

(論文内容の要旨)

本学位論文は5部12章の構成からなっており非生物系における自発運動に着目し、マクロに秩序ある運動の生成についてとその機構を追求した研究となっている。第1部では研究の背景・動機、及び本研究内容に関連した、学問的な背景に関して紹介をしている。第2部では界面張力の空間的不均一性によって引き起こされる液滴の自発運動に関して、第3部では弾性を持つ界面活性剤会合体の生成に誘起される液滴の自発運動に関してそれぞれ報告している。第4部では自発運動に関する研究の総括及び将来の展望に関して報告をし、第5部は付録となっている。以下第1部から第4部、第1章から第9章に関して各章の要旨に関し述べる。

第1部は第1章、第2章からなる。第1章では研究の狙いに関して述べている。ここでは非線形非平衡系で見られるパターン形成・散逸構造に付随した自発運動の特徴として、生成される自発運動の環境への適応性に関して議論している。この特徴を生体に見られる自発運動の適応性と関連づけ、非生体系・物理化学系における自発運動の研究の意義を説いている。更に加えて研究手法に関しての議論もなされており、手法としては理論・実験の両方から研究対象に迫ること、題材としては物理化学系で非線形非平衡系を容易に課すことの出来る油水2相系に溶質として両親媒性分子を用いた系を用いていることが述べられている。第2章では研究の背景、過去の知見に関して議論されており、大きく分けて界面および両親媒性分子に関する知見が議論されている。界面に関しては、界面の物理的な解釈、界面・バルク相間の相互作用、界面間の相互作用に関して議論されており、両親媒性分子に関してはその吸着特性と会合体系性能に関して議論がなされている。これらにより、本論文の基礎的な概観が得られる章となっている。

第2部は第3章から第6章よりなり、ガラス界面上を界面張力の不均一性により駆動され自発運動する油滴に関して議論がなされている。第3章では自発運動の機構に関して実験結果より、ガラス界面の界面張力が水相中に含まれる界面活性剤の効果により変化すること、更に油滴の前後でのガラス界面張力の不均一が自発運動を駆動していることを明らかにしている。第4章では自発運動の特性を明らかにするため、界面活性剤の吸着脱離を取り入れた反応拡散型の数理モデルを構築し、自発運動の機構を明確にしている。また自発運動状態が安定化する分岐点近傍で方程式を展開することで、油滴の自発運動が能動的ブラウン運動として見なせる事を明らかにし、その定性的性質を予測・実験的な確認をおこなっている。これら第3章、第4章の結果は *Physical Review Letter* 誌、及び *Chaos* 誌で公表されている。第5章では境界条件の形状により、第6章では基板表面の化学的性質により油滴の自発運動が制御される様子を実験的に見出し、理論的にその機構を明らかにしている。これらの結果はそれぞれ、*Progress of Theoretical Physics Supplement* 誌及び *Physical Review E* 誌において公表されている。

第3部は第7章と第8章からなり油水界面近傍での界面活性剤会合体の形成が誘起する、界面の自発運動に関して議論がなされている。第7章では会合体形成が誘起する自発運動系を作成する動機、および設定された系が示す不安定性に関して実験的手法を用いて明らかにしている。この研究により油滴が示す運動として、界面張力の変化が誘起する運動と、会合体形成が誘起する運動の2種があることを明らかにしている。ここでの結果は現在投稿準備中となっている。第8章では第7章で示された、会合体生成が誘起する自発運動に関して、

氏名	住野 豊
----	------

(論文内容の要旨)

会合体の弾性と透過性を仮定した数理モデルに基づき理論的考察を加え、変形の特徴的なサイズと油滴半径或いは、会合体生成速度の間の関係性に関して予測し、実験により確認を行っている。ここで示された内容は *Physical Review E* 誌において公表されている。

第4部は第9章からなり、全体の総括と今後の展望を示している。ここでは、本研究に伴い今後必要とされる研究の方向性、及び今後の発展性に関して述べたものとなっている。

(論文審査の結果の要旨)

本論文は、非生物系におけるマクロな自発運動、すなわち物理化学系におけるミクロな物質移動が誘起するマクロに秩序ある運動生成に関して実験・理論両面から研究を進めたものとなっている。生体における運動系は進化の過程により複雑巧緻な物となっているため、物理的な切り口から解析を加えることは難しい。このような問題に対して、ある特徴を抽出した物理化学系を構築し実験的・理論的考察を加えることはパラメータ設定が容易であるため非線形非平衡に関する物理学の発展に大きく寄与すると共に、生体が示す運動が持つ物理的な側面を明確にする上で重要である。本論文では物理化学系に非線形非平衡条件を導入する手法として、油水相からなる2相系に対して初期条件として界面活性剤を不均一な分布で混和させ、界面活性剤の移動からマクロな運動を取り出す系を構築している。ここでマクロな運動を取り出すため、界面活性剤が持つ特徴、すなわち吸着・脱離により界面張力を変化させる性質、会合体を生成することにより弾性を示す構造体を作り出す性質の双方を利用したものとなっている。これらの系の構築、及び自発運動の理論的解析・予測、実験による理論予測の検証を統一的行った研究は皆無であり、本研究論文はこの様な実験モデルを統一的に議論した意義の大きい論文であるといえる。以下に具体的な意義を述べる。

本論文の第2部では、界面張力差が誘起する油滴の自発運動に関して述べている。ここで扱っている系は1978年に Dupeyrat、Nakache らにより発見された系である。この系では油水界面の界面張力が時間的に変動すること、及び油水界面が自発運動することが過去に見出されていたが、油水界面の自発運動に関しての機構は未解明であった。このような系に対して本論文では、油相を液滴サイズにし、その運動を追跡することでこれまで見逃されていたガラス界面の界面張力変化が自発運動の駆動力となっていることを始めて提唱した仕事となっている。加えて、この液滴の自発運動を数理モデル化することで、油滴の自発運動が能動的ブラウン運動としてみなせることを、理論的に導出し実験的にもその性質を確認している。これまで能動的ブラウン運動に関する研究は、多くはその方程式系を天下り的に与えたものとなっており、これを実際の物理化学系の数理モデル方程式から導出し、実験と比較したものは皆無である。また、実験系が単純であることを利用し、境界条件の性質を変化させることで自発運動が示す様々な様相の変化、及びその機構を明らかにしている。このような実験・理論双方から自発運動の特性を明らかにした研究は皆無であり、非常に意義深い研究であるといえる。

本論文の第3部では、油水界面における界面活性剤会合体が誘起する油滴・水相界面の自発変形運動に関して報告を行っている。ここでは生体の運動系の一つである、リステリアの運動から発案を得て、界面活性剤会合体が油水界面近傍で特異的に生成する系を独自に構築している。この系で油水界面において円弧状の変形が自発的に展開・収縮する様子が見出されている。本論文では、系の特質の実験的同定に始まり、展開・収縮が生じる機構を会合体の弾性及び透過性を仮定した数理モデルにより明らかにしている。更に、この機構の妥当

氏名	住野 豊
----	------

(論文審査の結果の要旨)

性を検証するため変形サイズと初期濃度・液滴サイズの関係性を数理モデルより導き出し、実験により確認を行っている。このような円弧状変形の展開収縮はリステリアの運動では見られないが、生細胞系においてはアクトミオシゲルの崩壊が関連し、細胞膜表面で円弧状変形の展開収縮が見られることが知られている。本論文で報告された油水界面の変形は、実際の生体で見られる変形の展開収縮運動に対して深い示唆を与えるものであり重要な意義がある。

以上より総合的に判断し本学位申請論文は独創的な優れたものとなり、学位取得に値するものである。また、加えて物理学をはじめとする基礎的学問に関する学識は優れたものと判定した。以上のことより、博士(理学)の学位論文として十分学問的価値を有すると判断し合格と認めた。