

科学研究費助成事業（科学研究費補助金）研究成果報告書

平成25年 5月20日現在

機関番号：10101

研究種目：基盤研究（B）

研究期間：2009～2012

課題番号：21340023

研究課題名（和文） 化学反応を伴う粒子および液滴運動に対する数理解析

研究課題名（英文） Mathematical analysis of the droplet motion and the particle motion with the chemical reaction.

研究代表者

長山 雅晴（NAGAYAMA MASAHARU）

北海道大学・電子科学研究所・教授

研究者番号：20314289

研究成果の概要（和文）：実験グループとの共同で、自己駆動する粒子や液滴が化学反応と相互作用することによって見られる現象に対して数理モデリングとその数理解析によって、現象のメカニズムを解明する研究を行った。対象とする実験系は、中和反応を伴う粒子運動と錯体反応を伴う粒子運動であった。中和反応系では反応次数が振動機構の重要なパラメータであること、錯体反応系では反応によって生成される物質が重要な役割を担っていることを数理モデリングによって明らかにした。さらに、自発的に振動する自己駆動粒子に対してその機構を示唆するための数理モデリングを行い、振動現象のメカニズムを明らかにした。また、粒子形状に依存した運動として、楕円形状樟脳粒の運動について解析を行った。

研究成果の概要（英文）：Through collaborative research with experimental groups, the mathematical modeling and analysis of mechanisms for the self-propelled motion of droplets and particles under chemical reactions were investigated. The target experimental systems regard the motion of surfactant particles with stabilizing and destabilizing reactions driving their motions. By means of mathematical modeling, we clarified that the reaction order plays a central role in the oscillating phenomenon of the stabilizing system, and that the chemical product generated within the destabilizing system strongly influences the oscillation mechanism through chemical reaction. Moreover, by introducing a mathematical model for determining the mechanisms governing the motion of self-propelled grains, which oscillate spontaneously, we were able to explain the corresponding oscillation mechanism. Additionally, we analyzed the case where the particle's geometry, here taken to be an elliptically shaped camphor disk, influences its motion.

交付決定額

（金額単位：円）

	直接経費	間接経費	合計
2009年度	3,500,000	1,050,000	4,550,000
2010年度	4,000,000	1,200,000	5,200,000
2011年度	3,100,000	930,000	4,030,000
2012年度	2,600,000	780,000	3,380,000
年度			
総計	13,200,000	3,960,000	17,160,000

研究分野：数物科学

科研費の分科・細目：数学・数学一般（含確率論・統計数学）

キーワード：応用数学

1. 研究開始当初の背景

100年以上前に水面の表面張力変化によって駆動される樟脳粒子運動の実験がレイリー卿によって報告されて以来、表面張力に関する多くの研究がなされてきた。しかし、表面張力の動的変化の測定が困難であったため、1980年代前半まで表面張力の動的変化を利用した粒子や液滴の運動の解析はなされなかった。1980年代後半から次第に表面張力の動的変化によって生じる物理現象の研究が行われるようになった (P.-G.de Gennes ら著, 表面張力の物理学, 奥村剛訳, 吉岡). 例えば, 国外の研究では, U.Thiele 准教授(Loughborough Univ.)らがガラス基盤上の表面張力を非一様にすることによって生じる液滴運動を解析している (*Phys. Rev. Lett.* **93,027802(2004)**). 一方, 国内においては, 中田聡教授(広島大学, 研究分担者)らが, 化学エネルギーを機械エネルギーに変換することによって生じる運動という視点から, 水面上で自発的に運動する粒子の実験を行っている。中田氏は中和反応を伴う界面活性粒子が振動運動する実験(水溶液中のリン酸濃度に依存して, 等速運動から振動運動へと変化する)を報告した。さらに, 中田氏らは錯体反応を伴う界面活性粒子の振動運動を調べた。その結果, 錯体反応系では中和反応系の研究結果と異なり, 等速運動→振動運動→等速運動と変化することがわかった。この結果から, 錯体反応系における粒子の運動機構は中和反応系の運動機構と異なることが示唆された。以上のことから, 中和反応や錯体反応を伴う振動運動の機構を明らかにするために数理解析とその解析を行う必要性が生じた。これらのことから振動運動を起こす機構の数学的構造を解明することも重要であることを痛感した。

液滴の実験に関しては, 最近, 永井健氏(東京大学)らがガラス面に固定したペンタノール液滴の界面不安定化とそれに伴う回転波出現の可能性を報告した。また, 住野豊氏(愛知教育大学, 研究分担者)と北畑裕之氏(千葉大学, 研究分担者)らは, 陽イオン性界面活性剤を溶解した水溶液上に陰イオン性界面活性剤を溶解した油滴をのせたとき, その油滴が自発的に変形する現象を報告した。この油滴は, 界面活性作用を持っているが, ペンタノール液滴とは異なり併進運動しないことが示されている。また, 油滴界面が不安定化を起こすことで小さい油滴に分裂し, 分裂した小さな油滴は融合

することなく分裂した状態を保つことが報告されている。彼らはペンタノール液滴運動と油滴運動の違いが「水溶液と油滴の接触面がゲル化することによる油滴構造の変化」であると予測している。以上の実験から得られた予測(固定された液滴界面の不安定化と回転波の出現, 油滴表面の構造変化による界面不安定化)が正しいのか, 数理解析モデルを通じた数理解析と実験の融合研究によって明らかにしていく必要性が生じた。

2. 研究の目的

上記の学術的背景から, 中和反応を伴う粒子運動, 錯体反応を伴う粒子運動, 固定液滴の不安定化, ゲル化を伴う油滴の不安定化の問題を対象として理論と実験の融合研究を行う。数理解析モデル化, 数理解析モデルに対する計算機支援による数理解析(数値計算, 数学解析), 数値計算に必要な計算手法の開発や数値解析, 数理解析結果の実験検証, 実験結果の数理へのフィードバックという数理と実験を融合した研究手法により振動する自走粒子, 自走液滴, 液滴界面の不安定性について, その機構を数理と実験の両面から解明する。

3. 研究の方法

化学反応を伴う粒子運動や液滴運動の機構を解明するために, 数理解析グループと実験解析グループの研究体制をとった。研究課題においては, 5つの課題(中和反応を伴う粒子運動の解析, 錯体反応を伴う粒子運動の解析, 自励振動する粒子運動の解析, 楕円樟脳運動の解析, 液滴運動の解析)に対して数理解析モデル化, 数理解析モデルに対する数理解析(計算機援用解析と数学解析), 数理解析結果の実験グループへのフィードバック, 実験グループによる検証実験, 実験解析結果の数理グループへのフィードバックという数理解析と実験解析の相互補完による融合研究の方法により研究を推進した。融合研究で得られた数理解析モデルに対して, 数理解析グループは, 数値計算法の開発, 解析を行う。

4. 研究成果

(1) 中和反応を伴う粒子運動の解析
本研究では, 中和反応によって生じる振動運動の発生機構を解析した。実験からの示唆に基づいた数理解析モデルを構築し, 現象の再現を行ったあと, 数理解析モデルから化学反応次数が本質的に重要であることを示唆した。すなわち, 反応次数によっては振動しない系が存在することを示唆した。この結果を実験グルー

プにフィードバックした結果、反応次数が異なる中和反応系では振動現象が現れないことが確認された。

(2) 錯体反応を伴う粒子運動の解析

フェナントロリンと鉄イオンの反応によって生じる振動運動について解析を行った。この研究では鉄イオン濃度を低濃度から高濃度変化させると等速運動→振動運動→等速運動と運動が変化する現象の解析を行った。その結果、反応によって生成されるフェロインが界面活性剤としての働きを持つことと水溶液中の鉄イオン濃度が高く維持されていることが振動運動から等速運動への変化に重要であることを示した。

(3) 自励振動する粒子運動の解析

プラスチック板の下部に界面活性剤を付着すると振動運動する現象に対する数理モデル化を行った。界面活性粒子が固液界面を拡散する速度が気液界面を拡散する速度よりも非常に遅いという仮定を与えた数理モデルでは振動運動を再現することができた。また、振動時の最大速度が付着する位置に依存しない現象に対しては慣性抵抗を考えることで再現することに成功した。

(4) 楕円樟脳運動の解析

形状による自発運動モードについて解析を行った。2次元の並進運動と回転運動を記述する数理モデルを用いて、円から楕円への変形によって生じる運動について解析した結果、楕円の短軸方向に並進運動する解が安定であり、長軸方向に運動する解は不安定であることがわかった。さらに、数値計算から短軸方向への運動は常に安定であることが示唆され、実験による解析を行った結果、楕円樟脳は短軸方向に運動することが明らかとなった。

(5) 液滴運動の数理解析

液滴運動の数理モデル化を行うために、液滴を表現する表現モデルとして体積保存型フェーズフィールド方程式を用いた。この方程式と界面活性膜との相互作用の数理モデル化をおこない表面張力変化に依存した液滴運動の数値計算を行った。その結果、液滴の公転運動や振動進行運動、自励往復運動、不規則運動等の解を見つけることができた。これらの解が出現する機構はまだ未解明であり、今後の課題となっている。また、この数理モデルを用いて油滴のブレビング運動の再現も可能であるか検討することも今後の課題となっている。

(6) これまでに用いてきた数理モデルに対する解析としては、定常解や等速進行解の存

在は示すことができたが、

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20件)

1) K. H. Nagai, F. Takabatake, Y. Sumino, H. Kitahata, M. Ichikawa and N. Yoshinaga, "Rotational motion of a droplet induced by interfacial tension", *Physical Review E* 87, 013009 (2013), DOI : 10.1103/PhysRevE.87.013009(査読有)

2) S. Nakata, T. Miyaji, T. Ueda, T. Sato, Y. S. Ikura, S. Izumi and M. Nagayama, "Precipitating motion of a self-propelled object on a molecular layer with a local minimum and a local maximum isotherm", *Journal of Physical Chemistry C*, 117(2013), DOI:10.1021/jp400971h (査読有)

3) H.Kitahata, K.Iida and M.Nagayama, "Spontaneous motion of an elliptical camphor particle", *Physical Review E*, 87(2013),010901,DOI: 10.1103/PhysRevE.87.010901 (査読有)

4) K.-I.Nakamura and T.Ogiwara, "Periodically growing solutions in a class of strongly monotone semiflows", *Networks and Heterogeneous Media*, Vol. 7, No. 4 (2012), pp.881—891,DOI: 10.3934/nhm.2012.7.881 (査読有)

5) N. Saito, Error analysis of a conservative finite-element approximation for the Keller-Segel system of chemotaxis, *Communications on Pure and Applied Analysis*, Vol. 11, Issue 1, (2012), 339 - 364, DOI: doi:10.3934/cpaa.2012.11.339 (査読有)

6) Y.S.Ikura, R.Tenno, H.Kitahata, N. J.Suematsu and S.Nakata, "Suppression and regeneration of camphor-driven Marangoni flow with the addition of sodium dodecyl sulfate", *Journal of Physical Chemistry B*, 2012, 116, 992-996, DOI : 10.1021/jp210990a (査読有)

7) S.Nakata, T.Miyaji, T.Sato, M.Hoshikawa, Y.Ikura and S.Izumi,

"Reciprocating Motion of a Self-propelled Object on a Molecular Layer", ChemPhysChem, 13(2012), 4129-4133, DOI: 10.1021/jp400971h (査読有)

8) H.Kitahata, N.Yoshinaga, K.H. Nagai and Y.Sumino, "Spontaneous motion of a Belousov-Zhabotinsky reaction droplet coupled with a spiral wave", Chem. Lett., 41 (2012), 1052-1054, DOI: 10.1246/cl.2012.1052 (査読有)

9) Y.Sumino, H.Kitahata, Y. Shinohara, N. L. Yamada and H. Seto, "Formation of a multi-scale aggregate structure through spontaneous blebbing of an interface", Langmuir 28(2012), 3378-3384, DOI:10.1021/la204323t (査読有)

10) Y. Sumino, K. H. Nagai, Y. Shitaka, D. Tanaka, K. Yoshiakwa, H. Chaté and K. Oiwa, "Large-scale vortex lattice emerging from collectively moving microtubules", Nature 483(2012), 448-452, DOI: 10.1038/nature10874 (査読有)

11) M.Yadome, K-I.Ueda and M.Nagayama, "Chaotic motion of propagating pulses in the Gray-Scott model", Physical Review E, 83(2011) 056207, DOI: 10.1103/PhysRevE.83.056207 (査読有)

12) H.Kitahata, N. Yoshinaga, K.H.Nagai, and Y.Sumino, Spontaneous motion of a droplet coupled with a chemical wave, Physical Review E 84(2011), 015101(R), DOI: 10.1103/PhysRevE.84.015101 (査読有)

13) K.Kawata, S.Takahashi, M.Nakamura, Y.Sumino and S.Nakata, "Synchronized motion of the water surfaces around two fixed camphor disks", J. Colloid and Interface Sci. 351 (2010), 299-303, DOI: 10.1016/j.jcis.2010.07.036 (査読有)

14) M.Nagayama, K-I.Ueda and M.Yadome, "Numerical approach for transient dynamics of oscillatory pulses in a bistable reaction-diffusion system", Japan Journal of Industrial and Applied Mathematics, 27(2) (2010) 295-322, DOI: 10.1007/s13160-010-0015-8 (査読有)

有)

15) N.J.Suematsu, Y.Ikura, M.Nagayama, N.Kawagishi, M.Nakamura, H.Kitahata, M.Murakami and S.Nakata, "Mode-switching of the self-motion of a camphor boat depending on the diffusion distance of camphor molecules", Journal of Physical Chemistry, 114(2010) 9876-9882, DOI: 10.1021/jp101838h (査読有)

16) K.Iida, N.J.Suematsu, Y.Miyahara, H.Kitahata, M.Nagayama and S.Nakata, "Experimental and theoretical studies on the self-motion of a phenanthroline disk coupled with complex formation", Physical Chemistry Chemical Physics, 12(2010) 1557-1563, DOI: 10.1039/b918691c (査読有)

17) K.Ohmori and N.Saito, "Some remarks on the flux-free finite-element method for immiscible two-fluid flows", Journal of Computational and Applied Mathematics, Vol. 232, No. 1 (2009) 127-138, DOI: 10.1016/j.cam.2008.10.044 (査読有)

18) N.Saito, "Conservative numerical schemes for the Keller-Segel system and numerical results", RIMS K^oky^uroku Bessatsu, Vol. B15 (2009), 125-146, <http://www.kurims.kyoto-u.ac.jp/~kenkyubu/bessatsu/open/B15/pdf/B15-08.pdf> (査読有)

19) M.Nagayama, M.Yadome, N.Kato, J.Kirisaka, M. Murakami and S. Nakata, "Bifurcation of self-motion depending on the reaction order", Physical Chemistry Chemical Physics, 11(2009) 1085-1090, DOI: 10.1039/b815677h (査読有)

20) H.Kitahata, J.Taguchi, M.Nagayama, T.Sakurai, Y.Ikura, A.Osa, Y.Sumino, M.Tanaka, E.Yokoyama and H.Miike, "Oscillation and synchronization in combustion of candles: Radiation coupling could induce synchronization of oscillatory combustion", Journal of Physical Chemistry (A), 113(29) (2009), 8164-8168, DOI:10.1021/jp901487e (査読有)

[学会発表] (計 23 件)

- 1) 長山雅晴, Bifurcation of a self-motion depending of a reaction order, One-day Workshop on Applied Mathematics, Tamkang University, Taipei, March 28, 2013
- 2) 北畑裕之, 飯田溪太, 長山雅晴, Spontaneous motion of an elliptic camphor particle driven by surface tension gradient, Symposium "Spatio-temporal Organization in Non-equilibrium Systems", 2013年2月23日, 九州大学.
- 3) 北畑裕之, 飯田溪太, 長山雅晴, Spontaneous motion of an elliptic camphor particle, The international symposium "Self-organization and emergent dynamics in active soft matter", 2013年2月19日, 京都大学基礎物理学研究所.
- 4) 住野豊, Emergence of droplet motion induced by a chemical flux of surfactant, Wetting and Capillarity in Complex Systems, WCCS13, Max Planck Institute for the Physics of Complex Systems, Dresden, February 18-22, 2013 (招待: 口頭発表)
- 5) 住野豊, 自発運動する微小管が局所整列相互作用により生成する巨大な渦格子: 能動的な運動が巨大な秩序構造を作る, 第35回分子生物学会, 福岡国際会議場/マリンメッセ福岡・2012年12月13日, (招待後援)
- 6) 長山雅晴, Mathematical modeling and analysis of the self-propelled particle, 2nd Discussion Symposium on Artificial Life and Biomimetic Functional Materials, Hokkaido University, Japan, December 11, 2012 (招待講演)
- 7) 北畑裕之, 飯田溪太, 長山雅晴, Spontaneous motion of an elliptic camphor particle」2012 International Conference on Modeling, Analysis and Simulation「現象数理学の展開」(ICMAS), 明治大学駿河台キャンパス, 2012年11月8日,
- 8) 北畑裕之, 義永那津人, 永井健, 住野豊, Spontaneous motion of a droplet coupled with pattern formation, Dynamics Days Europe XXXII, 2012年9月4日, Conference center Wallenberg, Gothenburg, Sweden.
- 9) 長山雅晴, 樟脳船モデルに対する渋滞現象の数理解析, 日本応用数学会, 稚内全日空ホテル, 2012年8月29日~31日
- 10) 中田聡, Mode switching of an autonomous motor, 2012年7月18日, Gordon Research Conference: Oscillations and Dynamic Instabilities in Chemical Systems, Colby College, Waterville, ME, USA, July 18, 2012 (招待講演)
- 11) 北畑裕之, 飯田溪太, 長山雅晴, Motion of an elliptic camphor disk driven by surface tension, Gordon Research Conference: Oscillations and Dynamic Instabilities in Chemical Systems, Colby College, Waterville, ME, USA, July 16, 2012.
- 12) 長山雅晴, The jamming of camphor boats in a circular water channel, 9th AIMS International Conference on Dynamical Systems, Differential Equations and Applications, Hyatt Grand Cypress Resort, Orlando, Florida, USA, July 1-5, 2012
- 13) 中村健一, Existence of recurrent traveling waves in a two-dimensional undulating cylinder: the virtual pinning case", Propagation Phenomena Appearing in Reaction-Diffusion Systems, The 9th AIMS Conference on Dynamical Systems, Differential Equations and Applications, Hyatt Grand Cypress Resort, Orlando, USA, July 1-5, 2012.
- 14) 長山雅晴, 樟脳船運動に現れる渋滞現象について, 計算工学講演会, 2012年5月31日, 京都大学.
- 15) 齊藤宣一, 任意の三角形分割上で最大値原理を実現する有限要素近似について, 日本数学会 2012年度年会 (応用数学科会), 2012年3月26-29日, 東京理科大学神楽坂キャンパス.
- 16) 長山雅晴, 形状に依存した樟脳粒子運動について, 日本応用数学会, 同志社大学, 2011年9月15日.
- 17) 北畑裕之, 義永那津人, 永井健, 住野

豊, パターン形成と結合した液滴の運動, 日本物理学会第 66 回年次大会, 2011 年 3 月 27 日, 新潟大学五十嵐キャンパス.

18) 長山雅晴, Chaotic traveling pulse in some reaction-diffusion system, Workshop "Interface motion and traveling waves in reaction-diffusion equations", Tongji University, China, October, 13, 2010 (Invited)

19) 北畑裕之, 表面張力により駆動される液滴運動とその数理モデル, 日本数学会応用数学分科会, 2010 年 9 月 24 日, 名古屋大学 (招待講演).

20) 長山雅晴, 反応拡散系に現れるカオスパルス波, 日本数学会, 名古屋大学, 2010 年 9 月 25 日.

21) 中村健一, Homogenization limit of recurrent traveling waves in a 2D saw-toothed cylinder, The 8th AIMS Conference on Dynamical Systems, Differential Equations and Applications, Dresden University of Technology, Germany (2010.5.27).

22) 長山雅晴, 応拡散系に現れるカオスパルス波について, 日本計算工学会, 九州大学, 2010 年 5 月 26 日.

23) 長山雅晴, OHP 樟脳運動の数理モデル, 日本応用数理学会, 大阪大学, 2009 年 9 月 28 日.

6. 研究組織

(1) 研究代表者

長山 雅晴 (NAGAYAMA MASAHARU)
北海道大学・電子科学研究所・教授
研究者番号: 20314289

(2) 研究分担者

中村 健一 (NAKAMURA KEN-ICHI)
金沢大学・数物科学系・准教授
研究者番号: 40293120

齋藤 宣一 (SAITO NORIKAZU)
東京大学・数理科学研究科・准教授
研究者番号: 00334706

中田 聡 (NAKATA SATOSHI)
広島大学・理学研究科・教授
研究者番号: 50217741

北畑 裕之 (KITAHATA HIROYUKI)
千葉大学・理学研究科・准教授
研究者番号: 20378532

住野 豊 (SUMINO YUTAKA)
愛知教育大学・教育学部・助教
研究者番号: 00518384
(H23 から分担者へ追加)

(3) 連携研究者

小俣 正朗 (OMATA SEIRO)
金沢大学・数物科学系・教授
研究者番号: 20214223