

博士学位論文審査要旨

2020年1月25日

論文題目： 工学的応用を目指した振動反応に関する研究

学位申請者： 岡本 泰直

審査委員：

主査： 理工学研究科 教授 塩井 章久

副査： 理工学研究科 教授 土屋 活美

副査： 京都大学名誉教授 吉川 研一

要 旨：

振動反応が生物の多くの生理機能に関係していることを考慮すれば、振動反応を利用した人工的な機能的化学システムのデザインが可能であると考えられる。人工的な振動反応に関する基礎科学的研究は多く存在するが、振動反応を理工学的課題に応用するための研究は比較的限られている。本論文では、振動反応を利用した自己駆動液体、および、振動反応と溶液混合状態の関係について研究を行い、振動反応の工学的応用を目指している。自己駆動性液体の研究では、ほとんどの振動反応系は回分系では一回しか振動しないため、このような反応を利用することが必須であることを指摘し、このような pH 振動を用いて水面上の油滴に持続的な連続運動を発生させることに成功している。これは、油滴の運動が引き起こす反応物質の拡散速度の変動を利用して可能となっているが、このような運動機構は普遍性の高いものであると考えられ、今後の振動反応の応用に向けた重要な成果である。振動反応のダイナミクスと溶液混合状態の関係について、Belousov-Zhabotinsky (BZ) 反応が形成する化学波の波数やパターンが、溶液混合状態と相関していることを明らかとし、化学波の波数とパターンから溶液混合状態を推定できることを示した。溶液混合は重要な化学プロセスであり、通常は、流体要素を着色するなどして混合状態を観察するが、溶液が均一色になればそのような可視化は困難になる。振動反応では溶液内の反応物質の僅かな不均一性が時間的に大きく拡大される場合がある。本論文では、均一色に染まるほど混合が進んだ溶液でも混合の程度が良くなるほど化学波の波数が少なくなり、混合が良好な極限ではパターンが複雑化することを明らかとした。また、反応拡散方程式を用いた数値計算で、この実験結果を説明することにも成功している。さらに、本論文では、混合状態の不均一性が問題になりにくい微小液滴（リキッドマーブル）系での BZ 反応についても研究を行い、この系では大きな気液表面積の影響が反応特性に強く影響することも明らかとした。

以上、本論文では、大きなポテンシャルを持つと考えられる振動反応の工学的展開について、自己駆動物体のデザイン、溶液混合状態の評価への応用という2種類の観点から独創的で重要な知見を与えている。よって、本論文は、博士（工学）（同志社大学）の学位を授与するにふさわしいものであると認められる。

総合試験結果の要旨

2020年1月25日

論文題目： 工学的応用を目指した振動反応に関する研究

学位申請者： 岡本 泰直

審査委員：

主査： 理工学研究科 教授 塩井 章久

副査： 理工学研究科 教授 土屋 活美

副査： 京都大学名誉教授 吉川 研一

要 旨：

論文提出者は、現在、理工学研究科応用化学専攻博士課程（後期課程）3年次に在学中である。本論文の主たる内容は、Langmuir, vol. 35, 14266-14271, 2019 に既に掲載、また、粉体工学会誌, 57 巻, 2020 に掲載予定であり、十分な評価を得ている。2020年1月25日午前10時00分より約1時間40分にわたって、提出論文に対する学術講演会（博士論文公聴会）が開催され活発な質疑応答がなされたが、提出者の説明により十分な理解が得られた。さらに講演終了後、審査委員により論文に関する諸問題につき口頭試問をした結果、いずれも十分な能力を有することが確認できた。また、論文提出者は、英語による論文発表を行い、英語の語学試験に合格しており、語学についても十分な能力を有すると認定されている。よって総合試験の結果は合格であると認める。

博士學位論文要旨

論文題目： 工学的応用を目指した振動反応に関する研究

氏名： 岡本 泰直

要旨：

本論文は序論(第1章)と結論(第6章)を含む6章で構成され、振動反応の工学的な応用への展開を目的としている。論文は大きく分けて、アクティブマターへの応用と流体混合への応用に分かれる。アクティブマターへの応用が第2章と第3章、流体混合への応用が第4章と第5章である。第2章と第3章では、回分系では一度のpHの増大・減少しか示さないpH振動反応と、pH応答性油滴を用いて、油滴を自律運動させる系の作成を試みた。前節でも述べたように、振動反応によるアクティブマター系は、回分系でも連続振動するBZ反応を用いたものがほとんどである。しかし、生物は回分BZ反応のような閉鎖系とは異なり、開放系でのみ生体回路などの振動現象を維持している。したがって回分系では一度の振動しか示さない反応を用いて開放系でのアクティブマター系の創成を実現することは、よりバイオミメティックな系の創製につながると考えられる。第4章ではBZ反応から混合状態を推定するための方法を検討した。BZ反応は反応の非線形性のため様々な外部刺激に鋭敏に応答する。しかし、回分攪拌系でのBZ反応と混合の研究が進められる一方で、化学波と混合状態についての研究はあまり見られず、化学波は完全混合を前提に議論されている。また、既往の研究では混合後の様子を観察するというアプローチはあまりない。したがって、混合後に現れるBZ反応の化学波と混合状態の関係を明らかにすることで、化学波から混合状態を見積もることができると考えられる。第5章では、微小空間でのBZ反応の挙動を検討した。微小空間内では混合不均一性は小さくなるため、より均一な系に近い状態で反応場を考えることができる。したがって、反応器の特性をBZ反応の挙動から特定することを目的とした。各章の概要は次のとおりである。

第2章では、Methylene glycol sulfite gulconolactone(MGSG)反応場におけるオレイン酸油滴の運動について検討した。MGSG反応は回分系では一度のpHパルスしか見られないが、反応物質の拡散と断続攪拌を組みあわせることで複数回の振動現象が実現できることを示す。さらに、人工的攪拌の代わりに、pH応答性油滴であるオレイン酸の運動を組み合わせることで局所的な攪拌効果を発現させると、油滴近傍でpH振動が連続的に発生し、これによるオレイン酸油滴の持続的な周回運動が見られた。この運動系におけるpH振動の役割を示し、オレイン酸油滴内部の対流から運動メカニズムを検討することで、回分系では単一パルスの反応から持続的な運動が得られることが可能であることを示した。また、周回運動以外にも様々な運動モードが確認されたので報告する。

第3章では、MGSG反応場におけるdi(2-ethylhexyl) phosphate (DEHPA)の挙動について検討した。オレイン酸と同様に、DEHPAもpH応答性油滴であり、どちらもpHが大きくなると油水界面張力を急激に低下させる特徴を有している。よく似たpH応答性にもかかわらずDEHPA滴はオレイン酸滴とは大きく異なる運動を示した。この運動系におけるpH振動反応の役割と、運動の油滴サイズ依存性について報告する。

第4章では、初期混合状態の違いがBZ反応に及ぼす影響について検討した。BZ反応において、攪拌下では振動現象、混合した後に静置しておく化学波が見られることはすでに述べたが、化学波が発生する場所は明らかではない。また、化学波の研究は完全混合を前提として考察されてきたため、混合状態と化学波の関係については不明瞭な点が多い。これらを明らかにすることで、

化学波から混合状態を推定する方法を検討した。

第5章では、リキッドマーブル(以下、LM)を用いて微小空間におけるBZ反応について検討した。混合不均一の影響をできるだけ小さくするために小さな反応器であるLM下でBZ反応を行った。LM内では比表面積が反応に大きく影響することがみられた。微小反応器でのBZ反応は、LM系の反応特性を明らかにすることに繋がるだけでなく、BZ反応を用いた光学デバイスへの応用や、細胞の振動反応のモデル化に繋がりうる。

第6章では、結論として本論文における成果をまとめ、今後の展望を示した。