

令和 6 年 6 月 26 日現在

機関番号：34310

研究種目：基盤研究(B)（一般）

研究期間：2020～2023

課題番号：20H01878

研究課題名（和文）化学反応によって誘起される自走性触媒粒子の集団運動に関する研究

研究課題名（英文）Collective motions of catalytic particles driven by chemical reactions

研究代表者

山本 大吾（Yamamoto, Daigo）

同志社大学・理工学部・准教授

研究者番号：90631911

交付決定額（研究期間全体）：（直接経費） 13,200,000円

研究成果の概要（和文）：本研究室では、これまでに、生物よりも単純な構造を有する単成分のPt触媒粒子が、エタノールやアセトアルデヒドなどの有機燃料を含む水溶液中において、粒子形状に依存した指向的な運動（並進、自転、公転運動）を行うことを見出している。本研究課題では、このPt粒子を対象に、粒子個数濃度が高い条件下でPt粒子の集団運動を観察した。その結果、有機燃料の種類・濃度によってPt粒子の集団運動のパターンが変化することを見出した。さらに、Pt粒子の集団運動を利用して歯車状粒子の自転仕事を取り出し、そのエネルギー変換効率を概算した。

研究成果の学術的意義や社会的意義

エタノールなどの有機燃料を含む水溶液中においてPt触媒粒子が集団運動を行なうことを確認し、さらに歯車状粒子の自転仕事を取り出すことができた。これより、生物系にみられる集団運動による仕事取り出しの挙動を人工的な化学システムにより再現することができたといえる。また、Pt触媒粒子の集団運動におけるエネルギー変換効率を概算したが、生体システムと比較すると著しく小さな値であったが、本研究によって、非生物の微小アクティブマターから仕事を取り出すことを実験的に示せたことから、生物系でのモデルの一例となることが期待できる。

研究成果の概要（英文）：We have previously found that Pt catalyst particles, which have a simpler structure than living organisms, exhibit various types of regulated motions (e.g. translation, rotation, and apin) in aqueous solutions containing organic fuels such as ethanol and acetaldehyde, depending on their morphologies. In this research project, we observed the collective motion of Pt particles under conditions of high particle number concentration. As a result, we found that the pattern of collective motion of Pt particles are different in the types of organic fuels. Furthermore, we used the collective motion of Pt particles to extract the mechanical work of a gear-shaped particle and estimated the energy conversion efficiency.

研究分野：コロイド・界面化学

キーワード：集団運動 触媒粒子 エネルギー変換 アクティブマター 有機燃料 非平衡現象

1. 研究開始当初の背景

「生物的運動」は等温系において化学エネルギーを運動エネルギーに直接変換することによってなされるが、近年これを人工系で再現しようという研究が行われている。先駆けは Paxton らによって考案された白金/金複合ナノロッドであり(Paxton et al, J. Am. Chem. Soc., 2004)、白金と金の複合ロッドを過酸化水素水中に浸漬することで、過酸化水素の分解反応の非対称性によって自発運動が発生することが報告されている。Paxton らの考案した複合ロッドを皮切りに多数の触媒型アクティブマターがここ数十年で開発されてきた。このような既存の触媒型アクティブマターは、生命系で見られる等温系でのエネルギー変換機構を研究するためのモデルとして見なされることも多く、揺らぎが非線形的に発達し巨視的な時空間秩序を発生するに至る物理的・化学的過程の明晰な解明を可能とし、生物的なエネルギー変換機構を理解するために重要な役割を果たすと考えられる。

しかしながら、既往の全ての触媒型アクティブマターにおいて共通して言えることは複合粒子を用いた複雑なシステムとなっていることである。そのため、システムが複雑化していくと、操作因子が煩雑に絡み合い、運動発現に最低限必要な物理化学的因子の特定が困難となる恐れがある。それではそもそも、「生物的運動」が可能なアクティブマターは構造が複雑な物質を用いなければ創出できないのであろうか？また、「生物的運動」発現のために系が備えるべき最低限必要な物理化学的因子とは何か？本研究課題はこのような「生命」に関する問いに対して、可能な限りシンプルな物質のみを用いた単純な化学システムを構築し、“生命(生物)”と“物質”の境界について追究するものである。

2. 研究の目的

本研究課題では、「生物的運動」の中でも「集団運動」に主眼を置く。集団運動は生物界において普遍的に見られる運動形態の一つとして挙げられる。ムクドリや群飛やいわしの群泳などはその一例である。一方で、これらの高等生物ほど複雑ではない構造をもつバクテリアやミドリムシなどのマイクロな単細胞生物でさえ、複数個体が密集した環境下ではコロニーとして知られる特徴的な時空間的幾何学パターンを形成することが知られている。このことを考慮すると、集団運動を発現するために必要な要素は、それほど複雑ではないものだと考えられる。そこで、可能な限り構造のシンプルなアクティブマターを用いて多様な集団運動を発現させることで、集団挙動の発現のために系が備えるべき物理化学的因子および普遍的特徴を理解することを本研究課題の目的とした。

また、近年、生物の集団運動から効率的に仕事を取り出す研究がなされている。例えば、バクテリアの集団運動によって自らの 100 倍以上の大きさの歯車を回転させるといった、微生物の集団運動を利用して仕事を取り出す研究が報告されている(R. Leonardo et al., PNAS, 2010)。このようなエネルギー変換技術は極めて興味深い。微生物の場合には増殖・死滅などによる集団環境の影響を考慮する必要があり、持続的な仕事を取り出しあるいは仕事量の制御は極めて難しい。無生物のアクティブマターを使用して、化学エネルギー⇒運動エネルギーへの変換、更には集団運動⇒マクロな仕事を取り出しが可能になれば、生物が日々行っているエネルギー変換機構の理解につながるだけでなく、新しいエネルギー変換技術としての応用が期待される。そこで、これと同様のエネルギー変換技術の創成を目指し、革新的なエネルギー変換技術を持つシステムのプロトタイプを作製することを試みた。

3. 研究の方法

本研究室では、これまでに、生物よりも単純な構造を有する単成分の Pt 触媒粒子が、エタノールやアセトアルデヒドなどの有機燃料を含む水溶液中において、Pt 粒子数濃度が低いサスペンションを用いた場合には、粒子形状に依存した指向的な運動(並進、自転、公転運動)を行うことを見出している(D. Yamamoto et al., Nanoscale, 2015)。本研究では、この Pt 粒子を対象に、粒子個数濃度が高い条件下で Pt 粒子の集団運動を観察した。本研究課題では以下の 4 つのステップに分けて研究を進めた。

- I 様々な操作条件が粒子の集団運動に与える影響に関する実験的検討
- II 制限環境や他の反応系を組み合わせた高度な自己集団運動システムの構築
- III 人工系での集団運動を利用したマクロな仕事への新規エネルギー変換技術の創成
- IV 集団運動発現のメカニズム解明に向けた理論的検討

本研究課題によって得られた研究成果の中で、本項で紹介したい研究内容は以下の 2 項目である。

- (1) 様々な有機燃料の種類・濃度を変化させ、Pt 粒子の集団運動に与える影響を調べた。
- (2) エタノールを含んだ Pt 粒子サスペンション内に、Pt 粒子より数十～百倍ほど粒径が大きい不活性の歯車状粒子を配置し、それらの物体が Pt 粒子の集団運動によってどのような挙動をとるかを検討した。

4. 研究成果

(1) 有機燃料の種類による Pt 粒子の集団運動のパターン変化

0.34 M (2 vol%)のエタノール水溶液中における Pt 粒子の集団運動の様子を Fig. 1a に示す。エタノール水溶液中でははじめは均一に分散していた Pt 粒子が次第にクラスターを形成した。そして、クラスターが並進しながら分裂と合一を繰り返し行う様子が観察された。十分に時間が経過すると、粒子は再び均一に分散した状態になった。同様に 0.34 M (2 vol%)のアセトアルデヒドを用いた実験結果を Fig. 1b に示す。Pt 粒子がクラスターを形成していくが、並進する様子は見られず、その場で放射状に解散し、その後、解散した粒子が再び同じ位置にクラスターを形成する様子が見られた。その際、全てのクラスターが同じタイミングで形成・解散を繰り返すといった同期現象が観察された。このような挙動は、自然界における蛍の集団の同時点滅に類似しており、同期現象のモデル系としても有用であると考えられる。

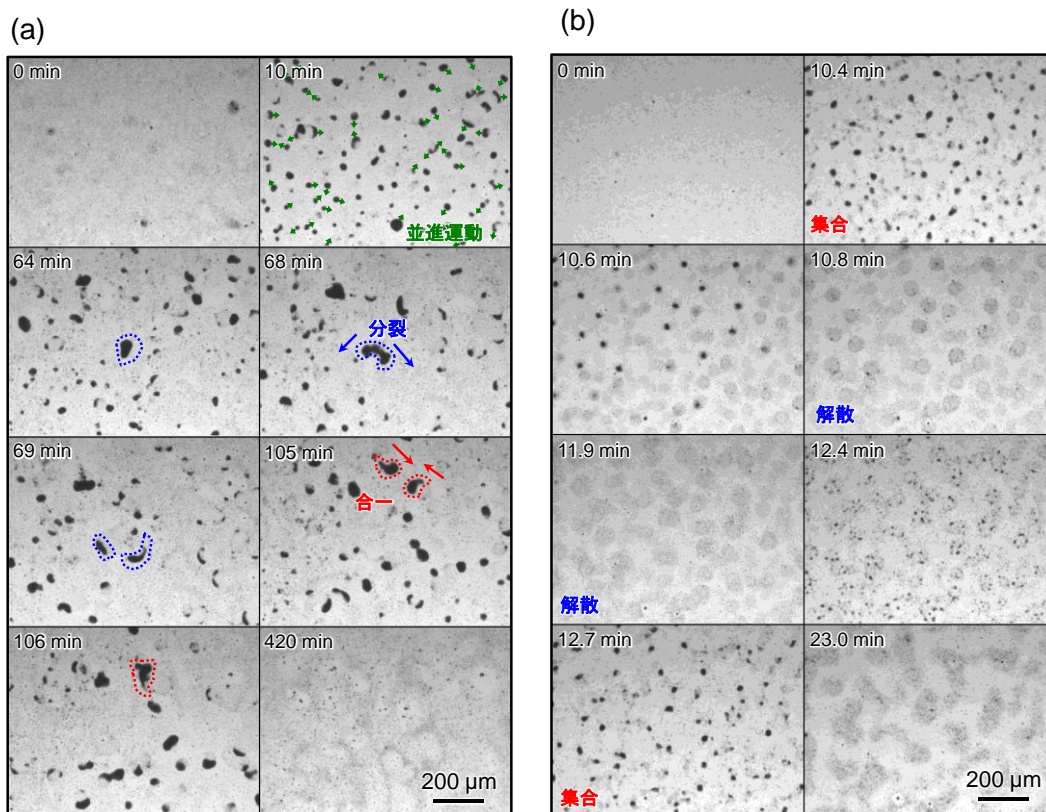


Fig. 1 有機燃料の種類による Pt 粒子の集団運動のパターン

(a)エタノール、(b) アセトアルデヒド

(2) 集団運動からの仕事の取り出し

0.34 M (2 vol%)のエタノール水溶液中における Pt 粒子の集団運動の様子、およびそれによって誘起される歯車状粒子の挙動を Fig. 2 に示す。なお、図中の白丸は歯車状粒子の一つの頂点を追跡したものである。図に示すように、初めは分散していた Pt 粒子が次第にクラスターを形成し、クラスターに押される形で歯車状粒子が自転運動を行った。ただし、この実験結果は同一の実験条件において複数回実験を行ったうち、良好に自転した場合の結果の一例である。実際、実験ごとに Pt 粒子の集団運動のパターンが異なるため、歯車状粒子の自転運動の運動

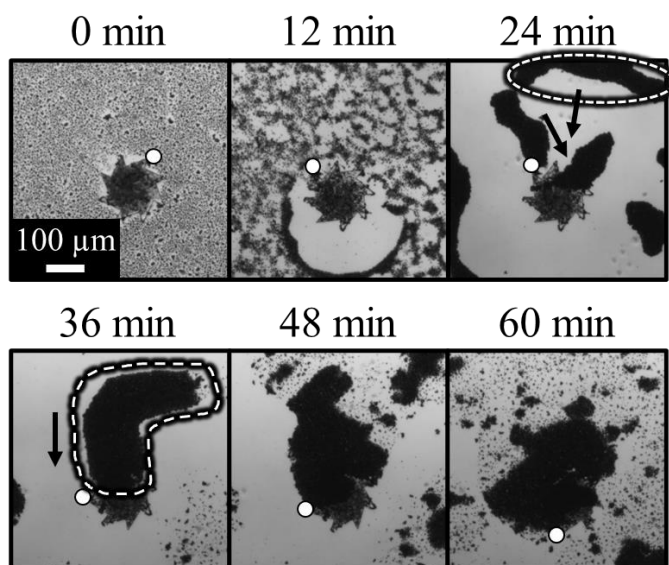


Fig. 2 Pt 粒子の集団運動による歯車状粒子の自転仕事

方向および角速度に違いが生じたり、そもそも自転運動が発現しなかったりした場合もあった。Fig. 3 に示すように、過程①におけるエネルギー変換効率 E_1 (Pt 粒子の並進仕事率/Pt 粒子の化学反応による入力仕事率)、過程②におけるエネルギー変換効率 E_2 (歯車状粒子の自転仕事率/歯車状粒子の運動に寄与する Pt 粒子の並進仕事率)、および、総括のエネルギー変換効率 E_{Total} (歯車状粒子の自転仕事率/歯車状粒子の運動に寄与する Pt 粒子の化学反応による入力仕事率) を概算した。化学エネルギーから運動エネルギーへの変換効率 E_1 は $\sim 10^{-10}$ 、運動エネルギーから仕事の取り出しの効率 E_2 は $\sim 10^{-3}$ 、総括のエネルギー変換効率 E_{Total} は $\sim 10^{-13}$ となった。これは、生体システムと比較して著しく小さい値である。しかしながら、本研究によって、非生物の微小アクティブマターから仕事を取り出すことを実験的に示せたことから、生物系でのモデルの一例となることが期待できる。

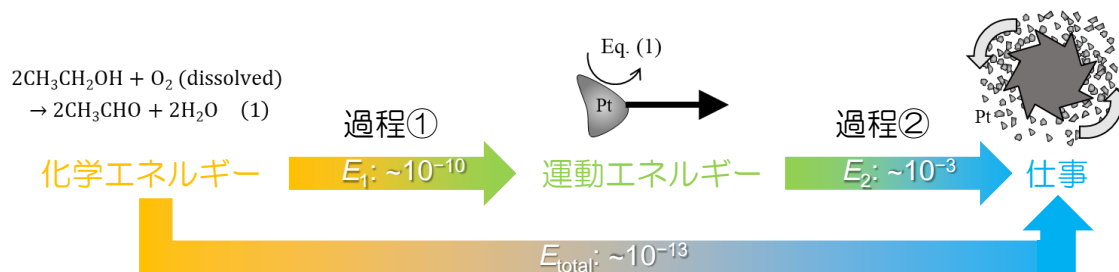


Fig. 3 Pt 粒子の集団運動における化学エネルギーから機械的仕事へのエネルギー変換

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計3件（うち査読付論文 3件/うち国際共著 0件/うちオープンアクセス 3件）

1. 著者名 村上 雅樹、大林 健人、岡本 泰直、塩井 章久、山本 大吾	4. 巻 59
2. 論文標題 ゲル中での一方向拡散によるさまざまな金属ナノ粒子合成機構の解明	5. 発行年 2022年
3. 雑誌名 粉体工学会誌	6. 最初と最後の頁 108-114
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.4164/sptj.59.108	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 Daigo Yamamoto, Tsuyoshi Takada, Yuto Ito, Masaki Kubouchi, Yasunao Okamoto, Erika Okita, Kenichi Yoshikawa, Akihisa Shioi	4. 巻 698
2. 論文標題 Collective motion of catalytic particles driven by abiotic aerobic metabolism	5. 発行年 2024年
3. 雑誌名 Colloids and Surfaces A: Physicochemical and Engineering Aspects	6. 最初と最後の頁 134580
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1016/j.colsurfa.2024.134580	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 大城 優作、松田 直樹、平野 研、塩井 章久、山本 大吾	4. 巻 61
2. 論文標題 化学反応によるPt触媒粒子の集団運動からの仕事の取り出し	5. 発行年 2024年
3. 雑誌名 粉体工学会誌	6. 最初と最後の頁 Accepted
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） なし	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 -

〔学会発表〕 計11件（うち招待講演 4件/うち国際学会 1件）

1. 発表者名 Ayane Iwai, Masaki Murakami, Akihisa Shioi, Daigo Yamamoto
2. 発表標題 Comparison of Pt nanoparticle synthesis between unidirectional and counter diffusions in a gel
3. 学会等名 The 14th Japan-Korea Symposium on Materials and Interfaces, Hybrid Meeting（国際学会）
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 岩井綾音, 塩井章久, 山本大吾
2. 発表標題 ゲル中での対向拡散を用いた Pt ナノ粒子合成のメカニズム解明
3. 学会等名 2022年度粉体工学会秋期研究発表会
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 仕名野弘貴, 塩井章久, 山本大吾
2. 発表標題 化学反応により誘起される自走性触媒微粒子の集団運動におけるクラスターの形態制御
3. 学会等名 化学工学会岡山大会2022
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 山本大吾
2. 発表標題 界面現象を利用した非平衡化学システムの創発
3. 学会等名 宮原稔先生 追悼記念講演会 (招待講演)
4. 発表年 2023年

1. 発表者名 村上雅樹, 大林健人, 岡本泰直, 塩井章久, 山本大吾
2. 発表標題 一方拡散を用いた金属微粒子の形成機構の解明
3. 学会等名 2021年度粉体工学会 春期研究発表会
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 山本大吾
2. 発表標題 生物的現象を化学・工学の世界へ展開
3. 学会等名 同志社大学 理工会（理工学部同窓会）WEB講演会（招待講演）
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 松田直樹、岡本泰直、塩井章久、山本大吾
2. 発表標題 Pt粒子の集団運動によって発現する物質の能動輸送
3. 学会等名 化学工学会 関西支部大会 2021
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 村上雅樹、岡本泰直、塩井章久、山本大吾
2. 発表標題 拡散混合を用いた様々な金属ナノ粒子の合成機構の解明
3. 学会等名 化学工学会 関西支部大会 2021
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 山本大吾
2. 発表標題 反応溶液中の触媒粒子の自発運動
3. 学会等名 2021年度 第1回粒子積層技術分科会（招待講演）
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 山本大吾
2. 発表標題 化学反応によって誘起される自走性触媒粒子の集団運動
3. 学会等名 第5回ソフトマター工学分科会講演会（招待講演）
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 仕名野弘貴、岡本泰直、山本大吾、塩井章久
2. 発表標題 様々な有機燃料下における自走性微粒子の集団運動
3. 学会等名 第23回化学工学会学生発表会
4. 発表年 2021年

〔図書〕 計2件

1. 著者名 Daigo Yamamoto, Erika Okita-Nawa, Akihisa Shioi	4. 発行年 2022年
2. 出版社 World Scientific	5. 総ページ数 600
3. 書名 WSPC Book Series in Unconventional Computing: Vol. 2 Unconventional Computing, Arts, Philosophy (Chap. 31: 9 pages)	

1. 著者名 Akihisa Shioi, Daigo Yamamoto, Yasunao Okamoto	4. 発行年 2022年
2. 出版社 The Royal Society of Chemistry	5. 総ページ数 666
3. 書名 Chemoresponsive Materials: Smart Materials for Chemical and Biological Stimulation: Edition 2 (Chap. 15: 25 pages)	

〔産業財産権〕

〔その他〕

-

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
研究 分 担 者	塩井 章久 (Shioi Akihisa) (00154162)	同志社大学・理工学部・教授 (34310)	

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