



Title	青色光照射下での自励振動により駆動する薄板状微結晶の水中遊泳とその粗視化モデルによる理解
Author(s)	小原, 一馬
Degree Grantor	北海道大学
Degree Name	博士(理学)
Dissertation Number	甲第14898号
Issue Date	2022-03-24
DOI	https://doi.org/10.14943/doctoral.k14898
Doc URL	https://hdl.handle.net/2115/85486
Type	doctoral thesis
File Information	OBARA_Kazuma.pdf



青色光照射下での自励振動により駆動する
薄板状微結晶の水中遊泳と
その粗視化モデルによる理解

小原 一馬

北海道大学 大学院総合化学院 総合化学専攻
物質化学コース 分子物質化学講座 液体化学研究室

2022

目次

第1章 序論	1
1.1 自律的に推進するマイクロ物体の創出	1
1.2 流体中を泳ぐ物体を特徴づける指標	3
1.3 推進する物体	5
1.4 大きい生物や遊泳体の自己推進	7
1.5 小さい生物や遊泳体の自己推進	10
1.5.1 非自律的な仕組みで遊泳する物体	10
1.5.2 自律的な仕組みで遊泳する物体	14
1.5.3 往復運動の変形で推進する遊泳体	17
1.6 青色光照射で自励振動する結晶	21
1.6.1 結晶の振動運動	21
1.6.2 振動機構	23
1.7 本研究の目的と内容	25
1.7.1 本研究の目的	25
1.7.2 本論文の概要と構成	25
第2章 薄板状自励振動微結晶の遊泳とそのモデル	26
2.1 緒言	26
2.2 遊泳運動の観察結果	28
2.2.1 結晶の振動運動と遊泳運動	28
2.2.2 結晶の振動運動と遊泳方向による遊泳形態の分類	35
2.2.2.1 遊泳形態の分類	35
2.2.2.2 外形の特徴と遊泳形態	37

2.2.3	結晶の形状と1フリップあたりの遊泳距離	41
2.2.4	青色光照射方向と結晶の屈曲方向	43
2.3	薄板状遊泳結晶のモデル化とその数値計算結果	45
2.3.1	モデルの着想	45
2.3.2	設定	47
2.3.2.1	仮定	47
2.3.2.2	ヒレの動き方	48
2.3.3	数値計算	50
2.3.3.1	運動方程式	50
2.3.3.2	用いたパラメータ値	54
2.3.4	数値計算結果	56
2.3.4.1	それぞれのヒレの動き方と1フリップあたりの推進距離	56
2.3.4.2	板の長さ比の違いによる板の動き方と遊泳形態	61
2.4	まとめ	68
第3章 考察		70
3.1	緒言	70
3.2	結晶の形状と遊泳形態	70
3.3	粗視化モデルの妥当性	72
第4章 結論・総括		75
第5章 補遺		78
5.1	実験の部	78
5.2	数値計算に用いたソースコード	80
5.2.1	パラメータ設定	80

5.2.2 平板状態から屈曲状態	81
5.2.3 屈曲状態から平板状態	84
参考文献	87
謝辞	95

使用する記号

U	代表速さ	[m s ⁻¹]
L	代表長さ	[m]
ν	流体の動粘性係数 (水 : 10 ⁻⁶ @20 °C)	[m ² s ⁻¹]
Re	レイノルズ数 (= UL/ν)	[-]
f	ヒレの振動数	[Hz]
Δx	1 フリップあたりの結晶の遊泳距離	[μ m]
b	結晶のヒレ長 (屈曲部分の長さ)	[μ m]
l	結晶の長さ	[μ m]
S_{fin}	結晶のヒレ部分の面積	[μ m ²]
θ_{obs}	見かけの屈曲角	
θ_i	板 i の屈曲角	
x	結晶の水平位置	
m_i	板 i の質量	[kg]
ρ	結晶の密度 (= 水の密度)	[kg m ⁻³]
b_i	板 i の長さ	[m]
k_i	板 i の回転中心にあるトルクバネのバネ定数	[kg m ² s ⁻²]
d	板の厚さ	[m]
w	板の幅	[m]
E	トルクバネの硬さに関わる定数	[Pa]
α	板の最大屈曲角度	[deg]

添え字

- $\dot{\quad}$ 時間微分 (= $\frac{d}{dt}$)
- _{i} 板 i に関するパラメータ

第 1 章 序論

1.1 自律的に推進するマイクロ物体の創出

生き物は、エネルギーを絶えず消費して自身の身体を動かし、周囲の環境(地面や流体)に仕事をして動き回っている。例えば、水棲生物を考えると、魚は尾ビレを、微生物は鞭毛、繊毛といった身体の一部を繰り返し動かし、推進している。この挙動を相対的に捉えると、体的一部分を動かして水に仕事を行い、周りの水に流れを形成している。

生き物が行う水中での自己推進を、人工的に創り出すことはできないだろうか。例えば、電動モーターやプロペラ・パドルなどを組み立てた魚型ロボットは既に実用化されている。それに対して、人工の機械を目に見えないサイズまで小型化して、ミリ／マイクロメートルサイズにすることは、困難である¹。推進運動をする小型ロボットは、“microbot” や“microrobot”と名付けられ、効率のよい動きを示すものを目標に、生物の動きを解析し、作製されている¹⁻³。

水中で“microbot”を動かすことを考えると、そのために乗り越えなければいけない壁がある。Feynman は、1983 年に行った講演の中で、自由に泳ぐことのできる小さな機械の問題点として、エネルギーの供給と装置の制御の難しさを挙げた⁴。Feynman はその解決方法として、磁場や光をエネルギー源にした、粘性媒体を掘り進められるような S 字型のフィンを駆動部に用いることを提案した。

続いて、Sitti らは、小さな機械である“microbot”を動かすときの困難な点として、推進するための実効的な力が小さいこと、その動きの制御が難しいことを挙げた³。サイズが小さくなればなるほど、物体の熱揺らぎや周囲流体の粘性の影響が大きくなる。その結果、一方向に運動するための力を取り出せず、運動の総和として変位が 0 になる。

そこで、Sitti らは、“microbot”に必要な性質として「自律性」を挙げた³。また、Gompper らも、アクティブマター実現の鍵は、その自律性にあること、すなわち、エネルギーを持続的に消費することで実現される非平衡状態をいかにして作り出すかにあると述べている⁵。これは、小さいサイズの物体が、ある流体中で、一方向の推進運動によって十分な距離を進むためには、その物体自身が注入されたエネルギーを変換して継続的に稼働する必要があることを意味する。

このように、マイクロメートルオーダーの小さい物体を一方向推進させるための課題は、研究者間で共通の認識が持たれている。どのようにして自律性を実現し、粘性の強い周囲環境でどのように物体の動きを制御するかという点である。

本論文では、粘性支配的な環境下で自律的に推進する物体の創出を目指した著者の研究について論じる。具体的には、エネルギーを定常的に消費した自律振動によって駆動するマイクロメートルオーダーの物体の水中での遊泳運動と、その粗視化モデルによる理解について著述する。

本章では、運動体が浮かんでいる周囲流体の性質について述べ、小さいサイズの遊泳体を中心に、どのように自身を変形させて自己推進するか概観する。その後、繰り返しのフリップである往復運動をして、水中を推進した薄板状微結晶の構造および振動の仕組みを述べ、本論文の目的を述べる。

1.2 流体中を泳ぐ物体を特徴づける指標

ヒトとクジラ、ゾウリムシのそれぞれが水の中を推進するとき、周囲の水を同じように感じているのだろうか。周囲の流体の動きは、「レイノルズ数 Re 」という指標で特徴づけられる。定義^{6,7}は次式である。

$$Re = \frac{Ul}{\nu} \quad (1)$$

それぞれ U は代表速さ、 l は代表長さ、 ν は周囲流体の動粘性係数を表す。なお、空気および水の動粘性係数は、それぞれ $1.5 \times 10^{-5} \text{ m}^2/\text{s}$ 、 $10^{-6} \text{ m}^2/\text{s}$ である⁸。体長相当の距離を1秒間に泳ぐとき、大きいサイズの物体では、体長と遊泳速さが多いことから、レイノルズ数 Re は大きく、逆に小さいサイズならば、 Re は小さい。ここで、流体の密度 ρ と流体の粘性係数 μ を用いると、 $\nu = \mu/\rho$ である。この関係を用いて、式(1)を変形すると、レイノルズ数は式(2)に示すように、速度の2乗に比例する慣性力 ρU^2 と速度の1乗に比例する粘性力 $\mu U/l$ の比になる。このことから、レイノルズ数は慣性力と粘性力の比に対応すると分かる。

$$Re = \frac{\rho U^2}{\mu U/l} \quad (2)$$

Re が大きいと、周囲流体の動きは、慣性の寄与が大きく、乱流が形成される。 Re が小さいと、周囲流体の動きは粘性の寄与が大きく層流ができていると捉えられる⁹。このことは、流体の運動を表すナビエ・ストークス方程式から言える。(3)式は無次元化されたもの^{7,10}である (*は、無次元化されたことを示す)。

$$\underbrace{\left(\frac{\partial}{\partial t^*} + v^* \cdot \nabla^*\right) v^*}_{\text{加速度項}} = \underbrace{\nabla^* \cdot v^*}_{\text{対流項}} \underbrace{-\nabla^* p^*}_{\text{圧力項}} + \underbrace{\frac{1}{Re} \Delta^* v^*}_{\text{粘性項}} \quad (3)$$

非圧縮流体では、密度が一定であるため、連続の(方程)式^{10,11}と呼ばれる(4)式が成

り立つ。

$$\nabla^* \cdot v^* = 0 \quad (4)$$

よって、(3)式は簡単になり¹¹、

$$\frac{\partial v^*}{\partial t^*} = -\nabla^* p^* + \frac{1}{\text{Re}} \Delta^* v^* \quad (5)$$

レイノルズ数 Re が大きくなると、(5)式における粘性項 $\frac{1}{\text{Re}} \Delta^* v^*$ の寄与が小さくなり、 Re が小さくなれば、粘性項の寄与が大きくなる。周囲流体が水であるときの各種生物のレイノルズ数、1秒間に体長相当泳ぐと仮定したときの値を **Table 1.1** にまとめた。マイクロメートルオーダーの物体が周囲の流体の粘性の影響をほとんど受けない泳ぎ方になるのは、1秒間に体長の100~1000倍程度の距離を推進するときである。

Table 1.1 主な水棲生物の体長と速さ、レイノルズ数

	体長 [m]	平均遊泳速さ [†] [m/s]	レイノルズ数 Re (慣性力 / 粘性力)
魚	10^0	10^0	10^6
クリオネ	10^{-2}	10^{-2}	10^2
ゾウリムシ	10^{-4}	10^{-4}	10^{-2}

[†] 1秒間に体長相当泳ぐ場合の遊泳速度

1.3 推進する物体

本論文では、水中を自己推進する生物／人工遊泳体の泳ぎを次のように分類する (Figure 1.1)。遊泳体のサイズおよび物体が推進する際の駆動方法で分類した。遊泳とは、「泳ぐこと」であり、泳ぐとは「人間や魚などが手足やひれを動かして、水中・水面を進む。」と定義されている¹²。本論文中での「遊泳」の定義も、「物体が、その体の一部分を変形させて、水中を進むこと」とする。したがって、「推進」は「遊泳」よりも広義であり、物体の一部分が変形せずに水中/水面を進むことも含む。

次節からは、このうち、「遊泳」について

① 大きいサイズの遊泳体で、自律的に駆動する／非自律的に駆動する

② 小さいサイズの遊泳体で

(1) 非自律的な仕組みで駆動し、推進する

(2) 自律的な仕組みで駆動し、推進する

の順に述べていく。

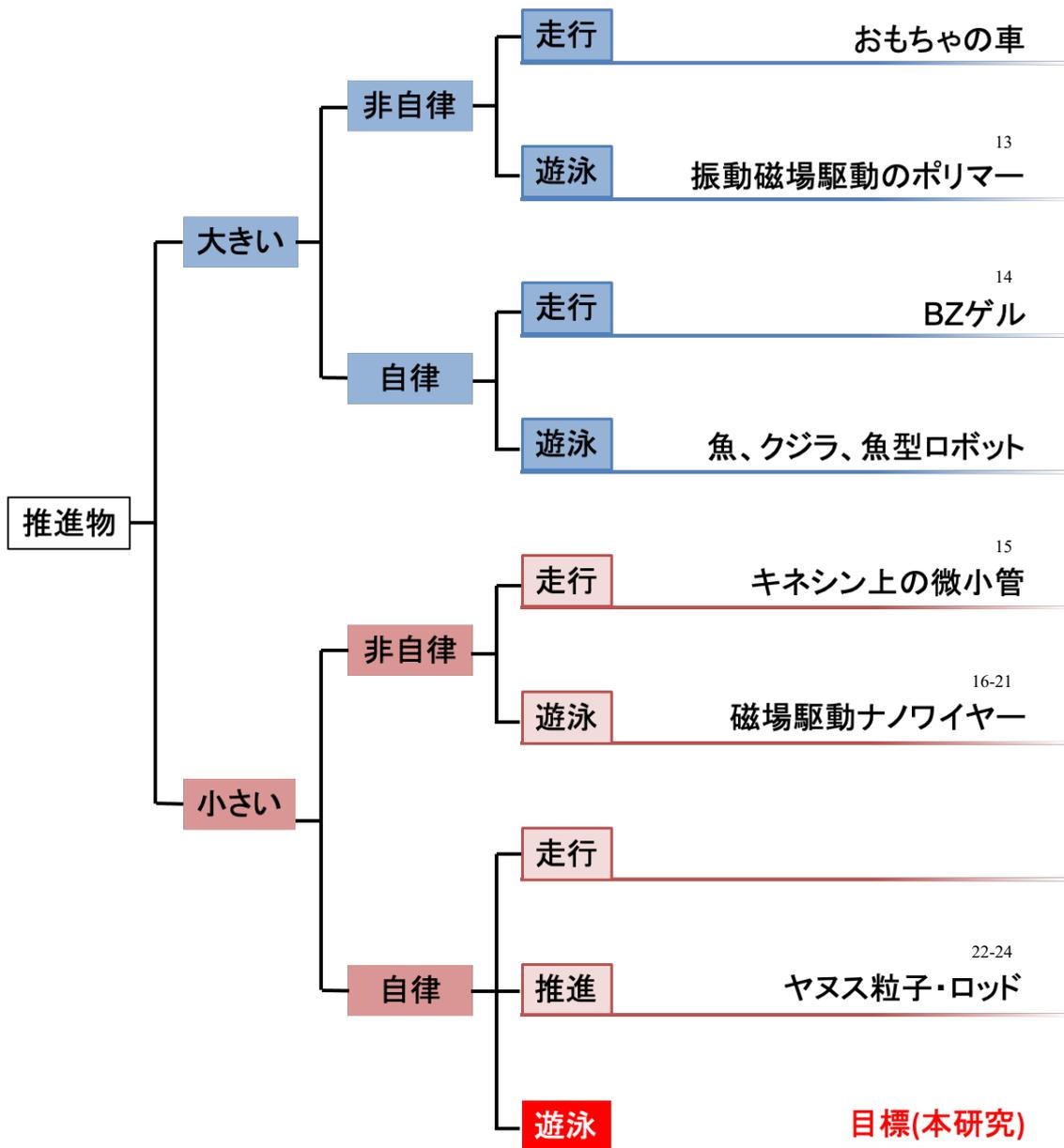


Figure 1.1 推進物体の分類

1.4 大きい生物や遊泳体の自己推進

本節では、レイノルズ数が 10^2 より大きい、1cm を超える大きさの遊泳体について紹介する。

水棲生物は、自律的に遊泳することができる。その中でいち早く、水中遊泳の研究対象にされてきたのは、魚類およびクジラ目といった尾びれを持つ水棲生物であった。1926 年に Breder は魚体と遊泳運動に関して詳細な観察を行い、著書”*Zoologica*”にまとめた。その本の中で、魚の尾びれの長さや運動の程度により、魚の遊泳運動を(a)ウナギ型、(b)アジ型、(c)ハコフグ型の 3 種類に分類した(**Figure 1.2**)。1936 年に Gray がイルカの遊泳の流体力学的考察²⁵を、1958 年には Bainbridge が回転水槽を用いて、魚の動きと遊泳速さに関する実験²⁶を報告した。

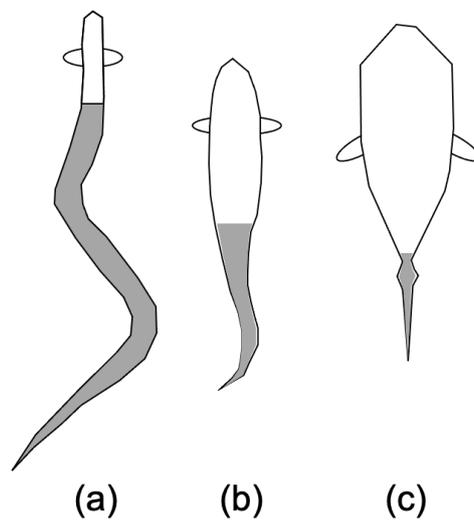


Figure 1.2 魚の遊泳運動の分類

(a) ウナギ型、(b) アジ型、(c) ハコフグ型と分類した。振動部分を灰色で示した。

Lighthill は 1960 年に、細長い魚の遊泳について、流体力学の観点から検討した結果を報告した²⁷。この Lighthill が提案したモデルは、魚の推進運動理論と呼ばれ、大きなサイズでその体を湾曲させることによる水中での推進運動を数値計算するときに用いられている。

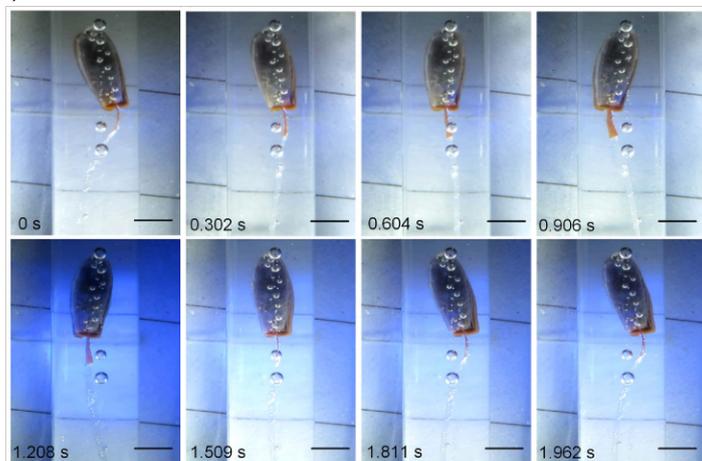
魚は、その体や尾びれを波打たせ、進行波を形成している。これは、時空間的に非対称な動きである。このとき、魚は、周囲の水に流れを作り、周囲の水から受ける抗力を推進力にしている。

一方、時空間的に対称な変形をしていても、大きな遊泳体の場合は推進することができる。例えば、帆立貝の水中での推進が挙げられる。帆立貝は、筋肉である貝柱を使い、貝殻を開閉することで、水を噴出し、推進する。これも、体の周囲に流れを作っていると言える。

センチメートルを超える大きいサイズの人工遊泳体について述べる。十分に大きなものでは、潜水艦、無人潜水艦があり、プロペラスクリューンによって、水の流れを作り推進する。その駆動力は、内燃機関、原子力機関ないしは電気によって作り出される。センチメートルスケールのもは、ポリマー材料によって報告されてきた(**Figure 1.3**)。これらは、外部からの非定常な光照射^{28,29}や振動電場、振動磁場¹³などで駆動されており、自律的な動きではない。

なお、本節で対象外とする基板上での推進体として、次の研究例を挙げる。非自律系として、光応答性分子であるアゾベンゼン誘導体を含むフィルム³⁰やエラストマー^{31,32}、結晶³³が、非定常的な光照射による、方向性を持った基板上での推進をした。アゾベンゼン誘導体を含む結晶³⁴や温度応答性液晶フィルム³⁵⁻³⁷は、加熱と冷却を繰り返すことで、振動し推進した。自律系では、Belousov-Zhabotinsky (BZ)反応の場を内包したゲル¹⁴やポリマー³⁸は、定常環境下で基板上を這うように推進した。

(a)



(b)

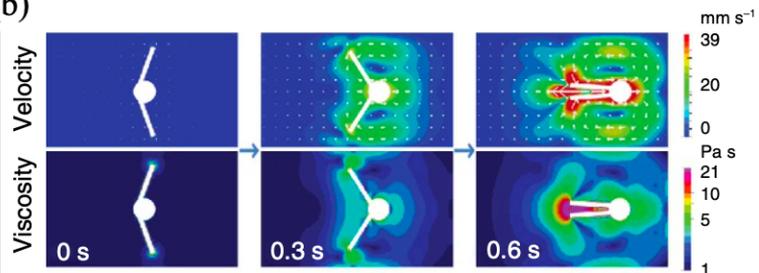


Figure 1.3 大きいサイズの人工遊泳体

(a) アゾベンゼンポリマー²⁸ (CC BY Licence)

(b) 磁場で開閉する遊泳体¹³ (CC BY Licence)

1.5 小さい生物や遊泳体の自己推進

鞭毛虫や繊毛虫、バクテリアなど、水中を遊泳する微生物は太古の昔から存在する。これに対して、水中を自己推進する人工の微小物体は、2004年のOzinらやCrespiらによる過酸化水素水中を推進するヤヌスロッド^{23,39}の報告が最初である。これは、1999年にMalloukらによるヤヌス粒子の開発で実現できた。泳ぐ挙動については、2005年にDreyfusらが磁性粒子をDNAで連結したフィラメント⁴⁰を、2009年にZhangらがらせん状の金属⁴¹を、2010年にWangらが金属ロッドを連結させたフィラメント¹⁷を、それぞれ、磁場により駆動させた研究を報告した。次節から、微小物体の駆動方法の違いにより分類した報告例について述べる。

1.5.1 非自律的な仕組みで遊泳する物体

非自律的な仕組みで遊泳する人工遊泳体について述べる。推進材料としては、近年、キネシンモーターによって駆動される微小管の運動についての研究が多くの研究者によって報告されている(Figure 1.4)が、前節と同様に、このような非遊泳型の推進物体は対象から外した。

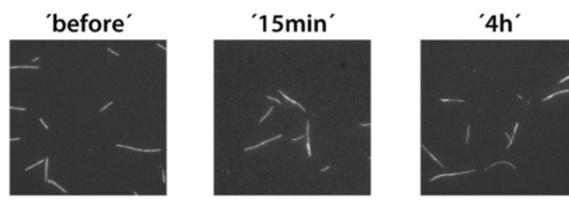


Figure 1.4 キネシンモーターによる微小管の運動の時間変化¹⁵

(Copyright 2010 IOP Publishing Ltd)

基板状に固定したキネシンモーター上を微小管が運動した。

スケールバーは 10 μm を示す。

次節で述べる帆立貝定理の要請から、小さな物体の遊泳の実現には、物体表面に進行波を作らせることを狙った研究が報告されてきた。そのための方法として、走査光や交流磁場などの外部制御による環境の切り替えを行い、水中を推進させる手法がとられてきた。

その研究例としては、樹脂製で強磁性体粒子を取り付けた尾部と金属製の頭部を持つ鞭毛虫型¹⁶や TiNiTi トリレイヤーから成型したブーメラン型⁴²、スクリュー型⁴³、ヒンジを多数持つフィラメント型¹⁷⁻²¹、粒子連結型^{40,44}のような金属製の遊泳体が、交流磁場中で、その形状を柔軟に変え、水を掻いて泳ぐ現象が報告されている(**Figure 1.5**)。また、回転磁場中でも、磁性ベシクル⁴⁵や金属製^{41,46-48}やポリマー製^{49,50}のらせん型の物体が回転しながら水中を泳ぐことが報告されている(**Figure 1.6**)。あるいは、走査する光照射下でのアゾベンゼンエラストマーの遊泳運動も報告された³²。

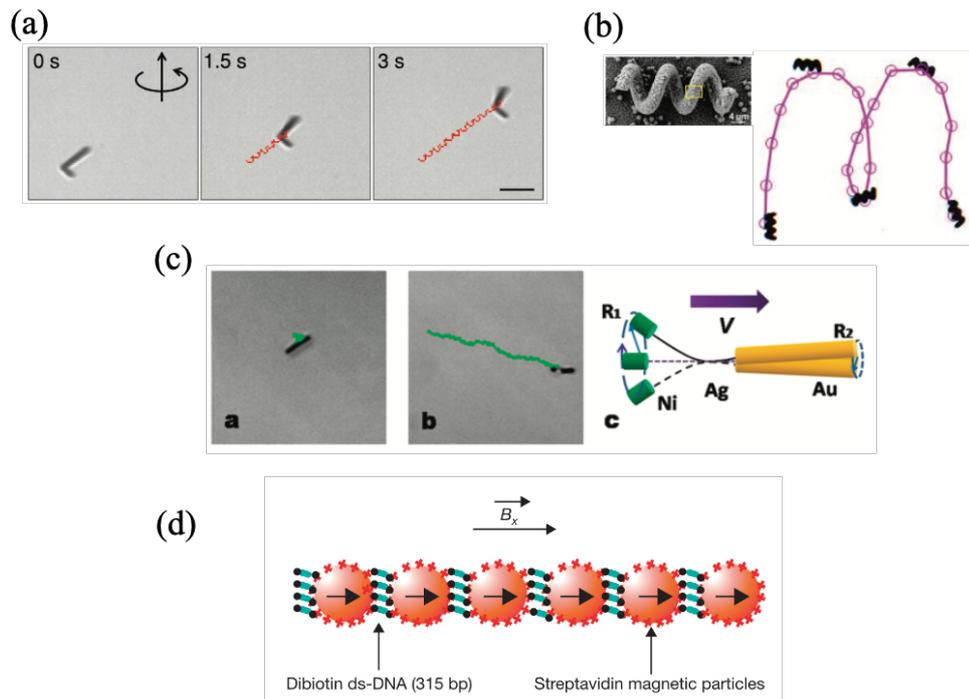


Figure 1.5 交流磁場で駆動し推進するマイクロサイズの人工物

(a) ブローラン型⁴² (Copyright 2018 John Wiley and Sons)

(b) 金属スクリュー⁴³ (Copyright 2019 John Wiley and Sons)

(c) フィラメント型の一例¹⁷ (Copyright 2010 American Chemical Society)

(d) 粒子連結型⁴⁰ (Copyright 2005 Springer Nature)

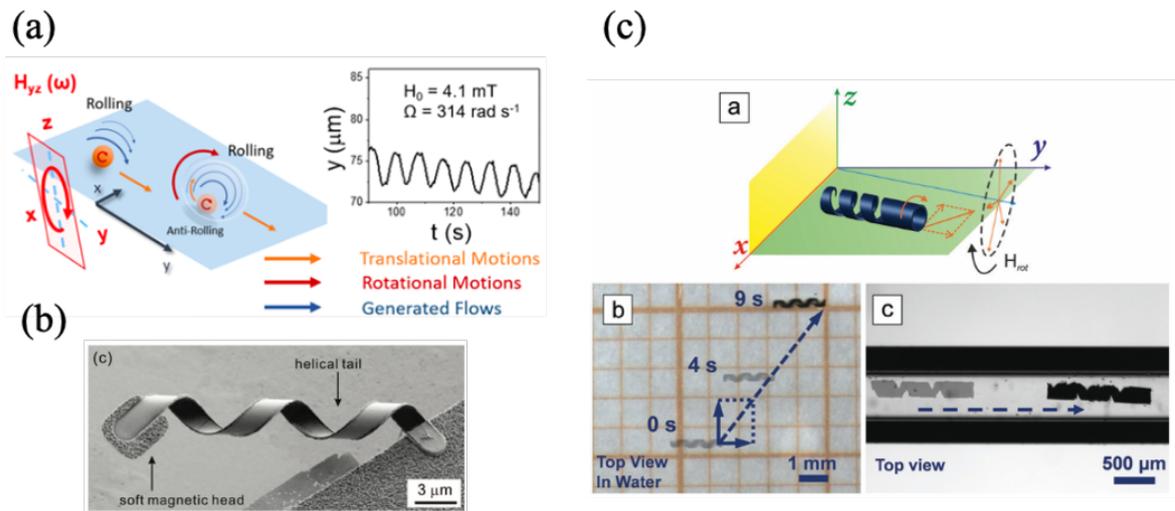


Figure 1.6 回転磁場で駆動し推進するマイクロサイズの人工物

(a) 磁性ベシクル⁴⁵ (Copyright 2018 American Chemical Society)

(b) 金属製らせんの一例⁴¹ (Copyright 2009 American Chemical Society)

(c) ポリマー製らせん⁴⁹ (CC BY Licence)

1.5.2 自律的な仕組みで遊泳する物体

微生物(例えば、鞭毛虫・バクテリアなどの鞭毛を持つものやゾウリムシなどの繊毛を持つもの)は、その表面の一部に進行波を形成させて、水中を推進する。

Lighthill は、鞭毛や繊毛を用いた微生物の遊泳運動を流体力学的に解析した結果を報告した⁵¹。繊毛虫は、繊毛 1 本 1 本を前後に動かし水を掻き、繊毛全体として推進力を生み出すように運動をしている。繊毛運動の解析には、その外周部分を繋げた仮想表面を取り扱った *envelope* モデルが提案されている。

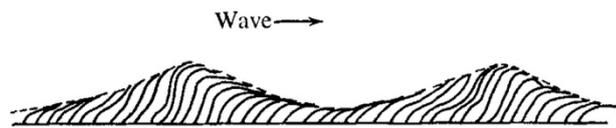


Figure 1.7 繊毛運動による進行波の模式図⁵²

(Copyright 2006 Cambridge University Press)

一方、鞭毛虫やバクテリアは、鞭毛を用いて遊泳している。これらは、頭部の大きさに比べて数倍以上長い鞭毛を持ち、その鞭毛に進行波を形成することで遊泳する。バクテリアは、頭部に対して、鞭毛を相対的に逆向きに回転させて遊泳しているという点で、鞭毛虫と異なる。鞭毛虫・バクテリアの解析には、フィラメント状の形状を有する遊泳体に適した方法である *slender body theory* が広く用いられている⁵³。

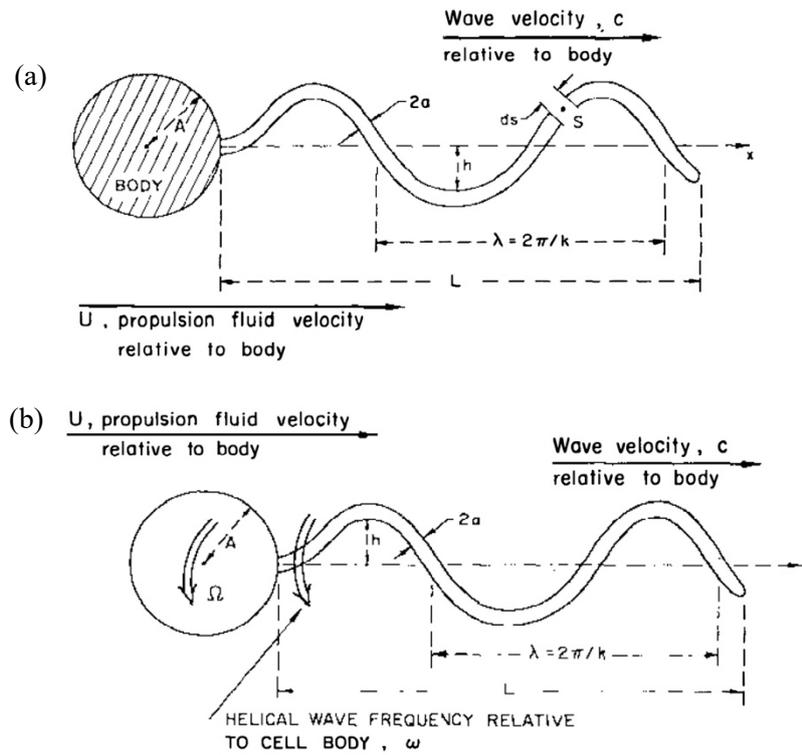


Figure 1.8 鞭毛虫・バクテリアの遊泳解析⁵³

(Copyright 1977 ANNUAL REVIEWS)

(a) 鞭毛虫の遊泳解析 (b) バクテリアの遊泳解析

このように、進行波を形成することで、その変形が時空間的に非対称となる。つまり、物体が粘性支配的に感じている周囲流体の粘性抵抗も、非対称となる。その結果、微生物は自律的に一方向に遊泳する。

非生命体の微小物の自律推進は、ヤヌス粒子²²・ヤヌスロッド^{23,24}や液滴の運動において報告されている。これらの推進では、物体周囲にポテンシャル勾配を自発形成させる仕組みが使われており、物体自体の形状を変化させて推進する「遊泳」とは異なる。物体自身の変形が自律的に繰り返され、その変形による力で泳ぐ微小物体は報告されていない。

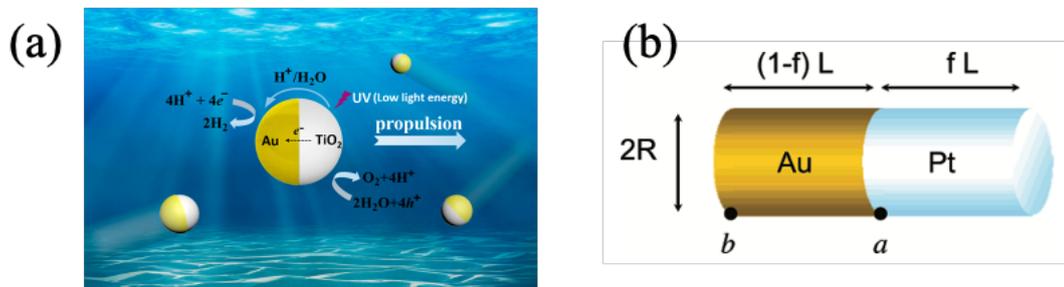


Figure 1.9 ヤヌス粒子²² (Copyright 2016 American Chemical Society) •

ヤヌスロッド²³ (Copyright 2004 American Chemical Society)

1.5.3 往復運動の変形で推進する遊泳体

マイクロサイズの物体は、周囲流体の粘性の影響を大きく受ける。Purcell は、微生物のようなマイクロサイズの物体が、その身体を変形させて低いレイノルズ数の環境で遊泳する条件を示した⁵⁴。

遊泳できる物体は、時空間的に非対称な変形をする運動体である。

その運動体が持つべき形状として、

- ・ 蝶番（ヒンジ）を 2 個以上持つ遊泳体
- ・ 柔らかい板状の遊泳体
- ・ らせん状の形状をもつ遊泳体 など

が挙げられる。

例えば、ニュートン流体中で変形するヒンジを持つ硬い板状の運動体を考える。ヒンジが 1 個であれば、時間反転させても、形状の変化の様子は全く同じになる。板の開閉の 1 周期で、総和の移動距離は 0 になる⁹。低レイノルズ数で遊泳できないヒンジを 1 つ有する運動体の変形の様子が、帆立貝の変形の様子に似ていることから、低レイノルズ数で遊泳できない条件は「(Purcell の) 帆立貝定理」と呼ばれている。しかし、ヒンジが 2 個の遊泳体は、時間反転させた前後で変形の様子が一致しない場合がある(**Figure 1.10**)。変形の往復の軌跡が重ならなければ、低いレイノルズ数の環境で、遊泳する可能性があると考えられる⁵⁴。しかし、Becker らおよび Hosoi らの数値計算の結果によると、Purcell の遊泳体はニュートン流体中では、1 サイクルの総和では

とんど推進できないと示された⁵⁵⁻⁵⁷。その遊泳効率は、最大で1.3%と見積もられた⁵⁶。

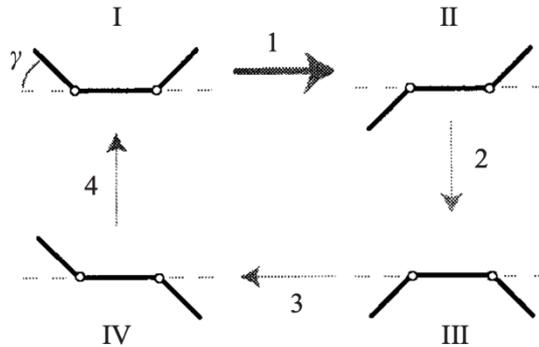


Figure 1.10 Purcell 3リンク遊泳体の変形方法⁵⁵
(Copyright 2003 Cambridge University Press)

このように、可動部を1個しか持たない運動体は、ニュートン流体中では単純な往復運動しかできず、その変形1周期で変位が0になる。往復運動に見える動きでも、完全な往復運動でなければ推進できる。Tiernoらは、常磁性体粒子に強磁性体ロッドが接した連成した遊泳体を報告⁵⁸した(**Figure 1.11(a)**)。この遊泳体は、振動する磁場によって、ロッドが粒子を回転中心に往復運動することで、水中を推進した。この連成した遊泳体は、完全な往復運動からずれていたために遊泳できた。

前段落で述べた遊泳体の実験は、周囲流体として水もしくは希薄な水溶液を扱っていた。この場合、その周囲流体はニュートン流体として捉えることができる。しかし、周囲流体が高粘度あるいは粘弾性がある場合、一方向に推進できた。例として、Arratiaの磁性ダンベル状微粒子⁵⁹(**Figure 1.11(b)**)やFischerらの帆立貝の形状を持つマイクロゲルを用いた実験^{13,59}(**Figure 1.11(c)**)、Laugaらによる数値計算⁶⁰⁻⁶³が挙げられる。これは、可動部を1個持つ単純な往復運動で変形しても、周囲流体の持つ粘性および弾性により、変形の往復で物体の前後の抗力などの流体力学的効果が強く変化するためである。

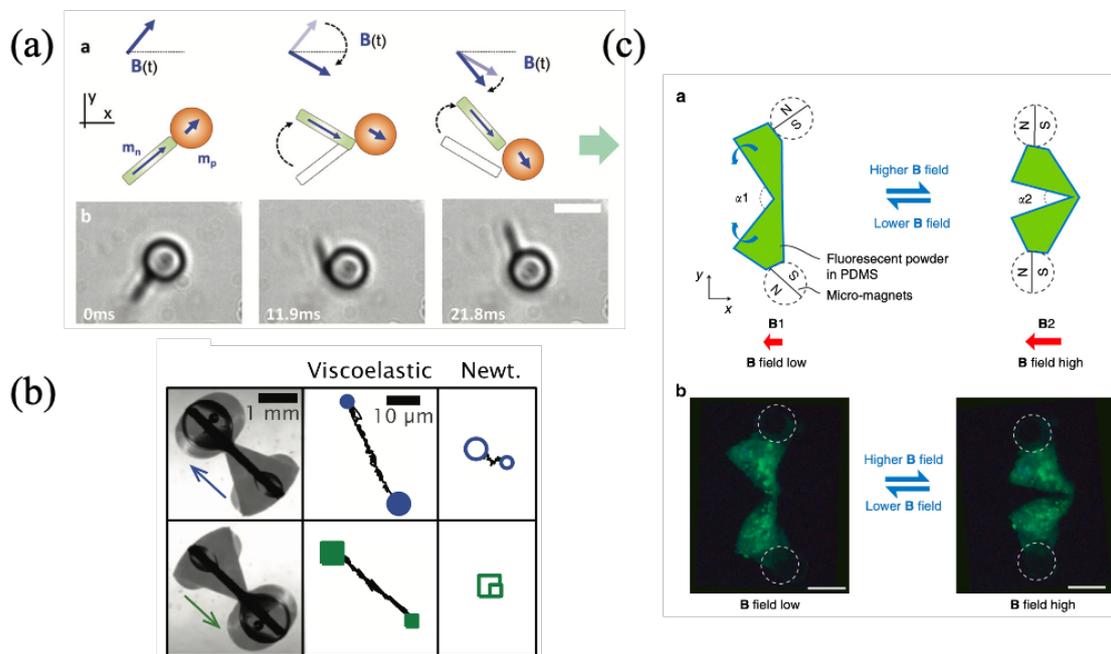


Figure 1.1.1 可動部を1個持つ遊泳体

(a) ほぼフリップ運動するロッド⁵⁸ (Copyright 2019 RSC Pub)

(b) ダンベル型微粒子⁵⁹ (Copyright 2012 AIP Publishing)

(c) 開閉式マイクロゲル¹³ (CC BY Licence)

次に、2個のヒンジという可動部を持つ最もシンプルなモデルについて述べる。Golestanianらは、可動する手で結ばれた3個のマイクロな球が異なる位相で変形することにより、水中などの粘性抵抗を受ける流体中で推進することを数値計算で明らかにした⁶⁴。単純な伸縮する腕で球を結んで遊泳する条件を探る⁶⁵だけでなく、腕をバネにし、より自由な振動をさせて現実の系に近づける試み⁶⁶⁻⁶⁸、球をN個接続した報告⁶⁹もなされた。これらのモデルは、系の重心移動による推進と球に加わる粘性抵抗力の反力を受けて推進すると解釈される。

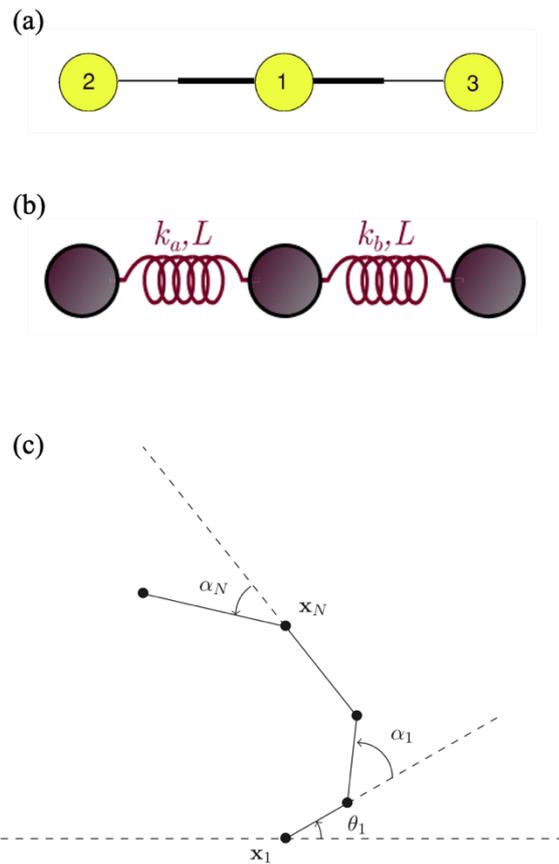


Figure 1.1 2 ミクロサイズの物体のモデル

(a) Golestanian スイマー⁶⁴ (Copyright 2004 American Physical Society)

(b) バネ連結型モデル遊泳体⁶⁷ (Copyright 2016 American Physical Society)

(c) 多連結型モデル遊泳体⁶⁹ (Copyright 2013 Elsevier)

1.6 青色光照射で自励振動する結晶

池上らは、脂肪酸の一種であるオレイン酸と光応答性分子であるアゾベンゼン誘導体からなる薄板状結晶を報告した⁷⁰。この結晶は、定常青色光で自律的に振動運動し、さらには水中を推進しうることが見出された。定常的な刺激で推進する物体自体が繰り返し変形し、水中を一方向に推進する物体の報告例はこれまでにない。本論文では、この自律振動結晶を対象に、その遊泳運動を解析する。本節では、振動様式・機構を次に述べる。

1.6.1 結晶の振動運動

オレイン酸とアゾベンゼン誘導体からなる薄板状微結晶について示す。この薄板状微結晶は、青色定常光を照射することで、繰り返し自律的に、結晶の一部分が振動運動した(**Figure 1.1 3**)。この巨視的な振動運動は、薄板状微結晶に含まれるアゾベンゼン誘導体が、青色光によって *trans* 体から *cis* 体、*cis* 体から *trans* 体に相互に光異性化することで、誘起される。

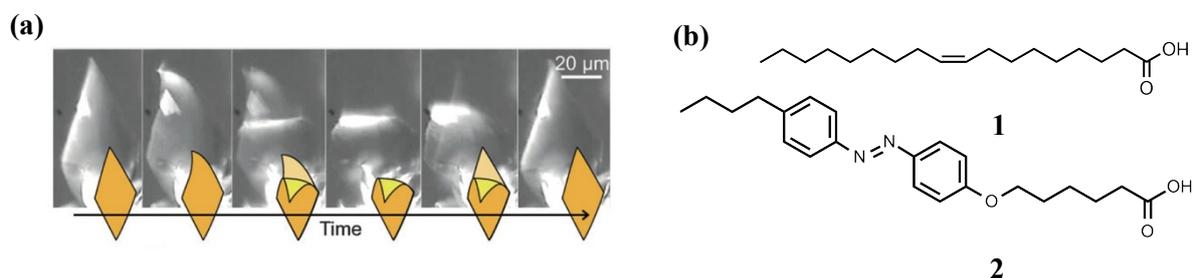


Figure 1.1 3 青色定常光照射下での薄板状微結晶の自律的な振動運動

(a) 薄板状微結晶に青色定常光を照射した際の顕微鏡像⁷⁰

(Copyright 2016 John Wiley and Sons)

(b) 薄板状微結晶に含まれるオレイン酸(1)とアゾベンゼン誘導体(2)

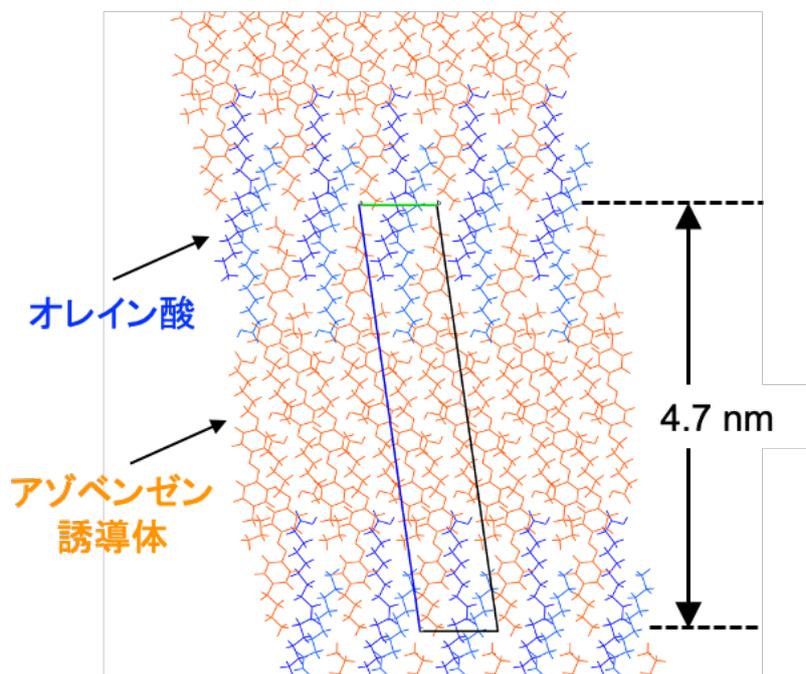


Figure 1.1 4 薄板状微結晶の推定結晶構造⁷¹

層間隔は 4.7 nm で、オレイン酸を含む層とアゾベンゼン誘導体の層が交互に繰り返す。結晶の厚さから、100 層ほどが積層していると考えられる。

Figure 1.1 4 は、アゾベンゼン誘導体のみで構成された自励振動する薄板状微結晶の結晶 X 線構造解析の結果から推定した、本研究で対象にする薄板状微結晶の結晶構造である。オレイン酸とアゾベンゼン誘導体混合の薄板状微結晶の組成から、単位格子中に存在する 6 個の分子のうち特定の位置にある 2 分子がオレイン酸であると考えられている。層間隔は 4.7 nm でオレイン酸を含む層とアゾベンゼン誘導体の層が交互に積層することで、屈曲するほど柔軟な結晶になっていると推測される。

1.6.2 振動機構

薄板状微結晶に青色光を照射すると、平板状態から屈曲状態、屈曲状態から平板状態になる際に、ゆっくりとした結晶の構造変化(Figure 1.15の S1,S3)と急激な結晶の構造変化(Figure 1.15の S2,S4)を交互に繰り返した。結晶中に含まれる個々のアゾベンゼン誘導体分子は、青色の波長の光を照射している環境では、*trans* 体から *cis* 体、*cis* 体から *trans* 体の相互に光異性を繰り返す。結晶が平板状態のとき、アゾベンゼン誘導体の *trans* 体から *cis* 体の光異性化反応の反応速度が、その逆反応の反応速度に比べて大きい。したがって、徐々に結晶中のアゾベンゼン誘導体の *cis* 体の割合が増える。*cis* 体の割合がある値を超えると、その状態での安定な相である屈曲状態に相転移する。この相転移に伴い、急激に結晶の外形が変化する。屈曲状態のときには、アゾベンゼン誘導体の反応速度が変化する。この結晶の場合は、*cis* 体から *trans* 体への光異性化が進行し、結晶が平板状態に相転移して、サイクルが1周する(Figure 1.16)。

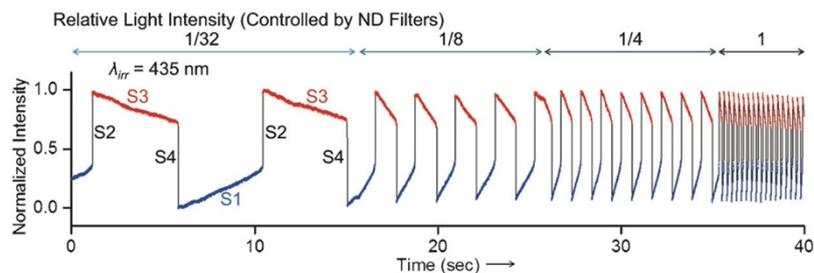


Figure 1.15 薄板状微結晶の振動運動の時間変化

振動運動の光量依存性と結晶の振動部分の輝度を指標とした振動プロファイル

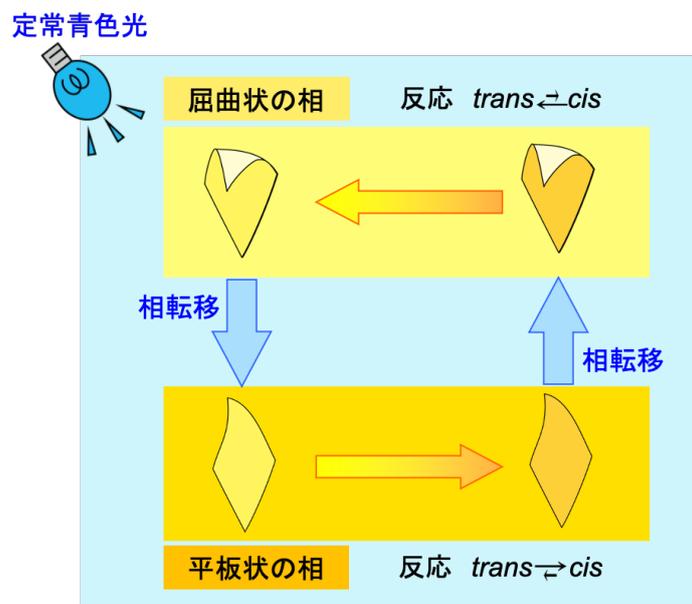


Figure 1.16 薄板状微結晶の振動機構

結晶の相によって、*trans* 体から *cis* 体への反応とその逆反応の反応速度が異なる。それぞれの相におけるアゾベンゼン誘導体の *trans* 体または *cis* 体の割合によって、相転移が誘起され、自己継続的に振動運動をする。

1.7 本研究の目的と内容

1.7.1 本研究の目的

粘性支配的な環境で推進するミリメートルに満たないサイズの物体は、その往復運動による変形では、前進・後退を繰り返し総和の変位が0になる。その一方で、マイクロサイズの物体の変形は、これまでその全てで、刺激の切り替えを行う非自律的な環境で誘起されていた。マイクロサイズの物体を自律的に、往復運動のような変形で推進するために必要な条件は何かを明らかにしたい。また、池上は定常青色光による結晶の振動運動の実現とその機構を明らかにした。わずかに遊泳する挙動も見出していたが、遊泳する結晶の調製条件の最適化や力学的機能発現の詳細についてまで検討が進まなかった。

そこで、本論文では、自律的に往復する振動運動によって駆動する薄板状のマイクロ結晶の水中での遊泳運動を実現させ、その運動を粗視化モデルを用いて理解することを目的とする。

1.7.2 本論文の概要と構成

まず、本章である第1章で、マイクロサイズで遊泳する物体を創出することの困難さとこれまでの研究例を概観した。次に、第2章で、自励振動する薄板状微結晶の遊泳について得られた結果を述べる。前半に、顕微鏡観察した微結晶の遊泳運動を解析した結果を示す。後半に、この自励振動する微結晶をモデル化し、構築した運動方程式で数値計算し、結晶の形状と遊泳運動の関連について述べる。そして、第3章で、結晶の屈曲部分の動きと遊泳方向について考察する。第4章で以上を総括する。なお、第5章は補遺で、数値計算の条件を示した。

第2章 薄板状自励振動微結晶の遊泳とそのモデル

2.1 緒言

マイクロサイズで自律的に遊泳する人工推進物体をボトムアップ的に創出することは、微生物などといった生き物を模倣した物体を作り上げる挑戦的課題である。本論文で目指すマイクロサイズで自律的に遊泳する物体を作り出すには、1.1 節で記した通り、乗り越えなければならない次の2つの困難な点がある。

① ミクロ物体の周囲流体は粘性支配的であることから、物体に働く粘性抵抗を非対称にしなければ、1サイクル当たりの変形による推進距離が0になる点

② ミクロサイズの物体に、変形を自律的に継続する仕組みを与えなければならない点

②は、第1章で述べたように、既に池上らが、青色光照射下で自律的にフリップ運動する薄板状でミリメートルサイズに満たない微結晶を報告した。この結晶は、オレイン酸とアゾベンゼン誘導体から構成されている。緩衝水溶液中に沈み、底面と接触しているものと少し浮いているものが存在した。浮いているものについては、その自律的な動きで水を掻いて推進する可能性が期待された。しかし、①の課題について克服する必要がある。これについては、理由は判然としなかったものの、それを克服した遊泳が数例観察された⁷²。

そこで、本章では、既報の自律駆動する薄板状微結晶のフリップ運動によって誘起された水中での遊泳運動についての実験結果と解析結果を述べる。まず、遊泳運動を示した結晶の顕微鏡を使って録画した動画の解析結果を示す。具体的には、微結晶の振動運動と遊泳運動のつながり、微結晶の振動部分と遊泳方向から特徴づけた遊泳形態、微結

晶の外見的特徴と遊泳形態、微結晶のフリップする方向についての結果を示す。次に、微結晶の屈曲部分であるヒレを2分割して立てた、3枚の板がトルクバネで連結した粗視化モデルの構築およびその数値計算結果を示す。モデルの概要とヒレの屈曲方法、それにおける1フリップ当たりの総和の遊泳距離、分割したヒレの長さ比・ヒレの長さによる遊泳形態の違いを順に述べる。

2.2 遊泳運動の観察結果

2.2.1 結晶の振動運動と遊泳運動

青色光照射下で振動運動する結晶は、池上らが報告した調製条件⁷⁰と同じく、オレイン酸(1)と 6-[4-(4-*n*-ブチルフェニルアゾ)フェノキシ]ヘキサン酸(2)を 6:4 で混合し、pH 7.5 のリン酸緩衝液に分散し得た。得られた薄板状結晶の全体に青色光を照射すると、結晶全体が湾曲するわけではなく、結晶の一部が折れ曲がり、振動運動をした (Figure 2.1)。その振動運動の振動数は、既報⁷⁰と同様に照射した青色光の強度に比例した。1つのプレパラート内では、目で観察できるサイズの結晶が数千個形成され、そのうち半数程度の結晶が振動運動を示した。しかし、水中を明確に遊泳する結晶は、振動運動をする結晶のうち、0.1~1%程度であった。以降、遊泳運動する結晶として、動画撮影中に他の結晶に衝突したり、振動運動自体が停止してしまったりした結晶を除いて、解析した結果を述べる。

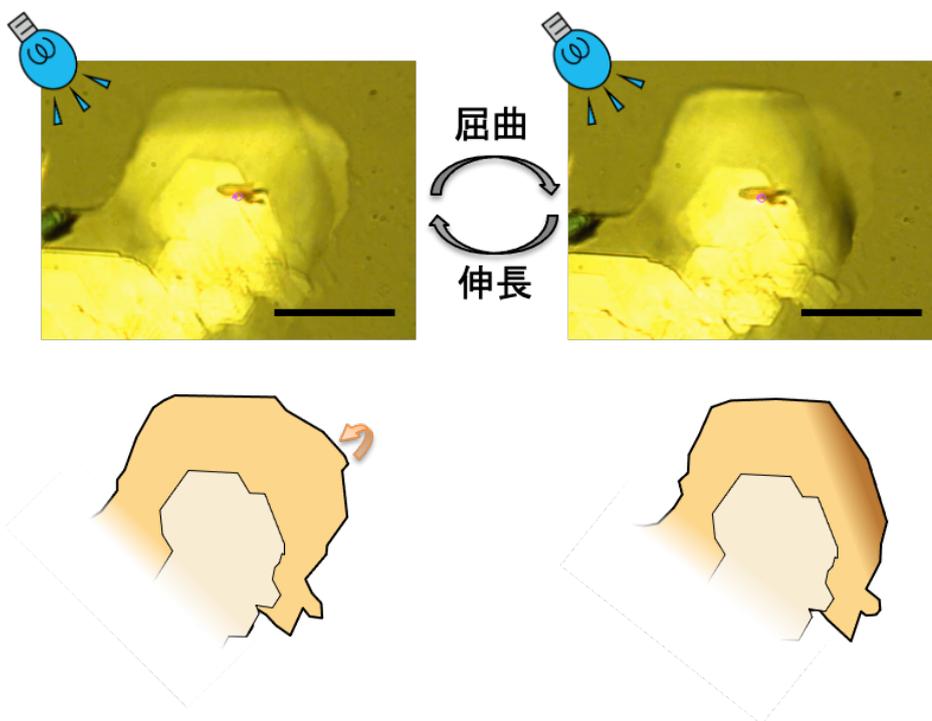


Figure 2.1 結晶の振動運動

(上段) 青色光照射下で自励振動した結晶の顕微鏡像である。スケールバーは 100 μm を表す。(下段) 結晶の顕微鏡像の模式図である。図中右上の結晶の一部分が屈曲した。

水中を遊泳する結晶は、結晶が振動運動をしていないとき、結晶は水中を静止しているように見えた。青色光を照射して結晶の一部が振動運動すると、それにより結晶が一方向の並進運動をし、水中を遊泳する様子が観察された(**Figure 2.2**)。あるいは、水中を遊泳する結晶の中には、遊泳して別の結晶に衝突し、その推進運動を妨げられてしまう挙動が観察されたものもあった。効率的な結晶の遊泳運動を目指して、容器に用いているガラスを洗浄したり、濃硫酸洗浄によりガラス表面の電荷状態を変えたりして結晶を浮きやすくしたり、結晶の周囲の水の密度を KCl 塩の添加により大きくしたりした。しかしながら、振動運動はしても、明確に遊泳運動を示した結晶は観察されなかった。

これまで、観察された遊泳の最大速さは、およそ $15 \mu\text{m/s}$ だった。なお、そのときの振動運動の振動数は、約 10 Hz であった。この結晶の長さは約 $120 \mu\text{m}$ であった。すなわち、1 秒間での移動距離は、結晶長の 10% に相当し、水掻き 1 回で進む距離は結晶長の 1% だった。また、遊泳運動が観察された結晶のうち最大面積を持つものは $2.6 \times 10^4 \mu\text{m}^2$ で最小面積を持つものは $6.8 \times 10^2 \mu\text{m}^2$ だった。これらの結晶は、その振動する部分が水を押すことで推進しているため、以降、結晶の振動部分の呼称を、魚になぞらえて、「(結晶の)ヒレ」とする。

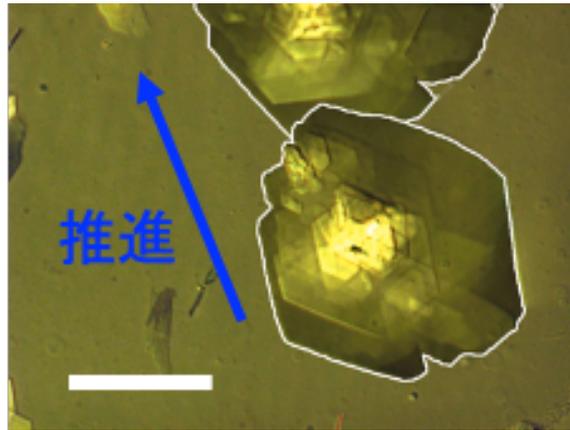


Figure 2.2 結晶の遊泳運動

30 秒間でおおよそ $200\ \mu\text{m}$ ほど遊泳した。画像は、青色光照射直後と 30 秒後の顕微鏡像を合成したものである。スケールバーは $100\ \mu\text{m}$ を表す。

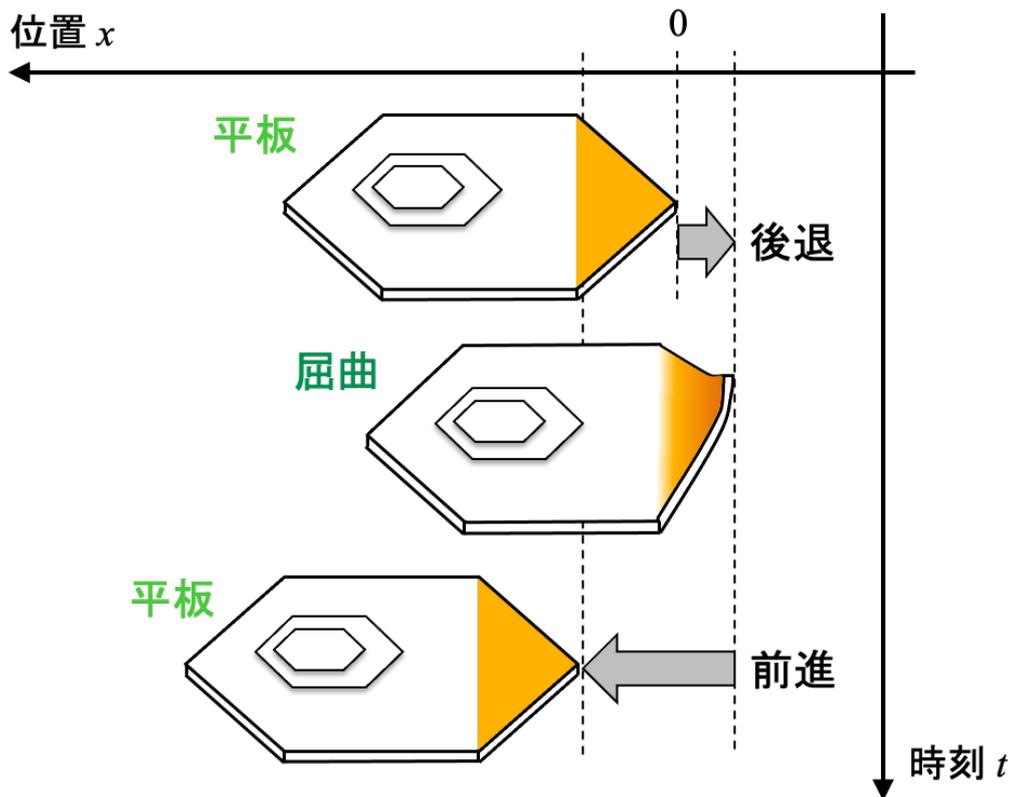


Figure 2.3 結晶の遊泳運動の模式図

オレンジ色の部分が振動部分。

結晶のヒレを推進方向の前側、つまり正とすると(**Figure 2.2**)、結晶のヒレが平板状態から屈曲状態に変形したときに、ヒレが水を掻き、結晶が後退した。逆に、ヒレが屈曲状態から平板状態に変形したときに、結晶は前進した。青色光を照射中は、結晶のヒレが振動し、結晶は後退と前進を繰り返しながら、その運動の総和として前または後ろへと一方向の推進を示した(**Figure 2.4**)。

なお、前章で述べたように、この結晶のサイズオーダーであるマイクロメートルサイズでは、周囲の流体の慣性力はほとんど無視できる。これを考慮すれば、結晶が平板状態と屈曲状態とに変形している間は結晶が移動し、変形していない時間は静止する。しかし、ヒレの変形にかかる時間が 10 ms より短く素早いいため、ヒレの変形に伴う周囲流体のレイノルズ数は 10^{-1} - 10^0 オーダーと計算できる。したがって、振動運動をし、水中を遊泳する結晶には、わずかながら慣性の寄与がある。

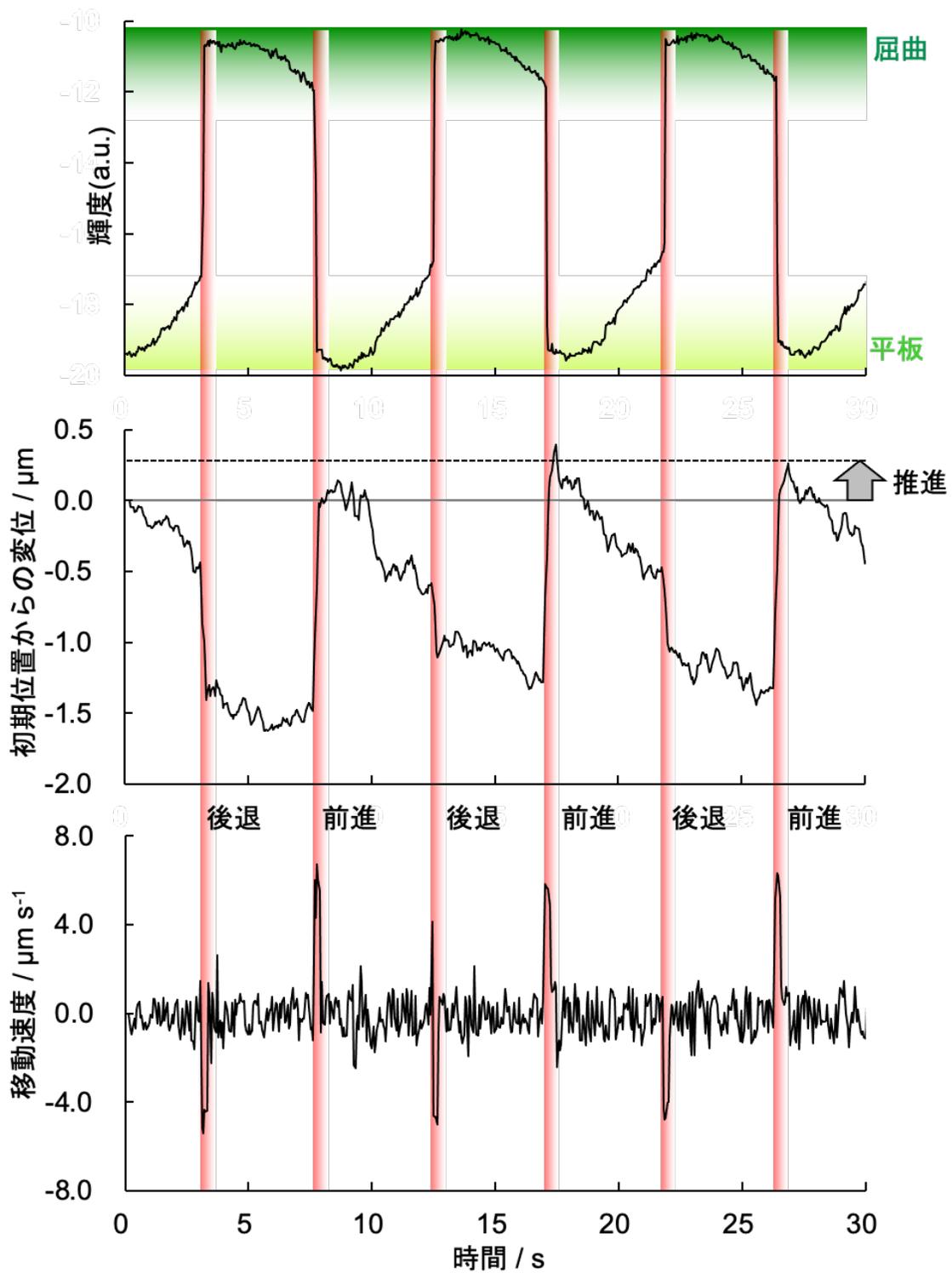


Figure 2.4 結晶の変形とそれに伴う推進運動

上から、結晶の振動部分(ヒレ)の輝度、初期位置からの変位、結晶の移動速度を表す。結晶の変形によって移動し、その総和として推進した。

次に、結晶のヒレの振動運動によって、1フリップあたりに推進する距離について示す。なお、1フリップとは、結晶が平板状態から屈曲状態を経て再度平板状態に戻る1サイクルである。ヒレの振動数が大きくなると1フリップあたりに水中を泳ぐ距離が短くなった。一方で、振動数が小さくなると1フリップあたりに泳ぐ距離が長くなった(**Figure 2.5**)。

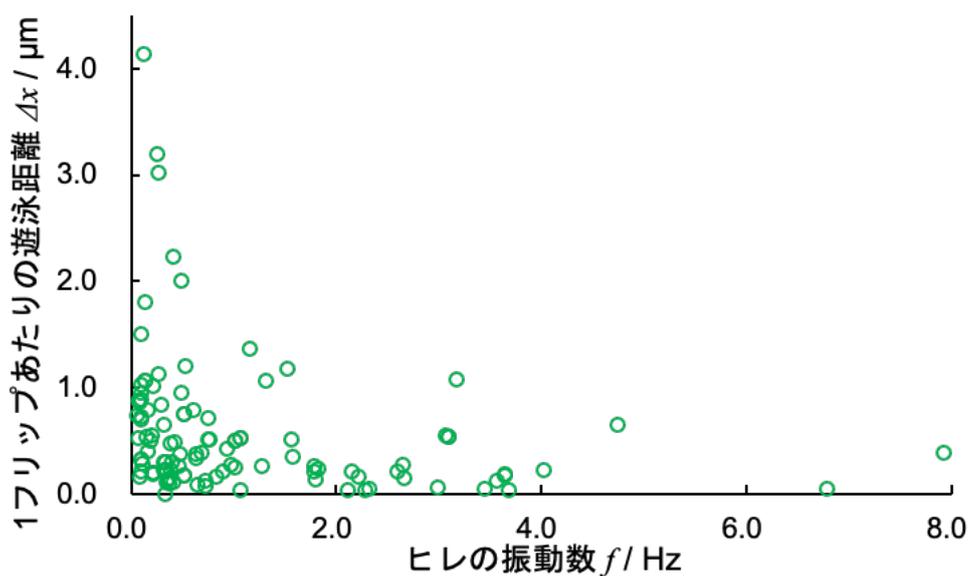


Figure 2.5 ヒレの振動数と1フリップあたりの遊泳距離

ヒレの振動数と1フリップあたりの遊泳距離が反比例していた。

1個の結晶で複数光量の青色光を照射し遊泳させ、これを複数の結晶について解析した。

2.2.2 結晶の振動運動と遊泳方向による遊泳形態の分類

2.2.2.1 遊泳形態の分類

振動部分の位置と推進方向から、結晶の遊泳運動を 2 種に分類した(**Figure 2.6**)。一つ目は、推進方向に対して、振動部分が前側の結晶である。これをバタフライ型遊泳結晶と呼称する。二つ目は、推進方向に対して、振動部分が後ろ側であるバタ足型遊泳結晶である。この他に、推進方向に対して平行に振動部分がある結晶や、回転しながら遊泳した結晶も観察された。

以降では、進行方向に対してヒレが前もしくは後ろという対称の関係にある、バタフライ型とバタ足型について、その結晶の遊泳運動を解析した。

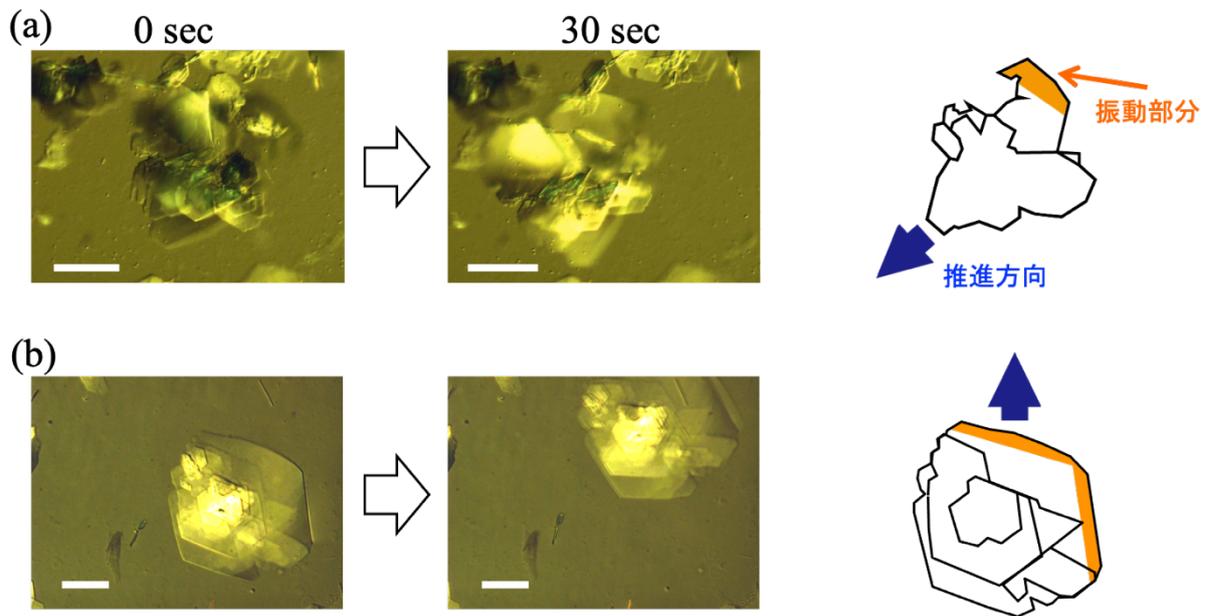


Figure 2.6 結晶の遊泳形態

(a) バタフライ型 (b) バタ足型

図中左側が、遊泳した結晶の顕微鏡像で、右列が結晶の模式図である。推進方向を青色の矢印で、結晶の振動部分をオレンジ色で示した。スケールバーは $100\ \mu\text{m}$ である。

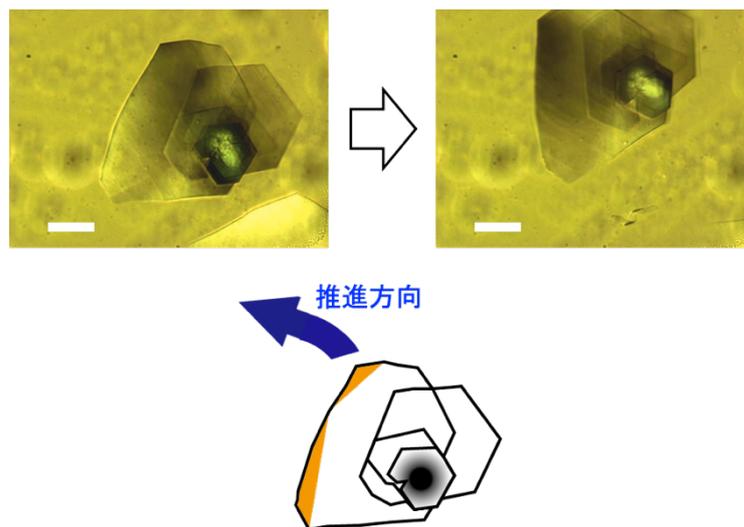


Figure 2.7 回転しながら遊泳した結晶

スケールバーは $100\ \mu\text{m}$ である。

2.2.2.2 外形の特徴と遊泳形態

次に、前項で定義した遊泳形態が結晶のどのパラメータで特徴付けられるのか解析した。結晶長とヒレ長、それらの比をと遊泳形態との相関について示した (Figure 2.9)。Figure 2.8 は結晶長とヒレ長も模式図である。

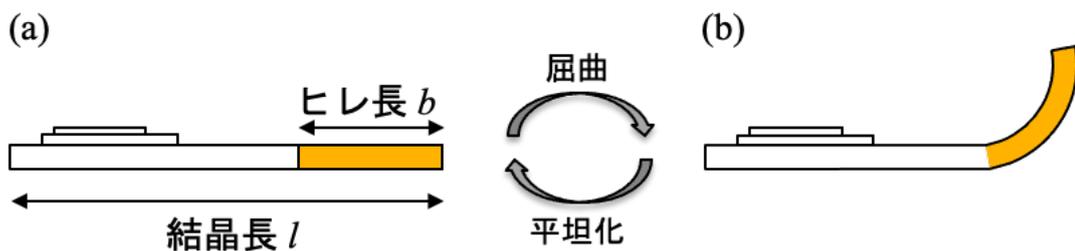


Figure 2.8 ヒレ長・結晶長

(a) 平板状態の結晶の断面模式図 (b) 屈曲状態の結晶の断面模式図

結晶の屈曲部分であるヒレの長さ b は、バタフライ型とバタ足型で分布のピークが異なった。バタフライ型遊泳結晶のヒレ長の最頻値は、 $5\sim 7.5\ \mu\text{m}$ の階級であるのに対し、バタ足型遊泳結晶の最頻値は、 $15\sim 17.5\ \mu\text{m}$ の階級だった (Figure 2.9 (a))。つまり、バタ足型遊泳結晶のヒレは、バタフライ型のヒレよりも2倍ほど長い。

同様に、遊泳形態の違いによる結晶長 l を解析した。バタ足型とバタフライ型で遊泳した結晶の個数が大きく異なるものの、バタ足型で遊泳する結晶の長さが大きいと示された (Figure 2.9 (b))。

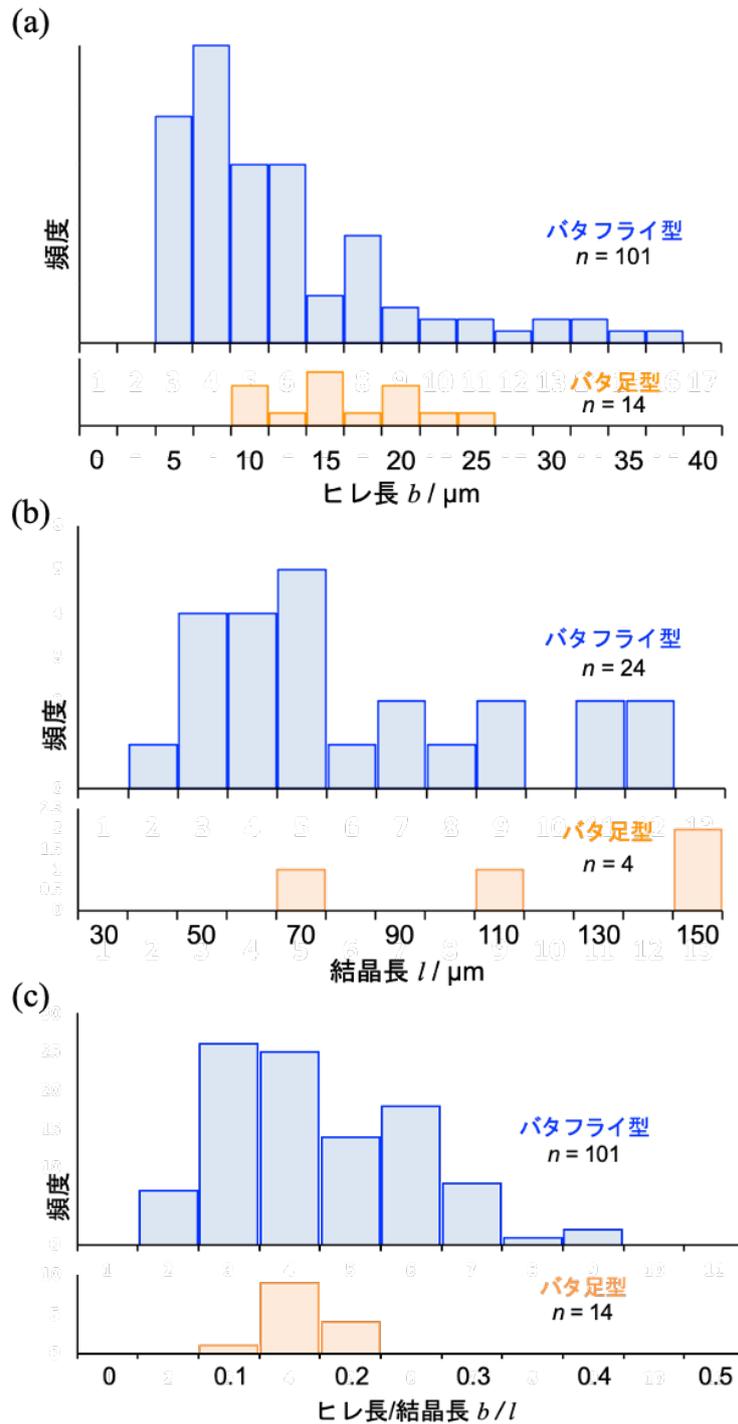


Figure 2.9 ヒレ長、結晶長およびそれらの比と遊泳形態

遊泳形態別の(a)結晶のヒレの長さ b 、(b) 結晶の遊泳方向の長さ l 、(c) 結晶の長さ l に対するヒレの長さ b の割合を示したヒストグラム。なお、(a)は、同一の結晶で異なる振動数で振動した結晶のヒレの長さを計測している。

一方で、これらヒレ長と結晶長の比 b/l は、バタフライ型とバタ足型のそれぞれの遊泳形態で分布に差がなかった(**Figure 2.9 (c)**)。これは、どちらの遊泳形態も、ヒレの長さ b は結晶長 l の 10%~20%程度であることを示している。

次に、観察された結晶について、ヒレ長 b に対し、ヒレの面積 S_{fin} および振動時のヒレの見かけの屈曲角 θ_{obs} をプロットした結果を示す(**Figure 2.1 1**)。ヒレの面積 S_{fin} と見かけの屈曲角 θ_{obs} の定義を **Figure 2.1 0** に示す。

ヒレ面積 S_{fin} はヒレ長 b に比例して増加した。直線的に増加していくことからヒレが長くなっても、ヒレの幅がほぼ一定であると言える。これは、異なる結晶、異なる遊泳形態でも、同じ傾向だった(**Figure 2.1 1(a)**)。ヒレ長 b と結晶の見かけの屈曲角 θ_{obs} は、結晶ごとにばらつきが大きかった(**Figure 2.1 1(b)**)。しかし、バタ足型とバタフライ型で、分布が異なっていた。バタ足型で遊泳する結晶は、バタフライ型の結晶に比べ、見かけの屈曲角が大きかった。バタ足型はヒレが長く、より屈曲することを表している。

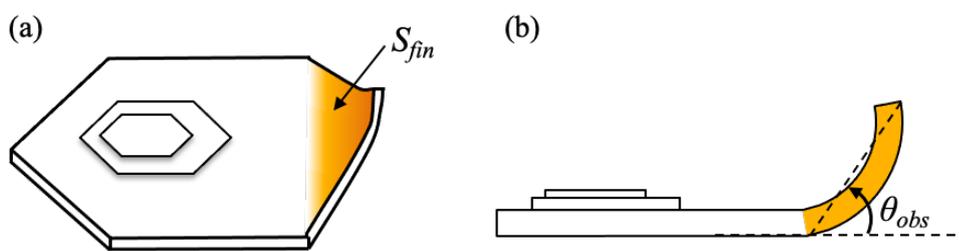


Figure 2.1 0 ヒレの面積 S_{fin} と見かけの屈曲角 θ_{obs}

(a) 結晶の見取り図で示したヒレ面積

(b) 結晶の断面図で示したヒレの見かけの屈曲角

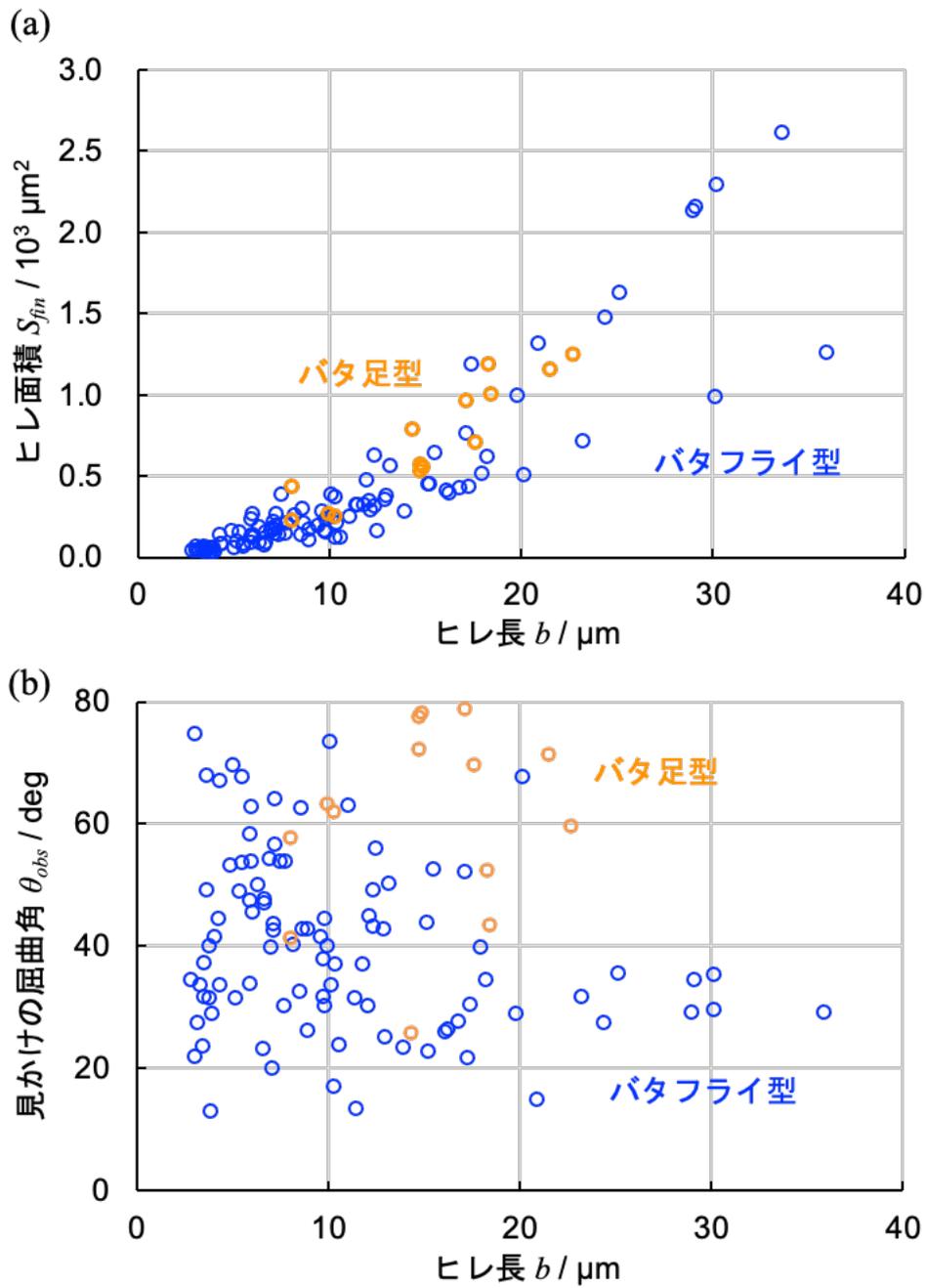


Figure 2.1.1 ヒレ長 b に対するヒレ面積 S_{fin} および見かけの屈曲角 θ_{obs}

(a) ヒレ長 b とヒレ面積 S_{fin} の相関。ヒレの長さに対してヒレの面積がほぼ直線的に増加している。遊泳形態によって、差は見られなかった。

(b) ヒレ長 b と見かけの屈曲角 θ_{obs} の相関。

2.2.3 結晶の形状と1フリップあたりの遊泳距離

次に、見かけの屈曲角 θ_{obs} とヒレ長 b に対して、1フリップあたりに遊泳した距離 Δx をプロットした結果を示す。なお、観察された結晶のヒレ部分を進行方向負の方向とした。言い換えると、ヒレを前側にして遊泳したバタフライ型結晶は負の方向に遊泳し、ヒレが進行方向後方にあるバタ足型は正の方向に遊泳することを表す。

まず、屈曲角度と遊泳距離について述べる。バタフライ型とバタ足型で見かけの屈曲角の分布が異なっていた。バタフライ型で、1フリップあたりに最も長い遊泳距離を示したのは、屈曲角度が 30° 付近だった。一方、バタ足型では、1フリップで最も長く遊泳したのは、屈曲角度が 70° 付近だった。バタ足型で遊泳した結晶は、バタフライ型に比べて屈曲角度が大きかった。そのため、バタ足型結晶の1フリップでの遊泳距離は長かった。

次に、ヒレ長と遊泳距離について述べる。バタフライ型とバタ足型で遊泳する結晶はともに、ヒレ長が長ければ、1フリップあたりに遊泳する距離が大きかった。その遊泳距離は最大で、バタフライ型が $2\ \mu\text{m}$ 、バタ足型が $3\ \mu\text{m}$ 程度だった。

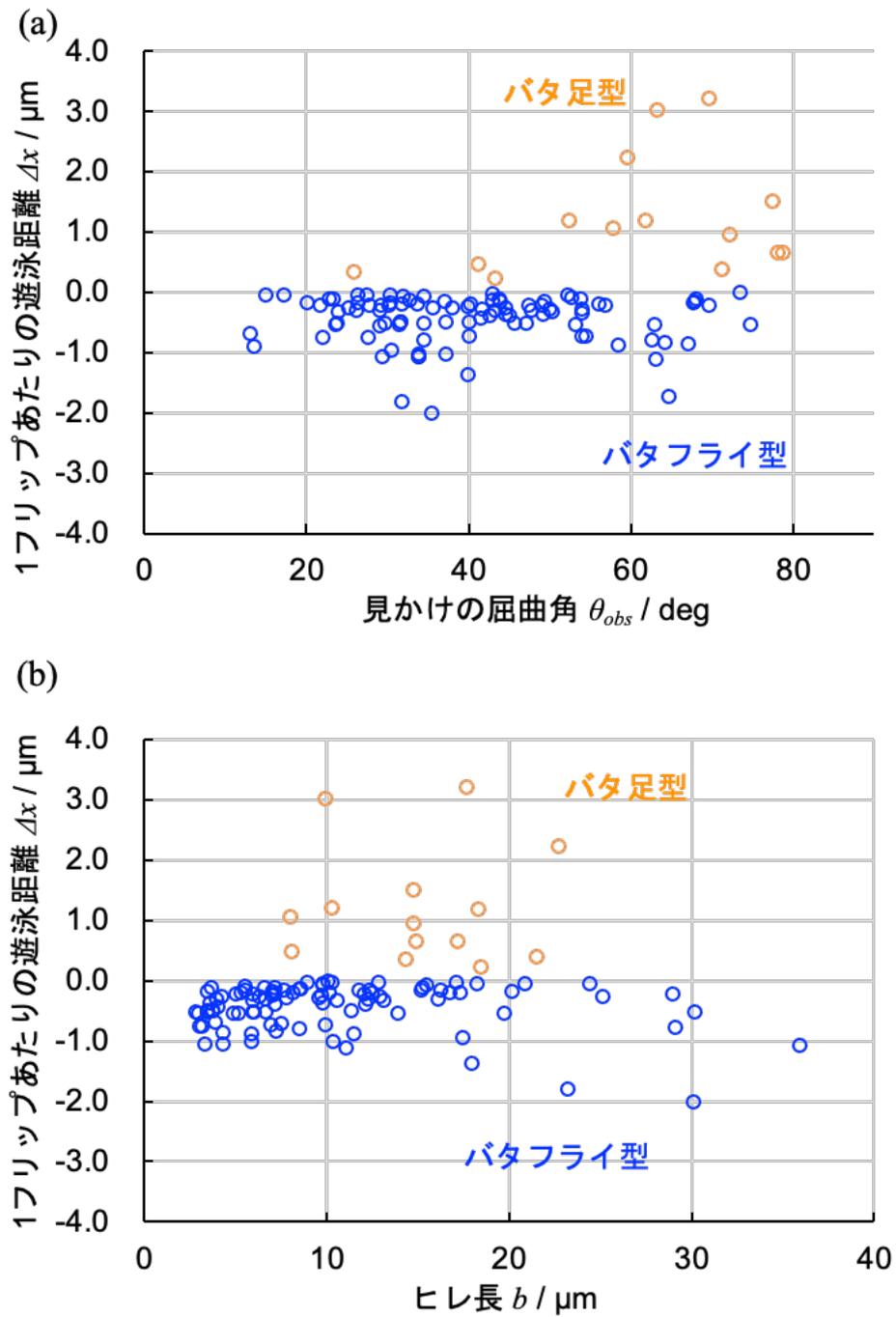


Figure 2.1 2 見かけの屈曲角 θ_{obs} とヒレ長 b に対する 1 フリップでの遊泳距離 Δx

(a)見かけの屈曲角 θ_{obs} に対する 1 フリップあたりの遊泳距離 Δx (b)ヒレ長 b に対する 1 フリップあたりの遊泳距離 Δx 結晶に対してヒレ部分を進行方向前方としているため、バタ足型は正方向に、バタフライ型は負方向に遊泳した。

2.2.4 青色光照射方向と結晶の屈曲方向

振動する結晶へ照射する青色光の方向と結晶の屈曲する方向について調べた結果を **Figure 2.1 3** に示す。顕微鏡の対物レンズの焦点の位置を変化させながら観察することで、結晶の屈曲するヒレ部分が上下のどちらに曲がるか決定した。プレパラートに対して青色光を下方向から照射した。

Figure 2.1 3(a)~(d)より、青色光の照射方向に依らず、個々の結晶はそれぞれ上または下の決まった方向に屈曲した。プレパラートを裏返して同じ結晶を観察した。結晶の屈曲方向が、青色光の照射方向で決まっているとすれば、プレパラートを裏返す前後で、結晶の屈曲方向は同じであるはずである。プレパラートを裏返して、結晶の屈曲方向を推測した結果が **Figure 2.1 3**(e)~(h)である。プレパラートを裏返した後の結晶は、青色光の照射方向に依らず、裏返す前と逆方向に屈曲した。

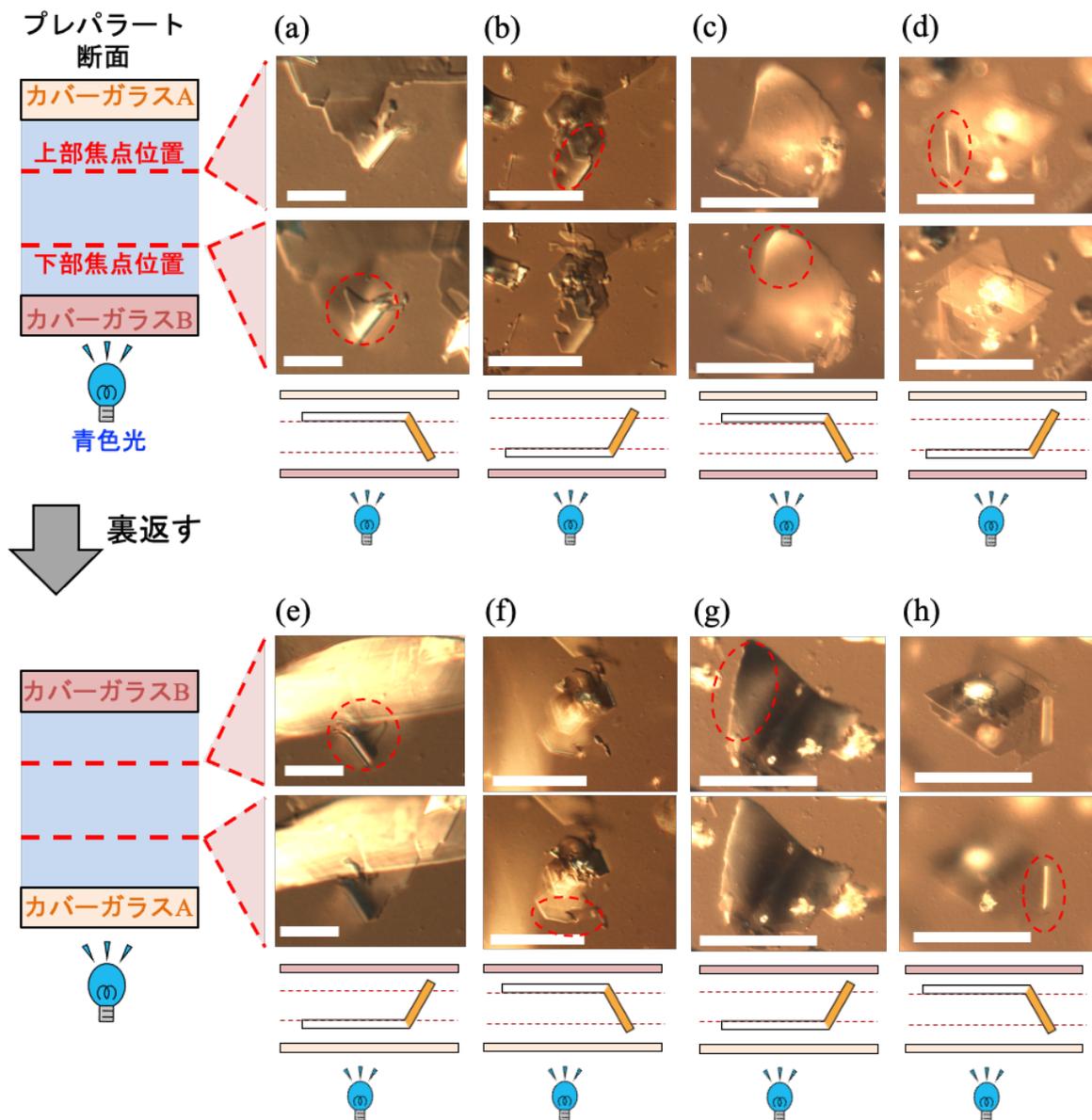


Figure 2.1 3 青色光照射方向と結晶の屈曲方向

(a)~(h)は顕微鏡像で、(a)~(d)のプレパラートを裏返したものがそれぞれ(e)~(h)に対応する。左の模式図は、プレパラートの断面を表し、対物レンズの焦点位置を赤い点線で示した。(a)~(h)の顕微鏡像内の赤い点線で囲まれた部分は、顕微鏡像のうち、焦点が特に合っている部分を示している。(a)~(h)下の模式図は、プレパラート内の結晶の屈曲の模式図である。スケールバーは 25 μm を示す。

2.3 薄板状遊泳結晶のモデル化とその数値計算結果

2.3.1 モデルの着想

青色光照射に誘起された振動運動により水中を遊泳する結晶の模式図とその断面図の概図を、以下に示す (Figure 2.1 4)。この断面図は、結晶の遊泳方向に対して垂直な方向から見たものである。結晶は、上下のどちらかに屈曲する。この断面図の結晶が屈曲する根元部分をヒンジとして自由に回転できるようなモデルを考えた。

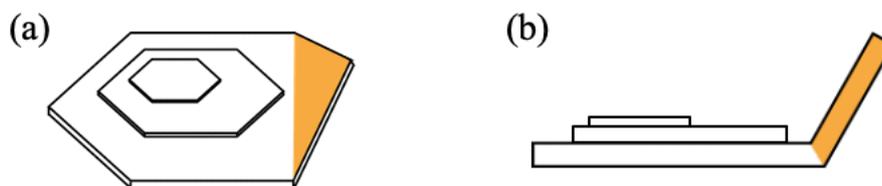


Figure 2.1 4 結晶の模式図と断面図

(a)振動運動で水中を遊泳する結晶の模式図(見取り図)

(b)結晶を横から見た図(断面図)

このように折れ曲がるヒレを持つ結晶の最も単純なモデルは、2枚の板を回転するヒンジ1つで連結したモデルである。しかし、このモデルは、時空間的に対称な動きしかできず、推進する結晶のモデルにはなり得ない⁵⁴。また、結晶の湾曲を再現するために、屈曲部分を細分化するモデルも考えられる。結晶の変形を適切に表現できるモデルである一方、動きが複雑化する。数理モデル解析の本質的な重要性は、できる限りシンプルなモデルを作成し解くことで、鍵現象を抽出するところにある。

したがって、遊泳する結晶を表す最もシンプルなモデルは、屈曲部分を1つ増やして Figure 2.1 5に示すような3枚の板が2つのヒンジで連結したモデルである。た

だし、このような3枚の板のモデルであっても、明確な泳ぎを示さないと考えられている⁵⁵。

2.3.2 設定

2.3.2.1 仮定

3枚の長方形の板を連結したモデルの運動方程式に、以下の条件を設定して数値計算解を求めた。

- (1) 結晶の前後方向と上下方向の動きのみを考える。左右には動かない。
- (2) 結晶のヒレではないボディの部分は、観察結果を踏まえて、水平面に平行とし、浮上・沈降・回転しないとする。
- (3) 結晶のヒレ部分は、上か下の片方に屈曲した観察結果から、計算においても片方向のみ屈曲すると考える。
- (4) ヒンジ部分は、トルクバネの性質を有すると考える。そのバネ定数 k_i は、連結された板のうち回転運動する板の長さ b_i に対して、

$$k_i = E \frac{w d^3}{12 b_i} \quad (6)$$

の関係があるものとする。ここで、 E は圧力の次元を有した定数、 w は板の幅、 d は板の厚さである。この関係式は、片持ち梁における板の長さと言グ率の関係⁷³に倣った。

- (5) モデル結晶の幅と厚さは一様に一定である。
- (6) 重力、浮力、周囲の水の流れを無視する。
- (7) 慣性力はわずかながらも働く可能性があるので、計算式に入れる。

2.3.2.2 ヒレの動き方

結晶のヒレに相当する部分を2枚の板に分け、屈曲により立ち上がらない板から順に板0、ヒレの根元が板1、先端が板2とした。簡単のために、板の幅 w および板の厚さ d は一定 ($w = 40 \mu\text{m}$, $d = 1 \mu\text{m}$) とした。板0に対して水平に x 軸を取り、ヒレと逆方向を正に、ヒレと同じ方向を負とした。次に、ヒレに相当する板1と2の動きを設定した(Figure 2.16(b)-(e))。板1と2が連結して動く場合(Figure 2.16(b),(e))とそれぞれ別々に動く場合(Figure 2.16(c),(d))を考えた。板1と2が連結して動くとき、根元の板1が先に動くモデルを Type-A、板1と2が同時に動くモデルを Type-C とした。板1と2が別々に動くときも同様に、根元の板1が先端の板2を伴って動くモデルを Type-B1、先端の板2が先に動くモデルを Type-B2 とした。以降それぞれのヒレの動き方について、数値計算を行った結果を示す。

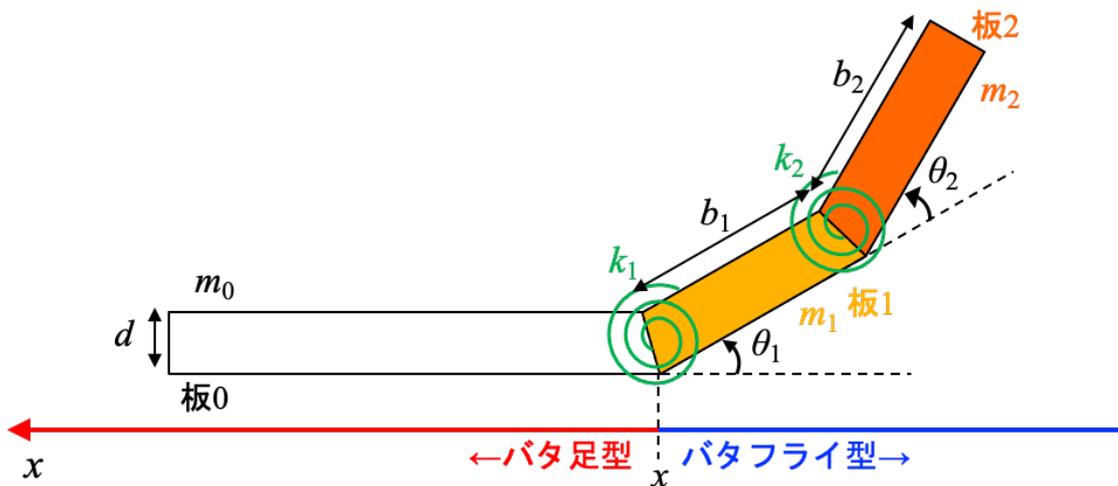


Figure 2.15 モデルの座標設定

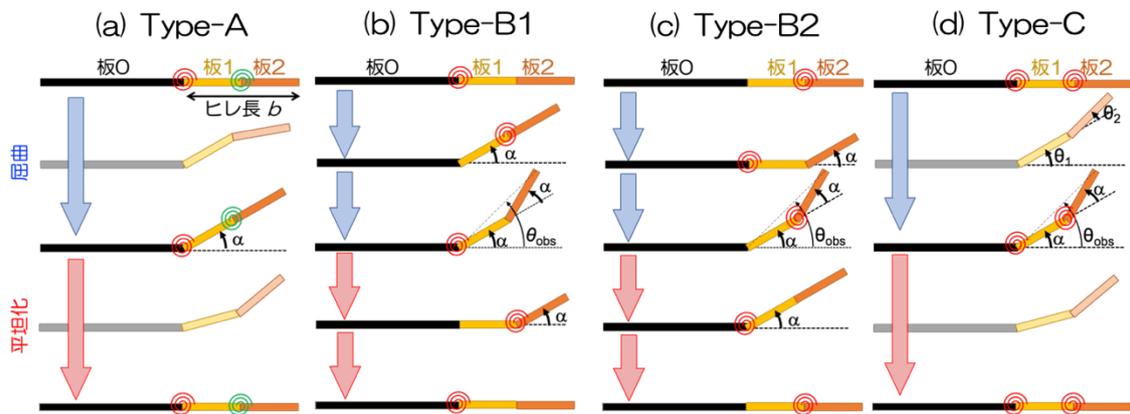


Figure 2.16 考えられるヒレの屈曲方法

(a) ヒレの根元である板1が先導する動き方(Type-A) (b) ヒレ全体が根元から屈曲する動き方(Type-B1) (c) ヒレの先端である板2が先導する動き方(Type-B2) (d) ヒレである板1と2がそれぞれ同時多発的に屈曲する動き方(Type-C)

2.3.3 数値計算

2.3.3.1 運動方程式

ヒレに相当する板が回転することにより、水から抵抗力を受けて、その抵抗力を推進力で遊泳することを示した運動方程式は次の式(7)、(8)である。一つ目の式は、板の回転運動の運動方程式

$$I \frac{d^2}{dt^2} \theta = T_s - T_{Drot} \quad (7)$$

である。 I は回転する板の慣性モーメントであり、 θ は板間の角度、 T_s は板の駆動力となるトルクバネに起因するトルク、 T_{Drot} は板がフリップする際に自ら受ける回転運動による粘性抵抗である。もう一つの式は、結晶に相当する連結された板の並進による遊泳運動を表す式で、

$$m \frac{d^2}{dt^2} x = Th_{transl} - D_{transl} \quad (8)$$

である。 m は連結された板全体の質量を、 x は板の位置である。 Th_{transl} は、並進運動の推進力であり、板の回転運動による水の抵抗力の反力(反作用)に由来する。 D_{transl} は板の並進運動に対して働く水の抵抗力を示す。

さて、次に、板が水から受ける粘性抵抗について見積もる。粘性抵抗は、板に水平な成分と垂直な成分の和に分けて考えることができる。それぞれの成分は、水の密度 ρ と抵抗係数、面積、2乗された速度の積⁶で表されることから、粘性抵抗 D は、

$$D = \frac{1}{2} \rho C_d S_d v_{\perp}^2 + \frac{1}{2} \rho C_f S_f v_{\parallel}^2 \quad (9)$$

と表される。ここで、板の断面における抵抗係数と断面積を C_d 、 S_d 、板に対して水

平な表面における抵抗係数と表面積を C_f と S_f とそれぞれ表した。また、 v_{\perp} と v_{\parallel} は、それぞれ板の速さの垂直成分と水平成分である。低レイノルズ数の領域では、板の断面にかかる抵抗係数 C_d と板の表面にかかる抵抗係数 C_f は、それぞれ次のような式

$$C_d = \frac{10.9}{Re} \cdot \frac{1}{0.96 - \log Re} \quad (10)$$

$$C_f = \frac{4\pi}{Re} \cdot \frac{1}{3.2 - 2.3 \log Re} \quad (11)$$

で表されることが実験により示されている⁶。式(10)と(11)からわかるように、粘性抵抗係数に、周囲流体の環境および性質を表すレイノルズ数 Re が含まれている。遊泳する物体のサイズが異なっても、レイノルズ数の値が近ければ、抵抗係数の値はほとんど同じになることを意味する。

次に、簡単のために、あるレイノルズ数 Re の領域において、式(10)と(11)からなる抵抗係数を近似して、数値計算に適用する。この結晶の振動運動の角加速度が 10^2 rad s^{-1} 、結晶厚が $1 \mu\text{m}$ ほどと考えられる。このことから、回転運動のレイノルズ数 Re のオーダーは $Re = 10^{-1} - 10^0$ と見積もられる。また、結晶の並進運動の速度が $10^1 \mu\text{m s}^{-1}$ 、結晶長が $10^1 - 10^2 \mu\text{m}$ であることから、並進運動のレイノルズ数 Re のオーダーは $Re = 10^{-4} - 10^{-3}$ と見積もられる。レイノルズ数 Re が 10^0 より小さいとき、式(10)と(11)は近似的に、

$$C_d = \begin{cases} Z_d/Re & (Z_d = 8, Re = 10^{-1} - 10^0) \\ Z'_d/Re & (Z'_d = 2, Re = 10^{-4} - 10^{-3}) \end{cases} \quad (12)$$

$$C_f = Z_f/Re \quad (Z_f = 1, Re = 10^{-4} - 10^{-3})$$

として表される。この近似の是非についての議論は、考察に示す。

次に、それぞれの板の回転運動の運動方程式におけるパラメータについて述べる。

板 2 の慣性モーメント I_2 、駆動トルク T_s 、抵抗トルク T_{Drot} を以下で表す。

$$I_2 = \frac{1}{3} m_2 b_2^2 \quad (13)$$

$$T_s = \begin{cases} -k_2(\theta_2 - \alpha_2) & \text{平板状態} \rightarrow \text{屈曲状態} \\ -k_2(-\alpha_2) & \text{屈曲状態} \rightarrow \text{平板状態} \end{cases} \quad (14)$$

$$T_{Drot} = \frac{1}{2} \rho \nu Z_d \left(\frac{1}{2} b_1 \dot{\theta}_1 \cos \theta_2 + \frac{1}{3} b_2 (\dot{\theta}_1 + \dot{\theta}_2) \right) b_2^2 w / L \quad (15)$$

板 1 の慣性モーメント I_1 、駆動トルク T_s 、抵抗トルク T_{Drot} はそれぞれ、

$$I = \frac{1}{3} m_1 b_1^2 + \frac{1}{3} m_2 (b_1^2 + 3 b_1 b_2 \cos \theta_2 + 3 b_2^2) \quad (16)$$

$$T_s = \begin{cases} -k_1(\theta_1 - \alpha_1) & \text{平板状態} \rightarrow \text{屈曲状態} \\ -k_1(-\alpha_1) & \text{屈曲状態} \rightarrow \text{平板状態} \end{cases} \quad (17)$$

$$T_{Drot} = \frac{1}{2} \rho \nu \left(\frac{1}{3} Z_d b_1 + Z_f b_2 \sin^2 \theta_2 \right) b_1^2 \dot{\theta}_1 w / L \quad (18)$$

ここで、添字 i は板 i のパラメータについて示し、 m_i は質量、 b_i は板の長さ、 α_i は最大屈曲角度、 θ_i は角度、 k_i はトルクバネのバネ定数、 w は板の幅、 L は連結された全ての板の長さの和を表す。

次に、並進運動の運動方程式を構成するパラメータについて述べる。 Th_i は、回転運動によって板 i に加わる水の粘性抵抗の反力である。また、 D_{transl} は連結された板全体に加わる水平方向の水の粘性抵抗で、水と板との摩擦力と見なすことができる。

$$Th_1 = \frac{1}{4} \rho \nu Z_d \dot{\theta}_1 b_1^2 w (-\sin \theta_1) / L \quad (19)$$

$$Th_2 = \frac{1}{2} \rho \nu Z_d \left(b_1 \dot{\theta}_1 \cos \theta_2 + b_2 (\dot{\theta}_1 + \dot{\theta}_2) \right) b_2 w (-\sin(\theta_1 + \theta_2)) / L \\ + \frac{1}{2} Z_f \rho \nu b_1^2 b_2 w \dot{\theta}_1 \sin \theta_2 \cos(\theta_1 + \theta_2) / L \quad (20)$$

$$D_{transl} = \frac{1}{2} \rho v (Z'_d S_d + Z'_f S_f) \dot{x} \quad (21)$$

ここで、 S_d は、 x 軸に対して垂直な面に投影された板 i の射影面積で、 S_f は、 x 軸に投影された板 i の射影面積である。

$$S_d = \begin{cases} |b_1 \sin \theta_1 + b_2 \sin(\theta_1 + \theta_2)| w & (\theta_1 + \theta_2 \geq 0) \\ |b_2 \sin(\theta_1 + \theta_2)| w & (\theta_1 + \theta_2 < 0, b_1 \sin \theta_1 < b_2 \sin \theta_2) \\ |b_1 \sin \theta_1| w & (\theta_1 + \theta_2 < 0, b_1 \sin \theta_1 \geq b_2 \sin \theta_2) \end{cases} \quad (22)$$

$$S_f = (b_0 + b_1 \cos \theta_1 + b_2 \cos(\theta_1 + \theta_2)) w \quad (23)$$

2.3.3.2 用いたパラメータ値

運動方程式には、以下の **Table 2.1** に示す値を代入して数値計算解を求めた。
なお、それぞれの屈曲方法における変数の初期値および平衡時(力の平衡時)の値を **Table 2.2** に示した。

Table 2.1 数値計算に用いたパラメータ値

パラメータ	値	単位
結晶幅 w	40	[μm]
結晶厚 d	1	[μm]
結晶長 L	100	[μm]
板全体の長さ $b = b_1 + b_2$	10 - 25	[μm]
水・結晶の密度 ρ	10^3	[kg m^{-3}]
板の断面積 S_d	wd	[m^2]
板の表面積 S_f	wb_i	[m^2]
板の質量 m_i	$\rho w d b_i$	[kg]

Table 2.2 各屈曲方法における変数の初期値と平衡時の値

α は平衡時の仰角の大きさを表す。

		平板状態→屈曲状態		平板状態→屈曲状態		
		Step1	Step2	Step3	Step4	
Type-A	θ_1	初期値	0		α	
		平衡値	α		0	
	θ_2	初期値	0		0	
		平衡値	0		0	
Type-B1	θ_1	初期値	0	α	α	0
		平衡値	α	α	0	0
	θ_2	初期値	0	0	α	α
		平衡値	0	α	α	0
Type-B2	θ_1	初期値	0	0	α	α
		平衡値	0	α	α	0
	θ_2	初期値	0	α	α	0
		平衡値	α	α	0	0
Type-C	θ_1	初期値	0		α	
		平衡値	α		0	
	θ_2	初期値	0		α	
		平衡値	α		0	

2.3.4 数値計算結果

2.3.4.1 それぞれのヒレの動き方と1フリップあたりの推進距離

連結された3枚の板の合計の長さが100 μm 、屈曲できる2枚のヒレの長さ(b_1, b_2)のそれぞれの長さが10 μm 、板の幅(w)が40 μm 、板の厚さ(d)が1 μm で、トルクバネの硬さに関わる定数 E を 3×10^3 Pa、最大屈曲角度 α が 30° (Type-A)、 45° (Type-B および C) とした結果を **Table 2.3** および **Figure 2.17**、**Figure 2.19** に示す。

Table 2.3 各屈曲方法における1フリップあたりの遊泳距離

屈曲方法	遊泳距離 / μm		
	平板→屈曲	屈曲→平板	総和 Δx
Type-A	-0.5	+3.0	+2.5 (バタ足型)
Type-B1	-3.1	+4.8	+1.5 (バタ足型)
Type-B2	-4.6	+3.1	-1.5 (バタフライ型)
Type-C	-2.8	+4.5	+1.8 (バタ足型)

どの屈曲方法でも、平板状態から屈曲状態になるときに、連結された板のヒレ方向である x 軸負の方向に移動し、屈曲状態から平板状態になるときに、その逆である x 軸正の方向に移動した。遊泳形態は、その総和の遊泳距離の正負によって決定される。1フリップで遊泳距離が0にならないのは、屈曲するときと平坦化する時とで、推進距離に差があった場合である。この計算では、Type-B2の動きを示す結晶のみが、ヒレを前側にして遊泳するバタフライ型となった。それ以外の遊泳形態では、バタ足型で遊泳した。

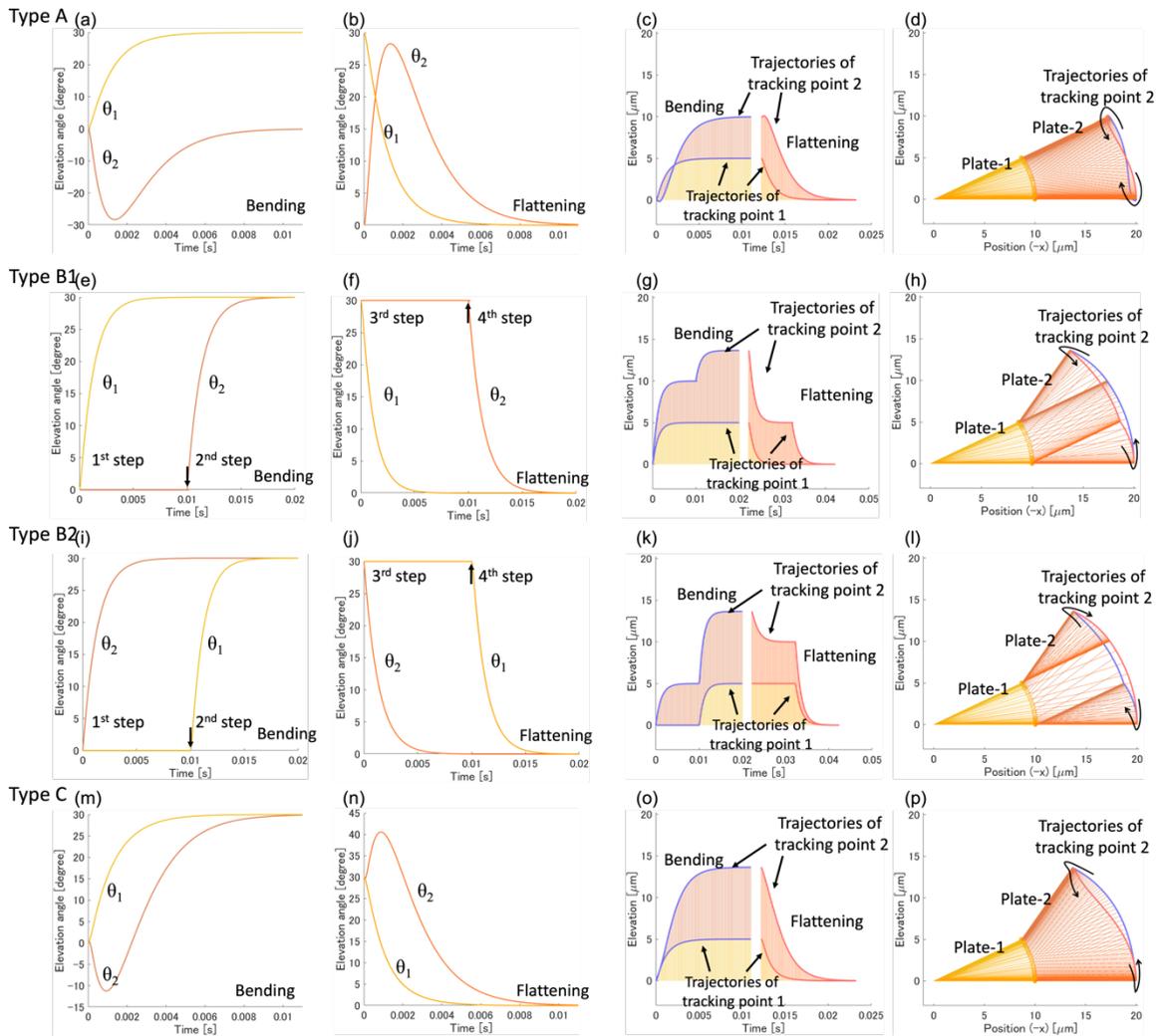


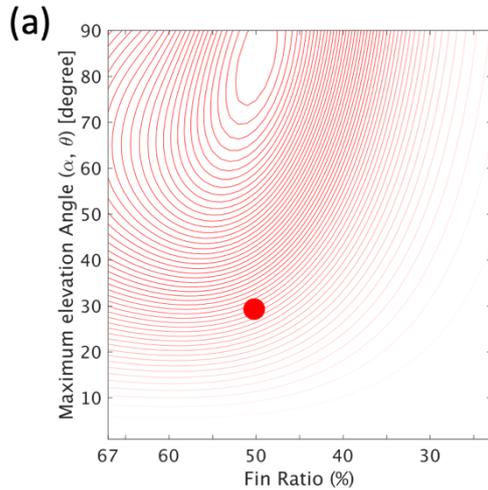
Figure 2.17 各屈曲方法での板1と2の動き方の計算結果

上から順に、Type-A、Type-B1、Type-B2、Type-Cの屈曲方法による板1と2の動きを示した。それぞれの屈曲方法で、左から、平板状態から屈曲状態への変化、屈曲状態から平板状態への変化、それらを連結させた図、板1と2の空間的な動き方を示した。

それぞれの屈曲方法で、板全体の位置 x がどのように変わるかを計算した結果を **Figure 2.19** に示す。板 1 と 2 の長さが等しいとき、Type-A と Type-B1、Type-C は平板状態から屈曲状態になる時の変位より、屈曲状態から平板状態に戻るときの変位が大きかった。すなわち、バタ足型で遊泳した。一方で、Type-B2 は、ほかの屈曲方法とは異なり、平板状態から屈曲状態になる時の変位が大きく、バタフライ型で遊泳した。

Type-C の屈曲方法は、ヒレが連続的に動き、板どうしの折れ曲がり方に無理がない。また、パラメータを振ってもバタ足型しか示さない Type-A(**Figure 2.18(a)**) や Type-B2、バタフライ型しか示さない Type-B1 と違い、Type-C では、条件に応じて、バタ足型とバタフライ型両方の挙動を示した(後述)。以降、主として Type-C の屈曲方法に注目して解析した結果を示すとともに、そのアプローチの妥当性については考察にて示す。

Type-A



Type-C

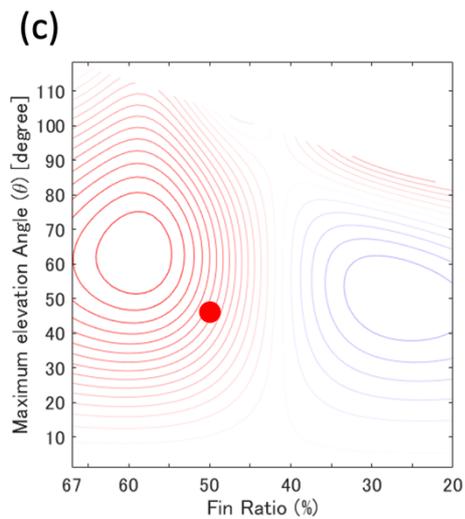
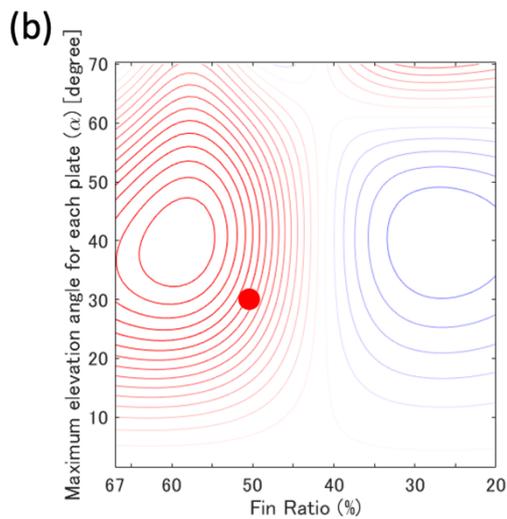


Figure 2.18 板1と2の長さ比と最大屈曲角度による遊泳形態の違い

Type-A と Type-C について、板1と2を合わせたヒレ長は $20\ \mu\text{m}$ で固定し、板1と2の長さの比(Fin Ratio)と屈曲角度を変えたときに、1フリップでの遊泳距離の変化をプロットした。ただし、(a)はType-Aで縦軸は屈曲角、(b)と(c)はType-Cで、縦軸が(b) 最大屈曲角度 α 、(c) 見かけの屈曲角度 θ である。赤線がバタ足型遊泳を、青線がバタフライ型遊泳を示す。それぞれの線の間隔は $0.2\ \mu\text{m}$ の変位を表す。また、図中赤点は Figure 2.19 で示す条件に相当する。

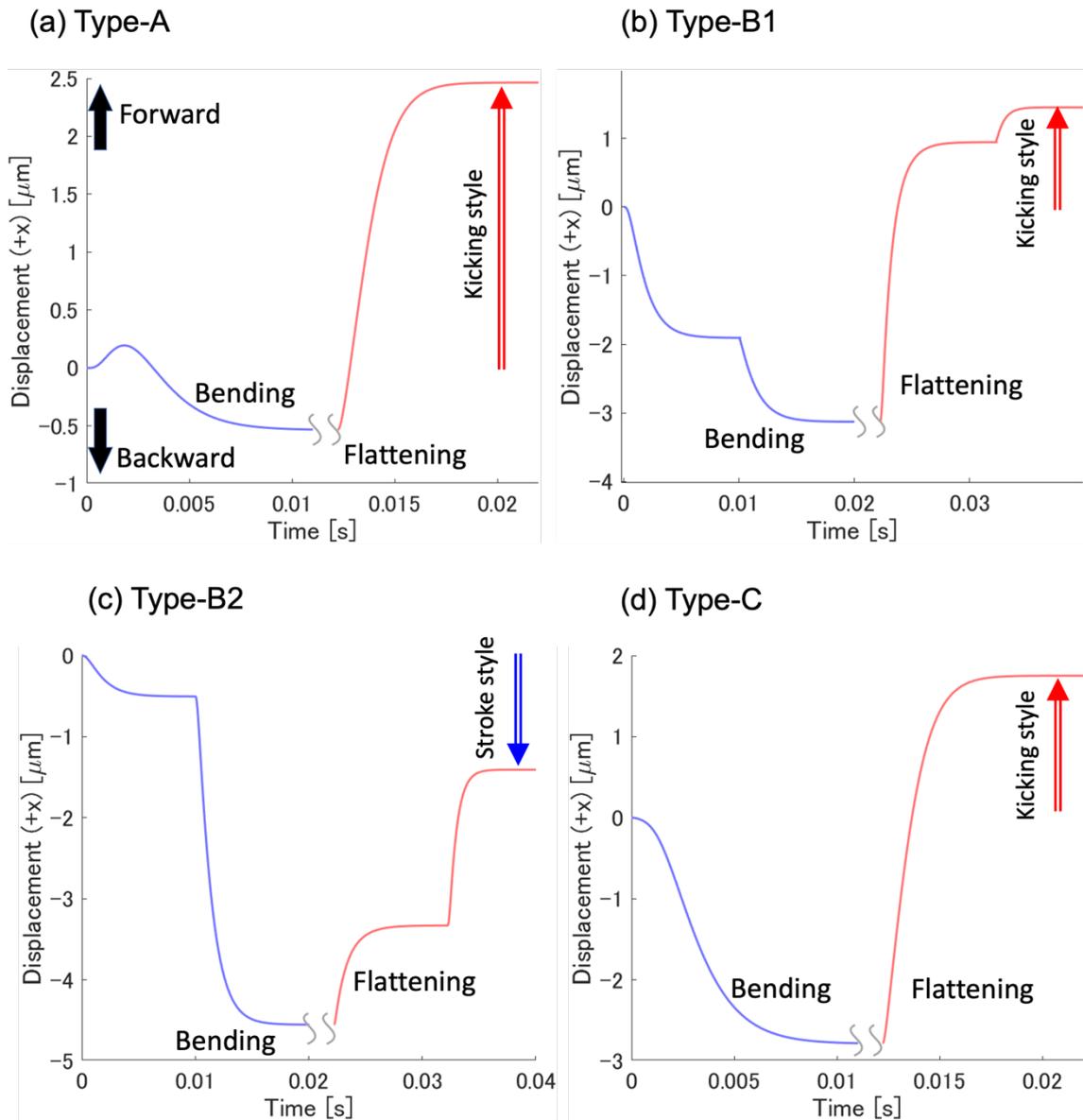


Figure 2.19 各屈曲方法における板全体の水平位置の時間変化

それぞれの屈曲方法について、ヒレ長 $b_1 = b_2 = 10 \mu\text{m}$ 、最大屈曲角度 $\alpha = 30^\circ$ 、トルクバネの硬さに関する定数 $E = 3 \times 10^3 \text{ Pa}$ で計算した。なお、Bending と Flattening はそれぞれ数値計算をして、1枚の図にした。そのため、回転運動が切り替わる部分の時間は省略して表した。

2.3.4.2 板の長さ比の違いによる板の動き方と遊泳形態

これまでは、板 1 と板 2 の長さ(それぞれ b_1, b_2)が等しい場合を考えてきた。次に、板 1 と 2 の長さがそれぞれ異なり、Type-C で板が動く場合、どのような遊泳挙動の違いが生じるかを調べた。板 1 と 2 の長さ比を FR(Fin Ratio)とし、次の式(24)のように定義した。

$$FR = \frac{b_2}{b_1 + b_2} \times 100\% \quad (24)$$

FR が 20%から 67%の範囲について、計算した結果を **Figure 2.18** に示した。なお、FR < 20%では板 2 が、FR > 67%では板 1 と 2 の両方の板が、同じパラメータを用いた計算では、ダンピング型の挙動に近づき、正しく計算できなくなる。また、見かけの仰角が 90°程度までを計算の対象にしたことから、それぞれの板の仰角 α は 70°よりも小さい範囲を計算したということである。

ある FR に対して、板 1 および板 2 の最大屈曲角度 α が 60°を超えない範囲では、遊泳形態は変わらない。一方で、FR の値が 41%よりも大きい場合、バタ足型で、それよりも小さい場合、バタフライ型で遊泳した。FR = 41%付近のとき、屈曲時および平坦化時の変形が時空間的に対称になった。したがって、変形による推進の総和として変位を生み出さないと予想される。実際、並進距離を算出すると、その総和は 0 であった(**Figure 2.20(d)**)。一方で、FR = 36%のとき、板 1 よりも板 2 の長さが短く、水の粘性抵抗を受けにくいいため、板 2 は板 1 に比べて素早く動くことができる(**Figure 2.20 (e), (f)**)。ヒレの先端の板が先に動くことで、結果としてバタフライ型で遊泳した(**Figure 2.20 (h)**)。

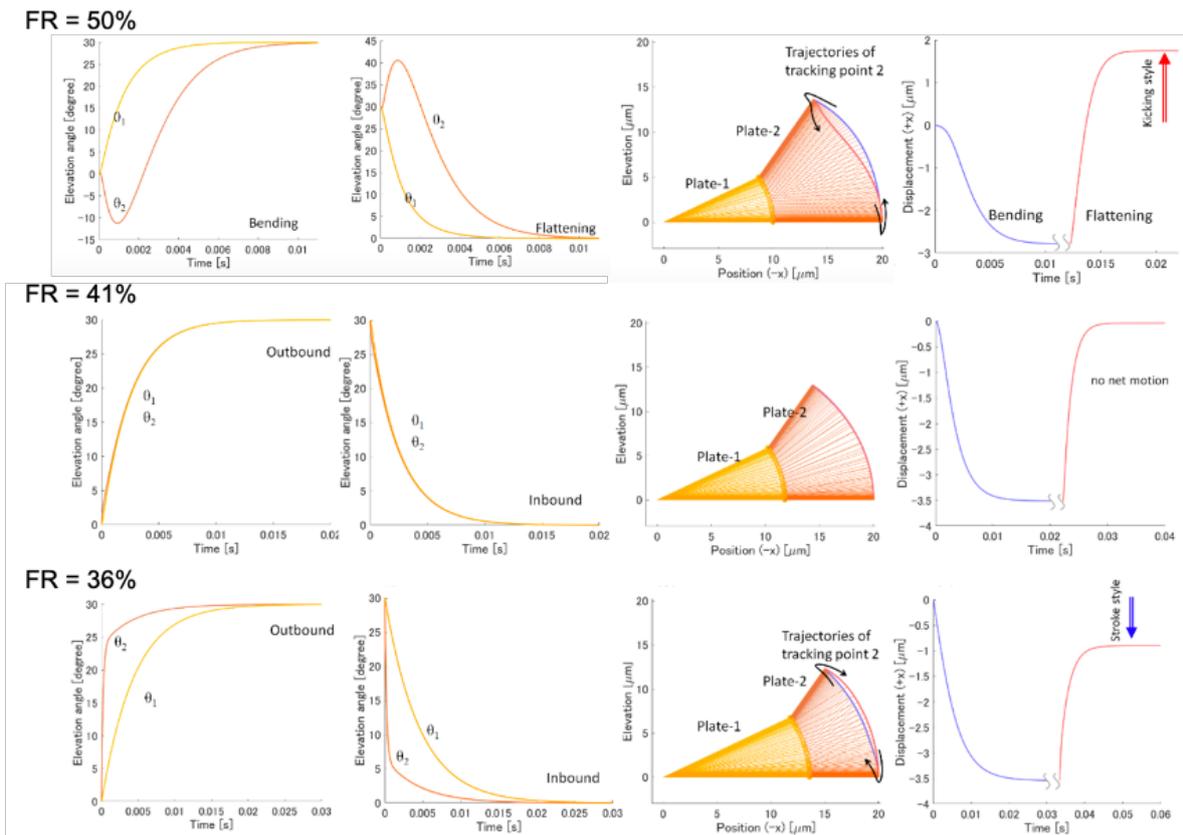


Figure 2.20 異なるFR値での板1と2の動き方と1フリップでの遊泳距離

上段がFR=50%(Figure 2.17、Figure 2.19(d))、中段がFR=41%、下段がFR=36%での計算結果である。それぞれのFR値で左図から平板状態から屈曲状態になるときの板1と2の動き、屈曲状態から平板状態に戻るときの板1と2の動き、板1と2の空間的な動き方、1フリップでの連結された板全体の位置 x の時間変化を示す。

ヒレの長さは、水を掻く量を左右するので、遊泳距離に影響を及ぼした。さらに、ヒレの長さが変わることによって、水から受ける抵抗力の大きさも変わるため、ヒレが運動する時間スケールと2枚の板の間の角度のずれに影響した。一方で、板がダンピングしない限り、トルクバネの硬さに相当する定数 E の値は、1フリップあたりの遊泳距離にほとんど影響がなかった(**Figure 2.2 1**、**Table 2.4**)。これは、慣性項の寄与がほとんどないことを示している。

板の最大屈曲角度が大きいほど、1フリップあたりの遊泳距離が大きいわけではなく、 $30^{\circ}\sim 45^{\circ}$ の間で遊泳距離が最大となった。一方で、FR が大きいとき、ヒレに相当する板の長さ FL(Fin Length)が短いほど、遊泳距離が長く、FR が小さいとき、FL が長いほど、遊泳距離が長かった(**Figure 2.2 2**)。これらは、板1や2に対する、並進運動由来の粘性抵抗が働いていることに由来する。

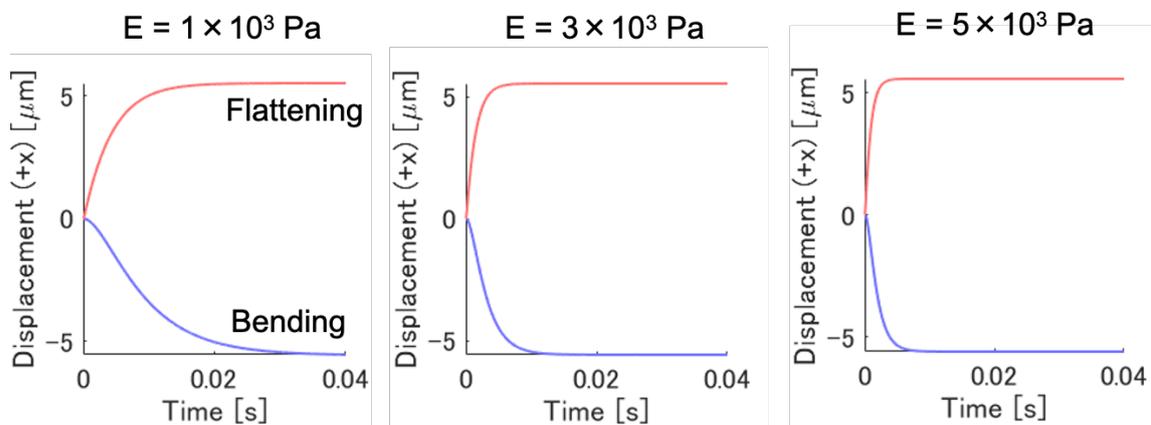


Figure 2.2 1 トルクバネの硬さに相当する定数 E と推進距離

E の値を 1000 Pa、3000 Pa、5000 Pa と変えたときの、板の屈曲(図中青線)および平坦化(図中赤線)で推進した距離を示した。

Table 2.4 トルクバネの硬さに相当する定数 E と推進距離

E / Pa	屈曲時の推進距離 / μm	平坦化時の推進距離 / μm	総和の遊泳距離 / μm
1000	-4.5	+6.6	+2.1 (2.05)
3000	-4.6	+6.6	+2.1 (2.09)
5000	-4.6	+6.7	+2.1 (2.13)

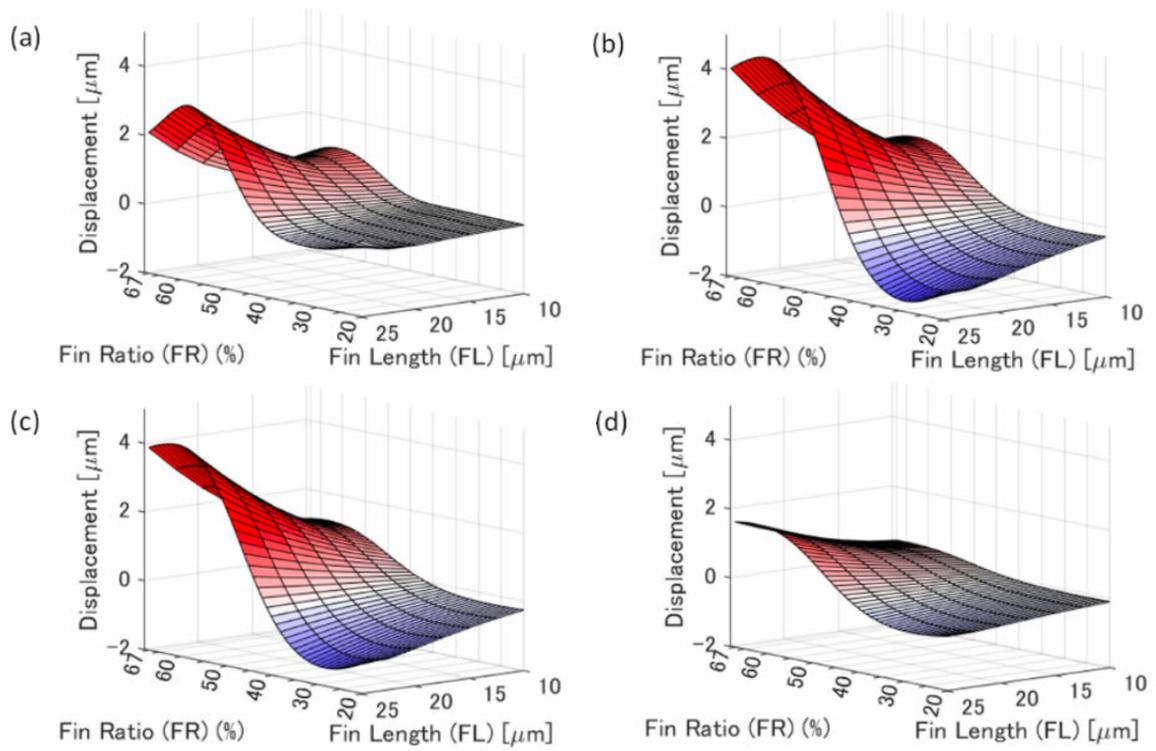


Figure 2.2.2 ヒレに相当する板の長さ(Fin Length, $FL = b_2 / b_1 + b_2$)と板 1 と 2 の長さの比(Fin Ratio, $FR = b_1 + b_2$)に対する 1 フリップあたりの遊泳距離
(a) $\alpha = 60^\circ$, (b) $\alpha = 45^\circ$, (c) $\alpha = 30^\circ$, (d) $\alpha = 15^\circ$ を示す。

以上の検討に基づいて、各ヒレの長さに対する、見かけの屈曲角 θ_{obs} 、ヒレの長さの比、1 フリップ当たりの遊泳距離を **Figure 2.23** に示す。ヒレの長さに依存せず、FR=41%では、1 サイクルでの遊泳距離はゼロと求められた。FR>41%ではバタ足型で泳いだ。FR<41%では、基本的にはバタフライ型で泳ぐ一方、遊泳距離が最大値を取る FR が存在した。さらには、ヒレ長が大きいときには、FR が小さい場合にバタ足型に近づいてくるという結果が得られた。これは、先に平衡に達した板2が板1の回転に伴って、ぐらつく動きを反映したものであり、計算上求められても、粘性支配の実験系では実際には現れない挙動と考えられる。バタフライ型では、見かけの屈曲角 θ_{obs} が 50° 付近のときに、バタ足型では、 θ_{obs} が 60° 付近のとき、最も遊泳距離が大きかった。なお、FR \leq 50% について描画した理由は、実際の結晶の屈曲において、先端部分が曲がりにくく平坦なまま振動運動している様子が観察されなかったためである。

板0の長さは、ヒレに相当する板1と2の回転運動には影響がない。しかし、水から受けるせん断応力(摩擦力)が変化するため、連結された板全体の並進運動に影響を及ぼす。

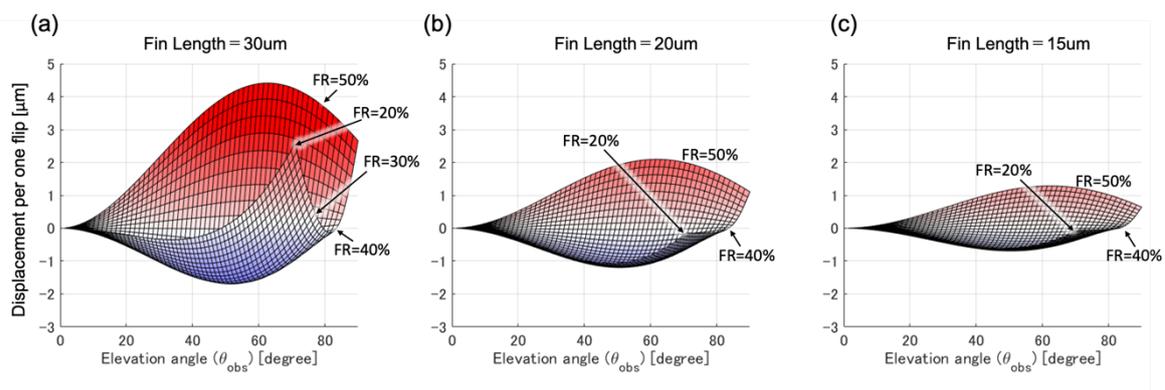


Figure 2.23 見かけの屈曲角と1フリップ当たりの遊泳距離

(a) FL = 30 μm , (b) FL = 20 μm , (c) FL = 15 μm である。

2.4 まとめ

本章では、青色光照射下での振動運動に誘起された薄板状微結晶の水中遊泳の詳細を、顕微鏡観察および動画解析による結果と遊泳モデルの構築とその数値計算の結果の両面から示した。

薄板状微結晶は、その一部分が屈曲および平板になるときに水を押して行ったり来たりした。結晶の変形1サイクルで遊泳した総和の距離は、1フリップで数 μm で体長の1%ほどだった。結晶の振動部分の位置と進行方向の比較から、振動部分を進行方向前側にして遊泳する「バタフライ型」と振動部分が進行方向後方にある「バタ足型」に分類した。それぞれの遊泳形態について、結晶が遊泳している動画を解析した。動画解析によると、バタ足型で遊泳する結晶は、バタフライ型よりヒレが長く、屈曲角度が大きいことが示唆された。それに伴い、1フリップあたりの遊泳距離も大きかった。振動運動による結晶の変形に着目すると、ヒレは、水平面に対して上方か下方のどちらか一方にしか屈曲せず、青色光照射方向に依らなかった。結晶を効率よく遊泳させるために、いくつかのコントロール実験を行なったが、遊泳した結晶が明確に増えたとは断定できなかった。

次に、上下方向に制約をかけた薄い水槽の中を泳ぐ、3枚の板がトルクバネで連結されたモデルを、自律遊泳する結晶のシンプルモデルとして考えた。このモデルの動きについては、2枚の板からなるヒレの板の動きに応じて、4タイプ仮定し計算した。そのうち、ヒレを構成する2枚の板が同時にトルクバネの力で動き出すType-Cの動き方によって、実際の結晶で観察された、進行方向に多様性が生じた結果を再現した。これは、ヒレを構成する2枚の板の長さの比を変化させたときの計算結果で説明できた。先端の板が長いと粘性抵抗を大きく受けてその動きが遅れ、バタ足型で遊泳した。根元の板が長いと、先端の板は根元より先に動くため、バタフライ型で遊泳した。このように、ヒ

レを構成する2枚の板の長さの比によって、遊泳形態を区別することができた。

また、ヒレが長ければ、計算された1フリップ当たりの遊泳距離が概して大きくなる傾向が見られた一方、ヒレの長さ比FRや屈曲角依存性が大きく、一般化して述べられないことがわかった。具体的には、FRが41%よりも大きいとき、バタ足型で泳ぎ、その遊泳距離はヒレが長く屈曲角が60°程度で最大になることが計算された。一方で、FRが41%よりも小さいときに観測されるバタフライ型では、それに適した屈曲角は50°程度であった。他方、それに適したFRはヒレ長に大きく依存した。

第3章 考察

3.1 緒言

序論に記したとおり、小さな物体は、水中で、その剛体を変形させることで泳ぐことはできないと考えられてきた。これに対して、本研究で対象にした結晶は、屈曲するときに後退、平坦化するときに前進して、その振動運動で水を掻きながら、総和として一方向に遊泳した。本論文では、実験で観察された遊泳挙動について、その粗視化モデルについて数値解析することで、遊泳を実現した仕組みを理解することを目指している。本章では、まず実験で観察された結果を整理した上で、構築した粗視化モデルの妥当性を議論するとともに、数値解析結果と実験結果の整合性の評価を行う。

3.2 結晶の形状と遊泳形態

結晶は、屈曲するときに後退、平坦化するときに前進して、その振動運動で水を掻きながら、総和として一方向に遊泳した。顕微鏡を用いて結晶を観察すると、結晶は重ならない薄板状ではなく、結晶が重なり合って積層しているように見えた。結晶が重なっている部分は、屈曲・平坦化の変形を示しにくく、変形してもその屈曲角 θ_{obs} は僅かであった。一方で、結晶の重なりが少なく、なおかつ厚さが薄い部分については、屈曲角 θ_{obs} が大きかった。

顕微鏡観察の結果、本研究で対象にした結晶は、青色光照射方向によらず、水平面に対して片方向にのみ屈曲した(**Figure 2.1 3**)。これは、光の照射方向を認識して屈曲するポリマー^{30,74,75}や結晶⁷⁶とは異なり、振動運動する結晶の空間群が $P1$ であり⁷¹、結晶の裏と表が区別できるためであると推察される。

次に、ヒレの長さや遊泳運動について述べる。**Figure 2.1 2**より、見かけの屈曲角 θ_{obs} がおよそ 10° 以下、または、ヒレ長 b がおよそ $3 \mu\text{m}$ 以下である遊泳結晶を観察することができなかった。水を掻く量が少なく、明確に水中を遊泳することができないことを示している。

遊泳方向を決定するパラメータについて考える。遊泳方向は、ヒレ長 b や見かけの屈曲角 θ_{obs} そのものの大小だけでは、決定できなかった。**(Figure 2.8、Figure 2.1 0、Figure 2.1 1、Figure 2.1 2)**。一方で、**Figure 2.1 0(b)**からは、バタ足型は、ヒレ長 b が $10 \mu\text{m}$ 以上の長さで、なおかつ屈曲角 θ_{obs} が大きい結晶に限って観察された。また、ヒレ長 b が $10 \mu\text{m}$ 以上の長いものについては屈曲角 θ_{obs} が小さい結晶がバタフライ型遊泳を示した。それとともに、屈曲角の大小を問わず、ヒレ長 b が $10 \mu\text{m}$ 未満のものについては、バタフライ型遊泳を示した。なお、上述の通り、屈曲角 θ_{obs} は、ヒレの厚さや結晶の重なり具合に依存したパラメータである。このように、遊泳方向を決定づける要因は、複数のパラメータの組み合わせで決まると推定された。

一方で、遊泳方向を特徴づける要因として、結晶構造が異なることや結晶組成が異なる可能性も考えられる。しかし、振動する結晶を含む分散液の粉末 X 線回折測定からは、振動を示す結晶の結晶構造は一つしか見つかっていない。すなわち、バタ足型の結晶もバタフライ型の結晶も同じ結晶構造を有していると考えられる。なお、**1**と**2**の共結晶の単結晶 X 線構造解析には成功していない。

3.3 粗視化モデルの妥当性

粗視化モデルと、そこに適用する運動方程式について、その妥当性を検討する。

粗視化モデルは、3枚の板が2つのトルクバネで繋がったモデルを考え、その板の回転は、屈曲時に屈曲角が特定の方向、すなわち正になる方向の挙動のみを検討した。遊泳体を、剛体3つを2つのばねで結合したモデルをミニマムモデルとして考えることは、Purcellが帆立貝定理を説明した講演以降、一般的に受け入れられている^{67,68}。

次に、モデルの動きについての計算では、ニュートンの運動方程式を適用した。これは、慣性が働く系での物体の運動を記述する式である。物体に働く力が推進力 Th と、速度 v に依存する抵抗 $D(v)$ で表されるとき、ニュートンの運動方程式は、

$$F - D(v) = m \frac{dv}{dt} \quad (25)$$

として表される。ここで、 m は慣性質量である。慣性力が全く働かない系では、慣性質量がゼロとみなされ、推進力と抵抗について、

$$F = D(v) \quad (26)$$

が成立する。この式をもって、速度 v 、すなわちモデルの動きを計算することになる。本研究では、慣性的な動きを示しにくい系である一方で、慣性力が全く働かないということではないため、以下の二つの挙動が観察された。

- (1) **Figure 2.5** から、同一の結晶が水を掻く量は常に一定ではなかった。振動運動の振動数が小さいときには、その一掻きで多くの水を掻き、振動数が大きいときは、水を掻く量が少ない。これは、結晶の変形が速いとき、周囲の水をうまく捉えられず、効率的に水を掻くことができていないことを表しており、慣性的な振る舞いが介在している事実を示している。

(2) 結晶がフリップを完了した直後にも、僅かな時間ながら結晶が並進していた (Figure 2.4)。

また、フリップにかかる所要時間がミリ秒スケールである⁷⁰ことを考えると、ヒレ部分の回転運動速度は、およそ 10^3 rad s^{-1} まで到達しており、結晶の厚さを $1 \mu\text{m}$ 、ヒレ長を $10 \mu\text{m}$ と見積もれば、そのレイノルズ数は、 10^{-2} であることから、粘性抵抗が主に働く実験系でありながら、慣性力が全く働かないわけではない。Figure 2.2 1 および Table 2.4 が示すとおり、トルクバネが 5 倍硬くなり板の回転速度が増大した場合でも、慣性のわずかな効果があるため、遊泳距離が 3.9% 増加した。このようなことから、慣性項を無視することなく、運動方程式を解くことが妥当であると考えられる。一方で、慣性項を入れた計算では、働く力のバランスが崩れているときに、ダンピングが現れる場合がある。そのような挙動は、実験では観察されていないことから、モデル計算における各パラメータの設定値を、ダンピングが現れない範囲を有効範囲に制限した。

本研究では、運動方程式の立式において、板 1 が板 0 に加える力のうち、板 0 の鉛直方向成分を無視した。これは、板 0 が、その遊泳運動中に上下方向に動かないという仮定に基づく立式である、本研究では、この仮定によって、帆立貝定理が働くことを避けた計算をしている。この効果が総和としての前後方向の動きを実現しており、もしも、上下方向の力が働く場合には、総和としての並進距離はほぼゼロになる。実験において、結晶の有意な浮上・沈降の動きが見られなかったことを理由にした仮定であるが、この妥当性については、議論の余地が残される。この議論については、本節の最後に譲る。

板を 3 枚、バネを 2 個連結した粗視化モデルの動き方として、Type-A、Type-B1、Type-B2、Type-C の 4 つが考えられる。このうち、Type-A は、常にバタ足型の遊泳が算出される (Figure 2.1 8 (a)) ことから、実験事実をうまくモデル化できていないと言える。折れ曲がり開始のタイミングが、二箇所ヒンジで異なることを前提とした Type-

B1 と B2 は、それぞれバタフライ型・バタ足型の遊泳を示す。結晶によって B1、B2 のいずれかの挙動を示す、という解釈をした場合、Type-B は、結晶の運動を再現する数理モデルと言えるかもしれない。しかしながら、折れ曲がりのタイミングがずれているという証拠がないほか、結晶によって末端側から折れ曲がり始めるものと中心部から折れ曲がり始めるものがある、とする考え方は、有意性のある考え方ではない。これに対して、結晶の僅かな構造の違いだけでバタ足型・バタフライ型が切り替わる結果が得られた Type-C の動きが、実際の結晶の動きをよく反映していると考えられる。なお、Type-C は、結晶全体で相転移が一斉に起こると仮定したモデルであり、その仮定を覆す実験的証拠は、現在のところ見つかっていない。

Type-C の動きを見せるモデルにおける、ヒレ長、ヒレの比、屈曲角の関係を **Figure 2.2 3** に示した。実際に遊泳した結晶の解析結果である **Figure 2.1 2(a)** と比較すると、どちらの遊泳形態においても、屈曲角と遊泳距離の関係と合致している。したがって、モデルを設定するにあたって導入した、結晶が上下方向には動かないという仮定は、妥当であったと考えられる。逆に言えば、本研究で対象にしたマイクロサイズの結晶の遊泳運動の鍵は、結晶が上下方向に動かないことが鍵であると言える。

第4章 結論・総括

今世紀に入り、生き物を模倣した自律的な仕組みにより、水を掻き推進する”microbot”の創出に関する研究が盛んに行われてきた。微小な物体が遊泳ということは、力学的に自明ではないことから、本論文では、青色光照射下で自励振動する薄板状でマイクロメートルオーダーの結晶を利用して、その結晶がどのように遊泳するのか理解しようとした。本章では、第1章で述べたマイクロサイズの物体がその変形によって水を掻く遊泳を生み出す際に乗り越えなければならない条件と、2章で述べた結果および3章の考察を総括する。

第1章では、ミリメートルに満たないサイズの”microbot”の実現に向けた課題として、次の2点を挙げた。1点目は、ボトムアップで作製したマイクロサイズの物体を自律駆動させる必要である点である。2点目は、マイクロサイズの物体をその変形によって水中で推進させるためには、周囲の水の粘性抵抗の時空間的非対称性を生み出さなければならない点である。この2点が理由で、マイクロサイズの物体を自律的に遊泳させることは、困難とされ、報告例がなかった。一方、池上らは、自励振動するマイクロサイズの結晶を報告した。これにより、1点目の課題は解決された。そこで、本研究では、このマイクロサイズの結晶を用いて、粘性支配的な水中をその変形によって遊泳させようとした。

第2章では、本研究で対象とした青色光照射下での自励振動により駆動する薄板状微結晶の水中での遊泳運動について、顕微鏡観察による解析結果と、粗視化モデルを用いた数値計算結果の詳細を述べた。微結晶は、青色光照射下で、自律的に振動運動をした。顕微鏡観察の結果、結晶は、屈曲するとき水を掻いて後退、平坦化するとき前進して、その変形の総和として一方向に遊泳した。結晶の顕微鏡観察による動画解析から、結晶の振動運動と遊泳方向を2種類に分類することができた。結晶の進行方向の前側が振動する「バタフライ型」遊泳と、結晶の進行方向の後ろ側が振動する「バタ足型」遊

泳である。次に、遊泳方向を決定するパラメータを解析した。ヒレ長 b と見かけの屈曲角 θ_{obs} の違いにより、異なる遊泳方向を示す結晶の分布に差があった。次に、この遊泳運動に仮定をおいた粗視化モデルを立て、粘性支配的な流体中における推進を理解しようとした。粗視化モデルには、板 3 枚を 2 個のトルクバネで連結したモデルを設定した。「結晶の上下方向の動きが制限」、「板は片方向にのみ屈曲」、「慣性項はわずかに働く」という実験結果に基づいた仮定をすることで、モデル結晶は粘性支配的な流体を板の変形によって遊泳した。結晶の変形を想定した板の回転運動と遊泳方向を数値計算した。2 つのトルクバネの稼働方法により、遊泳方向に違いが出ることを示した。そのうち、回転運動する 2 枚の板の長さの比で、遊泳方向を制御することができた稼働方法で、さらに詳細な数値計算をした。その結果、根元にある板 1 の長さが短いとバタ足型で、先端にある板 2 の長さが短いとバタフライ型で遊泳することが示された。

第 3 章では、第 2 章で述べた結晶の遊泳運動の観察結果と、モデルによる数値計算結果を統合して考察した。結晶の遊泳方向は、ヒレ長 b および屈曲角 θ_{obs} のみによって、決まるわけではなく、結晶の厚みなどの形状に関する他のパラメータとともに考える必要があると推測された。また、数値計算において、板の上下方向の運動を制限し、わずかに慣性項を考慮することで、対象としたマイクロサイズの結晶の遊泳運動を再現した。モデルにおける板の回転運動の順序を検討したところ、2 個のトルクバネが同時に稼働するモデルでは、回転する 2 枚の板の長さの比で遊泳方向を制御できた。このことから、遊泳方向は、粘性抵抗で決まるヒレの変形の形式によって決まることが示唆された。

本論文では、粘性支配的な環境で、自律的に振動運動をして薄板状のマイクロサイズ結晶の遊泳運動を実現し、遊泳方向を決定する要因を推定した。これまでの microbot を遊泳させる研究は、その形状や動きを非対称にする、あるいは外部から働かせる力を非対称にするという設計指針だった。それに対して、本論文では、粘性支配的な流体中で上

下方向の空間的な制限を設けることで、微小な結晶が遊泳した。つまり、対称な動き方、東方的なエネルギーの供給下であっても、一方向の遊泳を実現できた。これは、微小物体の形状や場を追究せずとも、物体の周囲の環境に制限を設けるだけで微小物体が遊泳する、microbot 創出のための新しい設計指針である。

第5章 補遺

5.1 実験の部

薄板状自励振動結晶の調製

オレイン酸ナトリウム（東京化成工業, 2.1 mg, 5.8 μmol ）と 6-[4-(4-*n*-ブチルフェニルアゾ)フェノキシ]ヘキサン酸（C4AC6, 景山博士合成, 2.6 mg, 8.7 μmol ）を 5 mL バイアルに入れ、水酸化ナトリウム水溶液（58 μL , 100 mM）を加えた。次に、pH 7.5 のリン酸ナトリウム緩衝液（1.94 mL, 75 mM）を加えてから、55 °C で 30 分間超音波を照射した。得られた分散液を、25 °C に設定した恒温室で 1 晩以上熟成した。

結晶が生成した分散液 135 μL を、2 枚のガラス板（松浪硝子工業、NEO カバーガラス No.1, 25 mm \times 50 mm, ガラス厚 0.13 – 0.17 mm）に挟んだフレームシール（BIO-RAD, 17 mm \times 28 mm, 内側容量 125 μL ）内に封入し、プレパラートを作成した。このプレパラートを顕微鏡観察に使用した。

結晶の遊泳運動の顕微鏡観察

微分干渉偏光顕微鏡（Nikon、Ti-U ECLIPSE）を観察に用いた。対物レンズとして、Nikon Plan Fluor ELWD 20 \times (NA 0.45)を用いた。青色光の光源として、高圧水銀灯（Nikon、C-HGFI）を用いた。バンドパスフィルタを用い、照射光の波長を 435 nm（Nikon、BV-1A）、または 420–490 nm（Nikon、B-3A）にした。照射光量の調整には、ニュートラルデンシティフィルタを用い、光量を 1/1、1/4、1/8、1/32 倍にし、1 つの結晶に対して各光量を照射して、遊泳運動を観察した。対象物を含んだ視野を記録するために、カラーカメラ（SENTECH、STC-TC152USB-AS または、OMRON SENTECH、STC-MCE132U3V）

を用いた。動画のフレームレートを 19.3 fps に設定して記録した。

遊泳運動の動画解析

画像解析ソフトウェアである Image Pro Premiere (Media Cybernetics 社) を用いて解析した。振動運動の時間変化には、結晶の振動部分の輝度の時間変化を用いた。結晶の遊泳運動の解析のために、それぞれの結晶の特徴的な構造に注目して 1 フレームごとに動体追跡をした。結晶形状に関するパラメータ (結晶長、結晶面積、ヒレ長、ヒレ面積) を、撮影された動画および画像をソフトウェア上で測定した

遊泳運動モデルの解析方法

それぞれの Type について、常微分方程式を記述し、数値計算ソフトウェアである MATLAB R2020a または 2020b (MathWorks 社) を用いて、数値計算を行った。常微分方程式の数値計算には、ode45 ソルバー を用いた。いずれにおいても、角速度 $\dot{\theta}_i$ と並進移動速度 \dot{x} の初期値は 0 とした。また、計算した時間スパン T は、全ての変数 ($\theta_i, \dot{\theta}_i, x, \dot{x}$) の値がほとんど計算で十分に飽和する値 ($E = 3000 \text{ Pa}$ のときに、0.1 sec) を標準的に用いた。

5.2 数値計算に用いたソースコード

5.2.1 パラメータ設定

```
function data = set_data()

data.t = 0.1;
data.time = [0 data.t] ; % シミュレーション時間

data.Zd = 8;
data.Zf = 1;
data.Zdt = 2;

data.l = 1*10(-4) ; % 結晶の長さ[m]
data.w = 4*10(-5) ; % 結晶幅[m]
data.d = 1*10(-6) ; % 結晶厚さ[m]

data.rho = 103 ; % 水の密度[kg/m3] = 結晶の密度[kg/m3]
data.m = data.l * data.w * data.d * data.rho ; % 結晶質量 [kg]
data.nu = 10(-6) ;

data.L = 40*10(-6) ;

end
```

5.2.2 平板状態から屈曲状態

```
function dydtval = BendingODE(t, y, FinL, FLR, maxangle, E, data)
% Outbound (bending motion)
% FinL: total fin length
% FLR: Fin Length Ratio (Length of fin-2 against the total fin length)
% alpha: maximum elevation angle
% E: Apparent Young's Modulus

% Loading of Initial Parameters
data = set_data();
% Parameters for media
Zd = data.Zd;      % coeff. Zd
Zdt = data.Zdt;   % coeff. Zd'
Zf = data.Zf;     % coeff. Zf
nu = data.nu;     % coeff. kinematic viscosity [m^2/s]
rho = data.rho;   % density of media and object [kg/m^3]

% Parameters for shape of the object (1) Outline of the object
l = data.l;       % length of the object [m]
w = data.w;       % width of the object [m]
d = data.d;       % thickness of the object [m]
% Parameters for shape of the object (2) Variables for the loop
b1 = FinL*FLR;    % Length of Fin-1 [m]
b2 = FinL-b1;    % Length of Fin-2 [m]
b0 = l - b1 - b2; % Length of the main body (panel-0) [m]
m0 = b0*w*d*rho; % Mass of the main body [kg] *
m1 = b1*w*d*rho; % Mass of the panel-1 [kg] *
m2 = b2*w*d*rho; % Mass of the panel-2 [kg] *
m = m0+m1+m2;    % total Mass of the body [kg] *
k1=E*(w*d^3/12)/b1; % Spring Constant of the spring-1
k2=E*(w*d^3/12)/b2; % Spring Constant of the spring-2

L = data.L;      % "Representative Length"

% Parameters for the rotating motion: Variables
maxangle;        % Maximum angle [degree] (Int)
```

```

theta2f = maxangle*pi/180; % Maximum angle [rad] for spring-2
theta1f = maxangle*pi/180; % Maximum angle [rad] for spring-1
theta2 =y(1) ; % angle(spring-2) [rad] [calculated value]
theta1 =y(3) ; % angle(spring-1) [rad] [calculated value]
omega2=y(2) ; % vel-in-rot for spring-2 [rad/s] [calculated value]
omega1=y(4) ; % vel-in-rot for spring-1 [rad/s] [calculated value]
xposition=y(5) ; % position of the object on x-axis [m]
xvelocity=y(6) ; % velocity for translation [m/s]

% *****
% Calculation Equations Revision_07/18
% *****

% frequently using constant
nrL = nu/L*rho;
% shape for calculation of inertia moment
S1 = b1^2+3*b1*b2*cos(theta2)+3*b2^2 ;

% EOM for the Rotation of the panel-1
I1 = (1/3)*m1*(b1)^2+(1/3)*m2*S1 ; % Moment of inertia *
Drot1 = -1/4*Zd*nrL*w*omega1*b1^2; % Sum of viscositic drag (perpendicular
component)
Tor1a = -(Zd/2)*nrL*(1/3)*w*omega1*b1^3; % Torque by viscositic drag
Tor1b = +(Zf/2)*nrL*w*b1^2*b2*omega1*(sin(theta2))^2 ; % Torque due to taking the
panel-2 (a component of the viscositic drag for panel-2)
Tor1 = Tor1a+Tor1b; % Sum of the Torques on panel-1
% The drag on panel-1 by the translational motion of the object is ignored.
Thr1 = Drot1 * (sin(theta1)); % x-comonent of the Sum of the Drag

% EOM for the rotation of the panel-2
I2 = (1/3)*m2*(b2)^2; % Moment of inertia *
Drot2 = -(Zd/2)*nrL*w*(b1*b2*omega1*cos(theta2)+(1/2)*b2^2*(omega1+omega2)); %
viscositic drag (perpendicular component)
Drot2p = -(Zf/2)*nrL*w*(b1*b2*omega1*sin(theta2)); % viscositic drag (parallel
component)

```

```

Tor2 = -
(Zd/2)*nrL*w*((1/2)*b1*b2^2*omega1*cos(theta2)+(1/3)*b2^3*(omega1+omega2)); % Torque
by viscositic drag
% The drag on panel-2 by the translational motio of the object is ignored.
Thr2 = Drot2 * (sin(theta1+theta2)) + Drot2p * (cos(theta1+theta2)) ; % x-
component of the sum of the drag.

%%%%%
% In this process, inertia (mass) is including.
%%%%%

% Translation of the object
% Sd: Calculation out "the area of the projection" (cross-sectional)
if (theta1+theta2)>0
    Sd = abs(b1*sin(theta1)+b2*sin(theta1+theta2))*w ;
elseif(b1*sin(theta1)<b2*sin(theta2))
    Sd = abs(b2*sin(theta1+theta2))*w ;
else
    Sd = abs(b1*sin(theta1))*w ;
end
Sf = w*(b0+b1*cos(theta1)+b2*cos(theta1+theta2)); % calculation of the area of the
projection (top-view)
Dtrans = (1/2)*nrL*xvelocity*(Zdt*Sd+Zf*Sf) ; % EOM

% ODE
dydtval = [omega2; % definition
(k2*(theta2f-theta2)+Tor2)/I2; % EOM
omega1; % definition
(k1*(theta1f-theta1)+Tor1)/I1; % EOM
xvelocity; % definition
(Thr1+Thr2 - Dtrans)/m]; % Under an asumption that the springs are
rigid.

```

5.2.3 屈曲状態から平板状態

```
function dydtval = FlattenODE(t, y, FinL, FLR, maxangle, E, data)
% Inbound (flatten motion)
% FinL: total fin length
% FLR: Fin Length Ratio (Length of fin-2 against the total fin length)
% alpha: maximum elevation angle
% E: Young's Modulus

% Loading of Initial Parameters
data = set_data();
% Parameters for media
Zd = data.Zd;      % coeff. Zd
Zdt = data.Zdt;   % coeff. Zd'
Zf = data.Zf;     % coeff. Zf
nu = data.nu ;    % coeff. kinematic viscosity [m^2/s]
rho = data.rho;   % density of media and object [kg/m^3]

% Parameters for shape of the object (1) Outline of the object
l = data.l ;      % length of the object [m]
w = data.w ;      % width of the object [m]
d = data.d ;      % thickness of the object [m]
% Parameters for shape of the object (2) Variables for the loop
b1 = FinL*FLR ;   % Length of Fin-1 [m]
b2 = FinL-b1 ;    % Length of Fin-2 [m]
b0 = l - b1 - b2; % Length of the main body (panel-0) [m]
m0 = b0*w*d*rho ; % Mass of the main body [kg] *
m1 = b1*w*d*rho ; % Mass of the panel-1 [kg] *
m2 = b2*w*d*rho ; % Mass of the panel-2 [kg] *
m = m0+m1+m2 ;    % total Mass of the body [kg] *
k1=E*(w*d^3/12)/b1 ; % Spring Constant of the spring-1
k2=E*(w*d^3/12)/b2 ; % Spring Constant of the spring-2

L = data.L ;      % "Representative Length"

% Parameters for the rotating motion: Variables
maxangle ;        % Maximum angle [degree] (Int)
```

```

theta2f = 0;           % Equiv. angle [rad] for spring-2
theta1f = 0;           % Equiv. angle [rad] for spring-1
theta2 =y(1) ;         % angle(spring-2) [rad] [calculated value]
theta1 =y(3) ;         % angle(spring-1) [rad] [calculated value]
omega2=y(2) ;          % vel-in-rot for spring-2 [rad/s] [calculated value]
omega1=y(4) ;          % vel-in-rot for spring-1 [rad/s] [calculated value]
xposition=y(5) ;       % position of the object on x-axis [m]
xvelocity=y(6) ;       % velocity for translation [m/s]

% *****
% Calculation Equations Revision_07/18
% *****

% frequently using constant
nrL = nu/L*rho;
% shape for calculation of inertia moment
S1 = b1^2+3*b1*b2*cos(theta2)+3*b2^2 ;

% EOM for the Rotation of the panel-1
I1 = (1/3)*m1*(b1)^2+(1/3)*m2*S1 ;      % Moment of inertia *
Drot1 = -1/4*Zd*nrL*w*omega1*b1^2;     % Sum of viscositic drag (perpendicular
component)
Tor1a = -(Zd/2)*nrL*(1/3)*w*omega1*b1^3; % Torque by viscositic drag
Tor1b = +(Zf/2)*nrL*w*b1^2*b2*omega1*(sin(theta2))^2 ; % Torque due to taking the
panel-2 (a component of the viscositic drag for panel-2)
Tor1 = Tor1a+Tor1b;                     % Sum of the Torques on panel-1
% The drag on panel-1 by the translational motion of the object is ignored.
Thr1 = Drot1 * (sin(theta1));           % x-comonent of the Sum of the Drag

% EOM for the rotation of the panel-2
I2 = (1/3)*m2*(b2)^2;                   % Moment of inertia *
Drot2 = -(Zd/2)*nrL*w*(b1*b2*omega1*cos(theta2)+(1/2)*b2^2*(omega1+omega2)); %
viscositic drag (perpendicular component)
Drot2p = -(Zf/2)*nrL*w*(b1*b2*omega1*sin(theta2)); % viscositic drag (parallel
component)

```

```

Tor2 = -
(Zd/2)*nrL*w*((1/2)*b1*b2^2*omega1*cos(theta2)+(1/3)*b2^3*(omega1+omega2)); % Torque
by viscositic drag
% The drag on panel-2 by the translational motio of the object is ignored.
Thr2 = Drot2 * (sin(theta1+theta2)) + Drot2p * (cos(theta1+theta2)) ; % x-
component of the sum of the drag.

%%%%%
% In this process, inertia (mass) is including.
%%%%%

% Translation of the object
% Sd: Calculation out "the area of the projection" (cross-sectional)
if (theta1+theta2)>0
    Sd = abs(b1*sin(theta1)+b2*sin(theta1+theta2))*w ;
elseif(b1*sin(theta1)<b2*sin(theta2))
    Sd = abs(b2*sin(theta1+theta2))*w ;
else
    Sd = abs(b1*sin(theta1))*w ;
end
Sf = w*(b0+b1*cos(theta1)+b2*cos(theta1+theta2)); % calculation of the area of the
projection (top-view)
Dtrans = (1/2)*nrL*xvelocity*(Zdt*Sd+Zf*Sf) ; % EOM

% ODE
dydtval = [omega2; % definition
(k2*(theta2f-theta2)+Tor2)/I2; % EOM
omega1; % definition
(k1*(theta1f-theta1)+Tor1)/I1; % EOM
xvelocity; % definition
(Thr1+Thr2 - Dtrans)/m]; % Under an asumption that the springs are
rigid.

```

参考文献

- 1 Palagi, S. , Fischer, P. Bioinspired microrobots. *Nature Reviews Materials* **3**, 113 (2018).
- 2 Nelson, B. J., Kaliakatsos, I. K. , Abbott, J. J. Microrobots for minimally invasive medicine. *Annual review of biomedical engineering* **12**, 55-85 (2010).
- 3 Hines, L., Petersen, K., Lum, G. Z. , Sitti, M. Soft actuators for small - scale robotics. *Advanced materials* **29**, 1603483 (2017).
- 4 Feynman, R. Infinitesimal machinery. *Journal of Microelectromechanical Systems* **2**, 4-14 (1993).
- 5 Gompper, G. *et al.* The 2020 motile active matter roadmap. *Journal of Physics: Condensed Matter* **32**, 193001 (2020).
- 6 東昭. 生物の動きの事典. (朝倉書店, 2018).
- 7 田中一朗 , 永井實. 抵抗と推進の流体力学. (シップ・アンド・オーシャン財団, 1996).
- 8 日本化学会. 新実験化学講座. (丸善, 1975).
- 9 Childress, S. *Mechanics of swimming and flying*. Vol. 2 (Cambridge University Press, 1981).
- 10 谷下一夫 , 山口隆美. 生物流体力学. (朝倉書店, 2012).
- 11 佐野理. 連続体の力学. (裳華房, 2000).
- 12 西尾実, 岩渕悦太郎 , 水谷静夫. 岩波 国語辞典 第四版. (岩波書

店, 1986).

- 13 Qiu, T. *et al.* Swimming by reciprocal motion at low Reynolds number. *Nature communications* **5**, 1-8 (2014).
- 14 Maeda, S., Hara, Y., Sakai, T., Yoshida, R. , Hashimoto, S. Self - walking gel. *Advanced Materials* **19**, 3480-3484 (2007).
- 15 Kawamura, R., Kakugo, A., Osada, Y. , Gong, J. P. Microtubule bundle formation driven by ATP: the effect of concentrations of kinesin, streptavidin and microtubules. *Nanotechnology* **21**, 145603 (2010).
- 16 Hamilton, J. K., Gilbert, A. D., Petrov, P. G. , Ogrin, F. Y. Torque driven ferromagnetic swimmers. *Physics of Fluids* **30**, 092001 (2018).
- 17 Gao, W., Sattayasamitsathit, S., Manesh, K. M., Weihs, D. , Wang, J. Magnetically powered flexible metal nanowire motors. *Journal of the American Chemical Society* **132**, 14403-14405 (2010).
- 18 Liao, P., Xing, L., Zhang, S. , Sun, D. Magnetically driven undulatory microswimmers integrating multiple rigid segments. *Small* **15**, 1901197 (2019).
- 19 Li, T. *et al.* Highly efficient freestyle magnetic nanoswimmer. *Nano letters* **17**, 5092-5098 (2017).
- 20 Li, T. *et al.* Magnetically propelled fish - like nanoswimmers. *Small* **12**, 6098-6105 (2016).
- 21 Jang, B. *et al.* Undulatory locomotion of magnetic multilink nanoswimmers. *Nano letters* **15**, 4829-4833 (2015).

- 22 Dong, R., Zhang, Q., Gao, W., Pei, A. , Ren, B. Highly efficient light-driven TiO₂-Au Janus micromotors. *ACS nano* **10**, 839-844 (2016).
- 23 Paxton, W. F. *et al.* Catalytic nanomotors: autonomous movement of striped nanorods. *Journal of the American Chemical Society* **126**, 13424-13431 (2004).
- 24 Baker, R. *et al.* Fight the flow: the role of shear in artificial rheotaxis for individual and collective motion. *Nanoscale* **11**, 10944-10951 (2019).
- 25 Gray, J. Studies in animal locomotion: VI. The propulsive powers of the dolphin. *Journal of experimental biology* **13**, 192-199 (1936).
- 26 Bainbridge, R. The speed of swimming of fish as related to size and to the frequency and amplitude of the tail beat. *Journal of experimental biology* **35**, 109-133 (1958).
- 27 Lighthill, M. Note on the swimming of slender fish. *Journal of fluid Mechanics* **9**, 305-317 (1960).
- 28 Huang, C. *et al.* Miniaturized swimming soft robot with complex movement actuated and controlled by remote light signals. *Scientific reports* **5**, 1-8 (2015).
- 29 Rogóż, M., Zeng, H., Xuan, C., Wiersma, D. S. , Wasylczyk, P. Light - driven soft robot mimics caterpillar locomotion in natural scale. *Advanced Optical Materials* **4**, 1689-1694 (2016).
- 30 Gelebart, A. H. *et al.* Making waves in a photoactive polymer film. *Nature* **546**, 632-636 (2017).
- 31 Camacho-Lopez, M., Finkelmann, H., Palffy-Muhoray, P. , Shelley, M. Fast

liquid-crystal elastomer swims into the dark. *Nature materials* **3**, 307-310 (2004).

32 Palagi, S. *et al.* Structured light enables biomimetic swimming and versatile locomotion of photoresponsive soft microrobots. *Nature materials* **15**, 647-653 (2016).

33 Uchida, E., Azumi, R. , Norikane, Y. Light-induced crawling of crystals on a glass surface. *Nature communications* **6**, 1-7 (2015).

34 Taniguchi, T. *et al.* Walking and rolling of crystals induced thermally by phase transition. *Nature communications* **9**, 1-8 (2018).

35 Ge, F. , Zhao, Y. A new function for thermal phase transition-based polymer actuators: autonomous motion on a surface of constant temperature. *Chemical science* **8**, 6307-6312 (2017).

36 Yang, Y. *et al.* Reprocessable thermoset soft actuators. *Angewandte Chemie International Edition* **58**, 17474-17479 (2019).

37 Da Cunha, M. P. *et al.* A self-sustained soft actuator able to rock and roll. *Chemical Communications* **55**, 11029-11032 (2019).

38 Onoda, M., Ueki, T., Tamate, R., Shibayama, M. , Yoshida, R. Amoeba-like self-oscillating polymeric fluids with autonomous sol-gel transition. *Nature communications* **8**, 1-8 (2017).

39 Fournier-Bidoz, S., Arsenault, A. C., Manners, I. , Ozin, G. A. Synthetic self-propelled nanorotors. *Chemical Communications*, 441-443 (2005).

40 Dreyfus, R. *et al.* Microscopic artificial swimmers. *Nature* **437**, 862-865 (2005).

- 41 Zhang, L. Characterizing the swimming properties of artificial bacterial flagella. *Nano letters* **9**, 3663-3667 (2009).
- 42 Tottori, S. , Nelson, B. J. Controlled Propulsion of Two - Dimensional Microswimmers in a Precessing Magnetic Field. *Small* **14**, 1800722 (2018).
- 43 Wang, X. *et al.* MOFBOTS: metal-organic - framework - based biomedical microrobots. *Advanced Materials* **31**, 1901592 (2019).
- 44 Li, Y.-H. , Chen, S.-C. Flexibility of undulating magnetic microbeads swimmers. *AIP Advances* **9**, 125232 (2019).
- 45 Mateos-Maroto, A., Guerrero-Martínez, A., Rubio, R., Ortega, F. , Martínez-Pedrero, F. Magnetic Biohybrid Vesicles Transported by an Internal Propulsion Mechanism. *ACS applied materials , interfaces* **10**, 29367-29377 (2018).
- 46 Gao, W. *et al.* Bioinspired helical microswimmers based on vascular plants. *Nano letters* **14**, 305-310 (2014).
- 47 Li, J. *et al.* Template electrosynthesis of tailored-made helical nanoswimmers. *Nanoscale* **6**, 9415-9420 (2014).
- 48 Serrano, P., Decanini, D., Leroy, L., Couraud, L. , Hwang, G. Multiflagella artificial bacteria for robust microfluidic propulsion and multimodal micromanipulation. *Microelectronic Engineering* **195**, 145-152 (2018).
- 49 Chen, X.-Z. *et al.* Magnetically driven piezoelectric soft microswimmers for neuron-like cell delivery and neuronal differentiation. *Materials Horizons* **6**, 1512-1516 (2019).

- 50 Huang, H.-W., Sakar, M. S., Petruska, A. J., Pané, S. , Nelson, B. J. Soft micromachines with programmable motility and morphology. *Nature communications* **7**, 1-10 (2016).
- 51 Lighthill, M. On the squirming motion of nearly spherical deformable bodies through liquids at very small Reynolds numbers. *Communications on pure and applied mathematics* **5**, 109-118 (1952).
- 52 Blake, J. R. A spherical envelope approach to ciliary propulsion. *Journal of Fluid Mechanics* **46**, 199-208 (1971).
- 53 Brennen, C. , Winet, H. Fluid mechanics of propulsion by cilia and flagella. *Annual Review of Fluid Mechanics* **9**, 339-398 (1977).
- 54 Purcell, E. M. LIFE AT LOW REYNOLDS-NUMBER. *American Journal of Physics* **45**, 3-11, doi:10.1119/1.10903 (1977).
- 55 Becker, L. E., Koehler, S. A. , Stone, H. A. On self-propulsion of micro-machines at low Reynolds number: Purcell's three-link swimmer. *Journal of fluid mechanics* **490**, 15-35 (2003).
- 56 Tam, D. , Hosoi, A. E. Optimal stroke patterns for Purcell's three-link swimmer. *Physical Review Letters* **98**, 068105 (2007).
- 57 Or, Y. Asymmetry and stability of shape kinematics in microswimmers' motion. *Physical review letters* **108**, 258101 (2012).
- 58 Calero, C. *et al.* Direct measurement of Lighthill's energetic efficiency of a minimal magnetic microswimmer. *Nanoscale* **11**, 18723-18729 (2019).

- 59 Keim, N. C., Garcia, M. , Arratia, P. E. Fluid elasticity can enable propulsion at low Reynolds number. *Physics of Fluids* **24**, 081703 (2012).
- 60 Lauga, E. , Bartolo, D. No many-scallop theorem: Collective locomotion of reciprocal swimmers. *Physical Review E* **78**, 030901 (2008).
- 61 Normand, T. , Lauga, E. Flapping motion and force generation in a viscoelastic fluid. *Physical Review E* **78**, 061907 (2008).
- 62 Gonzalez-Rodriguez, D. , Lauga, E. Reciprocal locomotion of dense swimmers in Stokes flow. *Journal of Physics: Condensed Matter* **21**, 204103 (2009).
- 63 Riley, E. E. , Lauga, E. Enhanced active swimming in viscoelastic fluids. *EPL (Europhysics Letters)* **108**, 34003 (2014).
- 64 Najafi, A. , Golestanian, R. Simple swimmer at low Reynolds number: Three linked spheres. *Physical Review E* **69**, 4 (2004).
- 65 Golestanian, R. , Ajdari, A. Analytic results for the three-sphere swimmer at low Reynolds number. *Physical Review E* **77**, 036308 (2008).
- 66 Polotzek, K. , Friedrich, B. M. A three-sphere swimmer for flagellar synchronization. *New Journal of Physics* **15**, 045005 (2013).
- 67 Grosjean, G., Hubert, M., Lagubeau, G. , Vandewalle, N. Realization of the Najafi-Golestanian microswimmer. *Physical Review E* **94**, 021101 (2016).
- 68 Hosaka, Y., Yasuda, K., Sou, I., Okamoto, R. , Komura, S. Thermally Driven Elastic Micromachines. *Journal of the Physical Society of Japan* **86**, 4 (2017).
- 69 Alouges, F., DeSimone, A., Giraldi, L., Zoppello, M. Self-propulsion of

slender micro-swimmers by curvature control: N-link swimmers. *International Journal of Non-Linear Mechanics* **56**, 132-141 (2013).

70 Ikegami, T., Kageyama, Y., Obara, K., Takeda, S. Dissipative and Autonomous Square - Wave Self - Oscillation of a Macroscopic Hybrid Self - Assembly under Continuous Light Irradiation. *Angewandte Chemie International Edition* **55**, 8239-8243 (2016).

71 Kageyama, Y. *et al.* Light - driven flipping of azobenzene assemblies—sparse crystal structures and responsive behavior to polarized light. *Chemistry—A European Journal* (2020).

72 池上智則. 北海道大学大学院総合化学院博士論文. (2018).

73 日本機械学会. 材料力学ハンドブック基礎編. (2008).

74 Yang, L. *et al.* An Autonomous Soft Actuator with Light-Driven Self-Sustained Wavelike Oscillation for Phototactic Self-Locomotion and Power Generation. *Advanced Functional Materials* **30**, 1908842 (2020).

75 Serak, S. *et al.* Liquid crystalline polymer cantilever oscillators fueled by light. *Soft Matter* **6**, 779-783 (2010).

76 Kitagawa, D., Nishi, H., Kobatake, S. Photoinduced twisting of a photochromic diarylethene crystal. *Angewandte Chemie* **125**, 9490-9492 (2013).

謝辞

本研究に取り組み、学位論文をまとめるまでに、多くの方々のご支援およびご指導を賜りました。お世話になったみなさまに、この場を借りて感謝の意を申し上げます。

はじめに、本論文を主査として査読していただきました理学研究院石森浩一郎 教授、副査として査読していただきました理学研究院鈴木孝紀 教授、理学研究院村越敬 教授、工学研究院渡慶次学 教授、理学研究院景山義之 助教に深い感謝を申し上げます。

主任指導教員として、ご退職まで指導していただきました武田定 名誉教授、その後学位審査までの2年間主任指導教員を引き受けていただきました鈴木孝紀 教授に感謝申し上げます。お二人には、丁寧に指導していただき、時には励ましの言葉もいただきました。本当にありがとうございました。

また、本研究を遂行し、本論文を完成させるにあたり、景山義之 助教に多大なる感謝を申し上げます。学生として不十分な振る舞いであつたらう筆者に対して、熱心に励まし引っ張ってってくださいました。先生の助けがなければ、この学位論文を描き始めることすらできなかつたはずで、それでもこのように完成に漕ぎ着けたのは、先生の熱い指導のおかげです。常に、科学者として誠実でした。全く足元にも及びませんが、今後の人生で近づくことができるように邁進していく所存です。大変なご迷惑をおかけしましたとともに、本当にありがとうございました。

理学研究院丸田悟朗 特任講師には、先生が研究室を離れた後も本研究に関してディスカッションやアドバイスをいただきました。お礼申し上げます。旧液体化学研究室の先輩や後輩、そして同期とともに研究に励むことができ、苦しい時や楽しい時をお互いに共有し、支えていただきました。みなさまに厚くお礼を申し上げます。

本研究の大きなテーマである「泳ぎ」について、流体力学のおよび数学的な初歩的な

視点を与えてくださりました理学研究院久保英夫 教授に改めて感謝申し上げます。

筆者の研究活動を学術的・経済的に支えてくださいました、北海道大学物質科学フロンティアを開拓する **Anbitious** リーダー育成プログラムにお礼申し上げます。

そして最後に、筆者の研究生生活を精神的に支えてくださいました妻の星良に、心から感謝申し上げます。ありがとうございました。

これまで支えてくださいましたみなさまにこの場を借りて改めて感謝いたします。本当にありがとうございました。

2022年3月

小原 一馬