々な実験で評価されている[9]。これらの値を用いると、無次元化パラメータを求めることができる。このパラメータ範囲で2変数連立微分方程式数値的に解いた結果その結果、 $\Omega$  の値が大きくなるにしたがって、連続運動、振動運動、停止が認められた(図5)。水相表面積 ( $A$ ) は、無次元化パラメータの  $\Omega$  にのみ入っているため、これらの結果は、水相の表面積を変えた時にみられる運動モードの分岐に対応している。さらに、 $q$  と  $\Omega$  を分岐パラメータとして相図を解析的に求めよう。この2変数の安定性を解析した。この方程式の固定点を求めるとき、 $v = 0$  の解は常に存在する。つまり、停止解は常に存在している。そこで、定常的な運動に対応する解の存在およびその安定性について調べた。0でない定常解が安定に存在するとき、それは連続運動を意味する。また、解が存在するが不安定である場合、振動運動が起きると考えられる。そして、0でない解が存在しないとき停止状態になる。

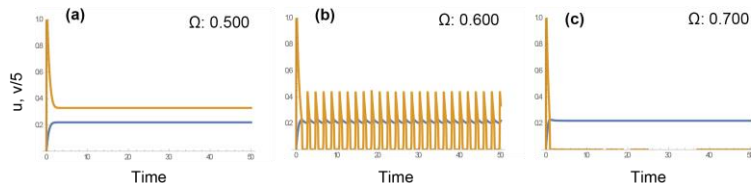


図5. 数値計算結果。分岐パラメータ $\Omega$ に依存して、連続運動、振動運動、停止がみられた。

これらの解を分類するために、平衡点を求めて、それぞれの安定性を解析的に調べた。その結果、平衡解が唯一  $v = 0$  のみで、それが安定である領域(停止)、平衡解が  $v = 0$  と  $v \neq 0$  の2つあり、どちらも不安定である領域(振動運動)、そして、平衡解が  $v = 0$  と  $v \neq 0$  の2つあり、前者が不安定で後者が安定である領域(連続運動)の3種類に分類された。これらの領域を、分岐パラメータ  $\Omega$  と  $q$  に対して分類した結果が図12の相図に示されている。 $\Omega$  が十分に大きいとき、系は  $v = 0$  の平衡解を唯一もち、安定であるため、停止に対応する。 $\Omega$  が大きくなると pitchfork 分岐を起こして  $v = 0$  の平衡解が不安定になり、同時に  $v \neq 0$  の安定な新たな平衡解が現れる。これは連続運動に対応する。しかし、この領域はとても狭く、さらに  $\Omega$  が大きくなると  $v \neq 0$  の平衡解が不安定化する。リミットサイクルの存在は確認していないが、この領域が実験の振動運動に対応していると考えられる。実際に数値計算では、この領域で振動が認められている(図5)。さらに  $\Omega$  を大きくすると、再び  $v \neq 0$  の平衡解は安定化して連続運動の領域となる。この相図は実験で得られた相図(図4)とよく対応しており、実験結果をうまく説明している。

以上の結果を踏まえると、振動運動の起こる仕組みは次のように理解することができる(図6)。まず初期状態では、水相のしょうのう濃度は低く、粒は運動する。このとき、 $v$  が大きいので、しょうのう分子の水面への供給速度が高くなる。場の面積が少ないために、しょうのうの平均濃度が時間とともに高くなり、やがて粒は駆動力を失い、停止する。すると、しょうのう分子の供給速度が低くなるために昇華の効果が相対的に高くなり、場のしょうのう濃度は低下する。ある臨界値よりも平均濃度が低くなると、粒が再び駆動力を得て、運動を開始する。これを繰り返すために、振動運動が現れると考えられる。

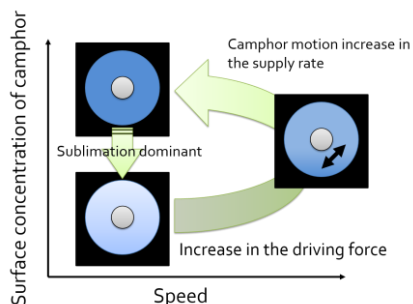


図6. しょうのう粒の間欠運動の概念図。

<引用文献>

- ① Vicsek *et al.*, *Phys. Rep.* 2012.
- ② Ballerini *et al.*, *Proc. Natl. Acad. Sci. USA* 2008.
- ③ Weber *et al.*, *Phys. Rev. Lett.* 2013.
- ④ Thutupalli *et al.*, *New J. Phys.* 2011.
- ⑤ Nakata *et al.*, *Chaos* 2015.
- ⑥ Suematsu *et al.*, *Phys. Rev. E* 2010.
- ⑦ Suematsu *et al.*, *J. Phys. Soc. Jpn.* 2015.
- ⑧ Nagayama *et al.*, *Physica D* 2004.
- ⑨ Suematsu *et al.*, *Langmuir* 2014.

5. 主な発表論文等

[雑誌論文](計 4 件)

- ① Hiraku Nishimori, **Nobuhiko J. Suematsu**, Satoshi Nakata  
*Collective Behavior of Camphor Floats Migrating on the Water Surface*  
*J. Phys. Soc. Jpn.* **86**, 101012 (2017).
- ② Ryoichi Tenno, You Gunjima, Miyu Yoshii, Hiroyuki Kitahata, Jerzy Gorecki, **Nobuhiko J. Suematsu**, Satoshi Nakata  
*Period of Oscillatory Motion of a Camphor Boat Determined by the Dissolution and Diffusion of Camphor Molecules*  
*J. Phys. Chem. B* **122**, 2610-2615 (2018).
- ③ **N. J. Suematsu** and Satoshi Nakata  
*Evolution of Self-Propelled Objects: From the Viewpoint of Nonlinear Science*  
*Chemistry - A European Journal* **24**, 6308-6324 (2018)
- ④ Yuki Koyano, **Nobuhiko J. Suematsu**, and Hiroyuki Kitahata  
*Rotational motion of a camphor disk in a circular region*  
*Phys. Rev. E* **99**, 022211 (2019).

[学会発表](計 12 件)

- ① 現象数理学研究集会2018@宮崎大学('18.11.30 ~ 12. 2)  
「自己駆動粒子のクオラムセンシング」
- ② 第12回 自己組織化討論会@清里セミナーハウス ('18.10.13-14)  
「しょうのう粒の集団振動運動」
- ③ 第69回 コロイドおよび界面化学討論会 ('18.09.18-20)  
「非線形科学からの自己駆動物体」
- ④ 物理学会 2018年秋季大会(物性) ('18.09.10-12)  
「数密度の増加に誘起されるしょうのう粒の振動運動」
- ⑤ 広島大学-明治大学-龍谷大学合宿 ('18.08.30-31)  
「自己駆動粒子の現象数理学」
- ⑥ 札幌非線形現象研究会2018 ('18.08.27-29)  
「場を介して相互作用する自己駆動粒子の集団振動運動」
- ⑦ 西日本非線形研究会@広島大学 ('18.06.23)  
「しょうのう粒の集団に現れる振動現象のメカニズム解明」
- ⑧ Active Matter 2018 @ Fukui Institute for Fundamental Chemistry, Kyoto Univ.  
( '18.01.19-20)  
"Self-Propelled Objects from Viewpoint of Nonlinear Science"
- ⑨ 第11回 自己組織化討論会 ('17.06.17-18)  
「場の大きさに依存した樟脳粒の振動運動」
- ⑩ MIMS 現象数理学拠点 共同研究集会「比較動物学と現象数理学から考える『海の霊長類』の知の表現法」@明治大学('16.12.15-16)  
アクティブマターに見られる時空間パターン
- ⑪ RIMS 研究集会「集団ダイナミクスに現れる時空間パターンの数理」('16.10.12-14)  
樟脳粒の集団に現れる時空間パターン
- ⑫ 日本物理学会 秋季大会@金沢大学 ('16.10.13-16)  
自己駆動粒子の集団に現れる運動モード転移

〔図書〕(計 1 件)

**N. J. Suematsu**

"Collective Behaviour of Self-propelled Objects on a Water Surface"

*Self-organized Motion : Physicochemical Design based on Nonlinear Dynamics*

Eds. S. Nakata, V. Pimienta, I. Lagzi, H. Kitahata, N. J. Suematsu, Chap. 9, 204-225 (2018)

## 6. 研究組織

### (1)研究分担者

研究分担者氏名:西森 拓

ローマ字氏名:Hiraku Nishimori

所属研究機関名:広島大学

部局名:大学院理学研究科

職名:教授

研究者番号(8桁): 50237749

研究分担者氏名:池田 幸太

ローマ字氏名:Kota Ikeda

所属研究機関名:明治大学

部局名:総合数理学部

職名:専任准教授

研究者番号(8桁): 50553369

研究分担者氏名:井倉 S. 弓彦

ローマ字氏名:Yumihiko S. Ikura

所属研究機関名:明治大学

部局名:総合数理学部

職名:特任講師

研究者番号(8桁): 60612554

### (2)研究協力者

研究協力者氏名:中田 聡

ローマ字氏名:Satoshi Nakata

研究協力者氏名:松田 唯

ローマ字氏名:Yui Matsuda

※科研費による研究は、研究者の自覚と責任において実施するものです。そのため、研究の実施や研究成果の公表等については、国の要請等に基づくものではなく、その研究成果に関する見解や責任は、研究者個人に帰属されます。