

懸濁液界面における分裂する穴のダイナミクス

千葉大学 理学研究科 江端宏之
東京大学 理学系研究科 佐野雅己

Hiroyuki Ebata, graduate school of science, Chiba university
Masaki Sano, graduate school of science, The University of Tokyo

Introduction

細胞分裂を連想させる、自発的に分裂するパターン (self-replicating spot) は化学反応系で発見され、理論的・実験的に研究されてきた。我々は化学反応系とは全く異なる系において、自発的に分裂するパターンを体系的・定量的に解析することで、自発的に分裂するパターンが持つ普遍的な性質を理解することを目的としている。我々の実験では、粉体と流体の混合物、懸濁液をシャーレの中に 4~5mm の厚さで入れ、鉛直方向にシャーレ全体を一様に振動させている。この時、懸濁液と空気の界面に現れるパターンを観測している。

垂直加振下の懸濁液界面においては、全く異なる系であるにもかかわらず、反応拡散系における局在パターンと類似のパターンが現れることが報告されている (hole, kink など)。F. Merkt らにより、垂直加振下のコーンスターチ懸濁液では、気液界面の微小変形が成長して界面から底に達する安定な穴 (stable hole, 図 1 (a)) が現れることが報告されている [1, 2]。また、ガラスビーズとシリコンオイルの懸濁液では初期に液体の層に作った穴が広がってゆき、最終的には懸濁液の存在する領域と存在しない領域が kink によって分離された状態になることが知られている [3]。我々は垂直加振されたポテトスターチ懸濁液では穴は自発的に円い形状から楕円状に変形し、分裂をすることを発見した (replicating hole, 図 1 (b)) [4]。Replicating spot はこれまで反応拡散系で見つかったが、流体や粉体系では初めての例である。

これら、流体の界面に安定な hole や kink が現れることは日常的な経験に反する現象といえる。例えば、容器の中に水を入れ、水の表面に穴状の凹みを作ったとする。一般にこのような変形は水圧によって押しつぶされてしまい長時間残ることはなく、これは非ニュートン流体を使った場合も同様である。このように重力に垂直な自由界面を支えることは容易ではなく、このような界面は一般に不安定になるはずである。したがって、流体界面の hole や kink などの局在パターンを維持するには静水圧と釣り合うことが出来る何らかのメカニズムが必要である。い

くつかのモデルが提案されているものの、どのようなメカニズムなのか結論が出ていないだけでなく、どのようなレオロジー特性が重要なのかさえはつきりとは分かっていない [3, 5, 6]。そのため、レオロジーに基づく流体界面の発展方程式の導出は重要な未解決問題である。

今回我々は、懸濁液のレオロジーなど穴が出来るメカニズムについては議論しない。そのかわり、分裂する穴のパターンダイナミクスに着目し、安定な穴から分裂する穴へ分岐する際の穴の形状の振る舞いについて詳しく調た [7]。また、グレイスコットモデルの分裂するスポットと比較することで分裂するパターンの持つ性質を明らかにすることを目指している。

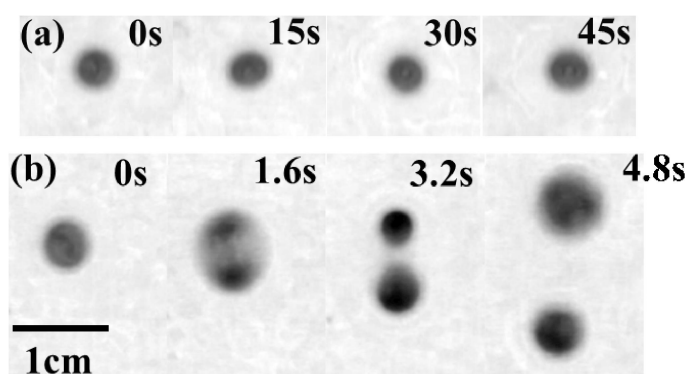


図 1: 安定な穴と分裂する穴のスナップショット (a) 安定な穴 (b) 分裂する穴

実験系

本研究では試料としてポテトスターチ (Sigma 社製) と純水の混合物を使用している。ポテトスターチの粒子はなめらかな楕円球状のものが多く、粒径分散も大きい (平均粒径は約 $40\mu\text{m}$)。また、ポテトスターチをふるいにかけることで、粒子径の分布を変えたものを用意した ($22\mu\text{m} \sim 42\mu\text{m}$)。懸濁液中のポテトスターチの体積分率 ϕ は $0.33 \sim 0.34$ となるように純水と混合した。

実験では内径 9cm のガラスシャーレに懸濁液を深さ約 0.5mm 入れて、サイン型の鉛直加振を電磁石式の加振機によって加えている。この時、垂直方向への変位は $z(t) = A \sin(2\pi ft)$ と書け、ピーク加振強度は $\Gamma \equiv A(2\pi f)^2$ となる。この実験では、加振周波数 f を $40\text{Hz} \sim 120\text{Hz}$ まで、加振強度を $0 \sim 260\text{m/s}^2$ まで変えている。

安定な穴や分裂する穴は平坦な界面から自発的に現れることがないため、初期条件として界面にある有限の変形を加える必要がある。そこで、初期条件として小さな穴 ($2 \sim 5\text{mm}$) をスティックを使い界面に作り、界面の不安定性の時間発展を CCD カメラ (30frame/s) を使い測定した。実験を行う際、水の蒸発を防ぐため

容器の周りをアクリルの箱で覆い、湿度を保ち実験を行っている。(ほとんどの実験で95%以上) 実験中の気温は23℃～25℃である。

穴の形状の解析は以下のようにして行っている。まず、穴の元画像を二値化し、二値化画像から穴の縁の形状を抜き出す。次に、穴の重心を計算し、重心から縁までの距離 r を x 軸となす角 θ の関数として求める。 $r(\theta)$ をフーリエ展開すると以下のように書くことが出来る。

$$r(\theta) = R \left\{ 1 + \sum_{n=1} \rho_n \cos n(\theta - \varphi_n) \right\}, \quad (1)$$

ここで、 R は穴の平均径である。モード2 (ρ_2, φ_2) は微小変形 $\rho_2 \ll 1$ で楕円形状を表し、大変形 $\rho_2 > 0.2$ でダンベル状の変形を表す。また、 $\theta = \varphi_2$ が楕円の長軸の方向を表している。実験では ρ_2 が常に最も大きいため、モード2にのみ注目して解析を行っている。

実験結果

ポテトスターチ懸濁液における穴の分裂の様子は以下のようにになっている (図1(b))。界面に初期に作った変形が成長し、懸濁液の層を容器の底近くまで貫く穴に成長する。できた丸い穴は安定にはならず、丸い形状から楕円形に変形する。その後も変形は大きくなって行き、楕円の短軸方向から懸濁液が穴に向かって流れ込み、ダンベル状の形状となる。楕円の短軸から流れ込んだ懸濁液が最終的に穴を二分し、分裂をする。出来た二つの穴は互いに反発するように離れて行き、ある程度時間が経つと再度分裂を始める。

ふるいにかかけ、粒子径の分布を変えたポテトスターチを使った実験により、粒子の平均径が $20\mu\text{m} \sim 30\mu\text{m}$ では、加速度を大きくすることで安定な穴から分裂する穴へと分岐することが分かった [7]。そこで安定な穴から分裂する穴への分岐点付近で、穴の形状の時間発展が加速度が大きくなるとともにどのように変わるかを調べた。加速度が小さく、丸い形状が安定な場合はモード2の振幅 (楕円変形の大きさ) は常に小さい値を取る (図2(a))。加速度が大きくなり分岐点に近づくとモード2の振幅の時系列に間欠的なパルスが現れるようになる (図2(b), o)。このパルスが現れる時、穴は分裂しようとしている。ただ、分裂の最終段階で新しく2つ出来る穴のうち1つが十分に成長することが出来ず、急激に収縮・消滅し、もう一方の穴のみ残る。その結果、穴の数は増えることがない。つまり、モード2の振幅の時系列に現れる間欠的なパルスは不完全な分裂を表している。加速度が小さいうちはこのような不完全な分裂が支配的であり、加速度が大きくなるにつれて穴が2つに増える完全な分裂が起こる確率が高くなってゆく。図2(c)は定常的な分裂が起こっている時、分裂後も一方の穴を追跡した時の ρ_2 の時系列を示している。分裂して穴の個数が増えている祭も、一つだけ穴を取りだし ρ_2 の時系列を作ればパルス列が現れる。この時、パルスが一回現れるたびに分裂が一回

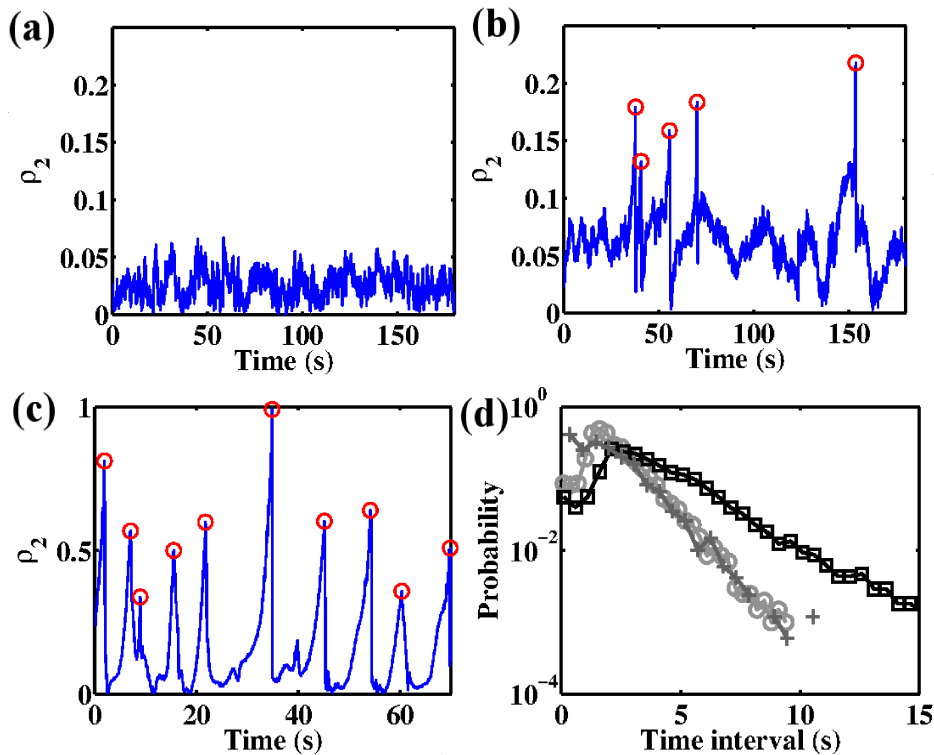


図 2: (a-c) 変形のモード 2 の振幅の時系列。○がパルスのピーク位置を示している。(a) 安定な穴。 $\Gamma = 190 \text{ m/s}^2$. (b) 分岐点付近の穴。 $\Gamma = 224 \text{ m/s}^2$. (c) 定常的な分裂が起こっている時の、一つの穴を追跡した時の時系列。(d) 分裂の時間間隔の頻度分布。(a,b) ポテトスターチの粒径 $26.7 \mu\text{m}$, $\phi = 0.34$, $f = 90 \text{ Hz}$. (c) ふるい分ける前のポテトスターチ。 $\phi = 0.33$, $f = 100 \text{ Hz}$, $\Gamma = 156 \text{ m/s}^2$. (d) ふるい分ける前のポテトスターチ。 ○: $\phi = 0.38$, $f = 100 \text{ Hz}$, $\Gamma = 180 \text{ m/s}^2$. □: $\phi = 0.37$, $f = 80 \text{ Hz}$, $\Gamma = 157 \text{ m/s}^2$. +: $\phi = 0.37$, $f = 80 \text{ Hz}$, $\Gamma = 180 \text{ m/s}^2$.

起こっている。次に、ある穴が分裂を起こしてから次また分裂を起こすまでにかかる時間の頻度分布を計算した。これは図 2 (c) のパルスの間隔の頻度分布に相当する。定常的に分裂が起こっている場合、分裂の時間間隔は一つのピークを持ち指数関数的に減衰する分布関数となることが分かった (図 2 (d))。

現象論的モデル

我々はこのような間欠的な穴の分裂と、分裂の時間間隔の指数関数的な分布関数を説明するために、二次元の反応拡散系での spot 解に対して提唱されている変形と重心運動についてのモデル方程式を応用した [8, 9, 10]。ここでは穴の重心運動と変形のモード 2 の時間発展が一般的にどのような時間発展方程式に従うかを、空間の対称性のみを考慮して導出している [10, 11, 12]。この時、対称性を満たす

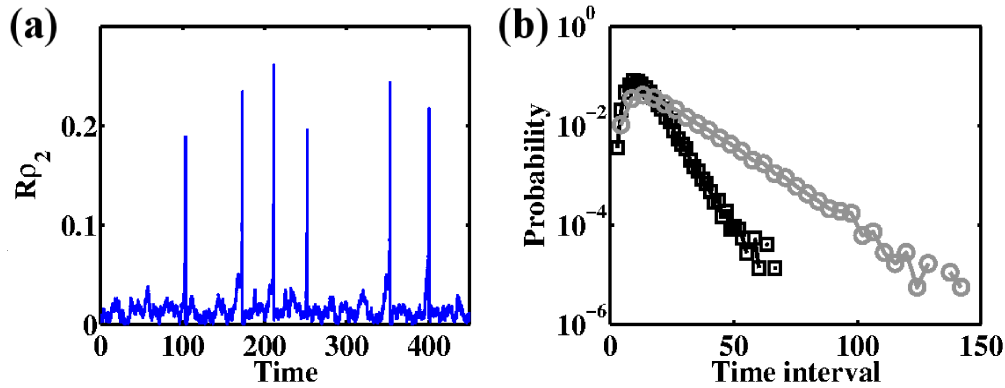


図 3: 式 (2) - (4) の数値計算結果。パラメータは $v_i = S_{ij} = 0$ のサブクリティカル分岐点の近傍に取っている。(a) $R\rho_2$ の時系列。 $\kappa_2 = -0.1$ 。(b) パルスの時間間隔の頻度分布。 \circ : $\kappa_2 = -0.1$ 。 \square : $\kappa_2 = 0$ 。(a, b) $\kappa_1 = -1.54$, $c_1 = 33.8$, $c_2 = 5.21$, $\mu_{11} = -0.91$, $\mu_{22} = -200$, $\mu_{12} = \mu_{21} = 0$, $\sigma_v = 0.035$, $\sigma_2 = 0.005$, $R=1$ 。

非線形項のうち低次のものだけ考えることにする。穴の重心の速度を v_i とする。また、変形のモード 2 の振幅と位相を使ってトレースレス対称テンソル S_{ij} を以下のように定義する (式 (1) 参照)。

$$S_{xx} = -S_{yy} = \frac{R\rho_2}{2} \cos 2\varphi_2, \quad S_{xy} = S_{yx} = \frac{R\rho_2}{2} \sin 2\varphi_2$$

以降は簡単のため、半径 R は一定とする。この時、モデル方程式は以下のようになる [7]。

$$\frac{d}{dt}v_i = \kappa_1 v_i + c_1 S_{ij} v_j + v_i \left(\mu_{11} v_k v_k + \frac{\mu_{12}}{2} S_{mn} S_{mn} \right) + \zeta_i \quad (2)$$

$$\frac{d}{dt}S_{ij} = \kappa_2 S_{ij} + c_2 (2v_i v_j - \delta_{ij} v^2) + S_{ij} \left(\mu_{21} v_k v_k + \frac{\mu_{22}}{2} S_{mn} S_{mn} \right) + \xi_{ij} \quad (3)$$

ここで ζ_i は独立な平均 0、分散 σ_v の白色ガウスノイズとする。また、 ξ_{ij} は $\xi_{xx} = -\xi_{yy}$, $\xi_{xy} = \xi_{yx}$ を満たし、 ξ_{xx} と ξ_{xy} は互いに独立な平均 0、分散 σ_2 の白色ガウスノイズとする。

このモデル方程式では分裂を扱うことが出来ない。そこで、モード 2 の変形が十分大きくなると分裂が起こること、また分裂後の穴は変形が小さく重心の速度も小さいことを考慮して以下のような条件を付けくわえる。

$$\text{If } \rho_2 > \rho_{2c}, \text{ then } S_{ij} = \delta S_{ij}, v_i = \delta v_i. \quad (4)$$

ここで、 ρ_{2c} は分裂が起こる変形の大きさ、 δS_{ij} , δv_i は $\delta S_{ij} \ll 1$, $\delta v_i \ll 1$ を満たすランダムな値とする。つまり、変形 ρ_2 がある閾値 ρ_{2c} を超えると変形・速度ともに小さい値にリセットされるようにする。また、モデル方程式では常に不完全な分裂が起こっていると仮定し、穴の数が増えることは考慮していない。

式(2) - (4)の数値計算結果、 $v_i = S_{ij} = 0$ のサブクリティカル・ピッチフォーク分岐点の近傍で間欠的なパルスが現れることが分かった(図3(a))。モデルではこの間欠的なパルスが分裂に相当している。間欠的な振る舞いはノイズ由来であり、パルス間隔は指数関数的に減少する頻度分布となる(図3(b))。また、サブクリティカル・ピッチフォーク分岐をする前はノイズなしではパルスが現れることがなく、ノイズが存在する場合はパルスが現れうる。つまり、ノイズによって分裂が促進されているといえる。実験結果とモデルから得られた結果より、安定な穴から分裂する穴への形状の分岐はサブクリティカル・ピッチフォーク分岐になっていると考えられる。また、間欠的な穴の分裂はノイズ由来で起こっていると考えられる。

化学反応系との比較

これら実験とモデルで得られた知見が他の系に対しても成り立っているかを簡単に検証する。ここでは、グレイスコットモデルのスポットに対し、

- ノイズにより分裂が促進されるかどうか
- ノイズにより分裂が起こる場合、分裂するまでの時間の分布関数は指数関数的になるか

について調べた。ここで使用したモデルは以下のようなノイズ入りのグレイスコットモデルである[13, 14]。

$$\frac{\partial U}{\partial t} = -UV^2 + F(1 - U) + D_u \Delta U + \xi_u \quad (5)$$

$$\frac{\partial V}{\partial t} = UV^2 - (k + F)V + D_v \Delta V + \xi_v \quad (6)$$

ここで ξ_u, ξ_v は独立な平均0、分散 σ の白色ガウスノイズとする。以降、分岐パラメーターである k, F は、分裂するスポットが現れるパラメーターに近く、孤立したスポットが線形安定となる領域に設定している[15]。

式(5)-(6)の数値計算の結果、ノイズ強度 σ が小さいときは長時間経っても分裂をしないが、ノイズ強度が大きくなると間欠的に分裂を始めることが分かった(図4(a), (b))。また、ノイズを加え始めてから分裂するまでの時間間隔の頻度分布は指数関数的に減衰することも分かった(図4(c))。これらの性質は懸濁液界面の分裂する穴と似たものとなっている。

まとめ

我々は、分裂する穴のダイナミクスに着目し、安定な穴から分裂する穴へ分岐する際の穴の形状の振る舞いについて詳しく調べた。その結果、垂直加振の振幅

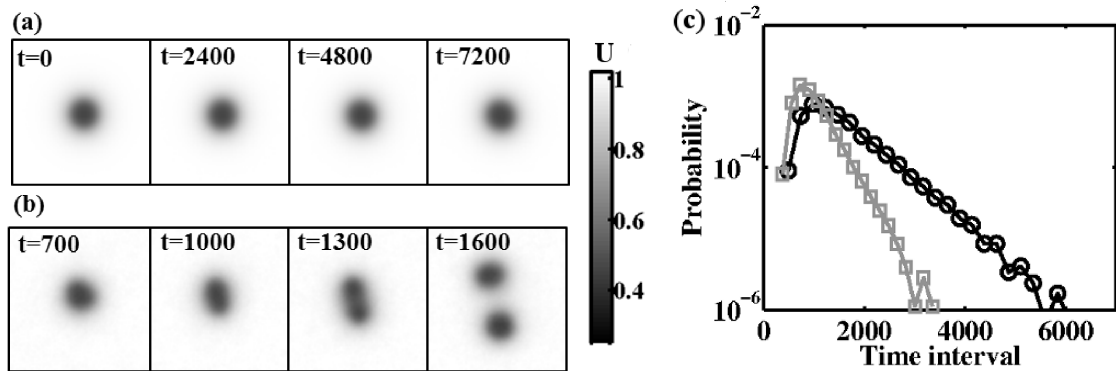


図 4: (a,b) U のカラーマップの時間変化。初期条件として安定なスポットを用意し、 $t=0$ からノイズを加え始めている。(a) ノイズ強度が小さいときのスポットの振る舞い。長時間経っても分裂しない。 $\sigma=0.001$ 。(b) ノイズ強度を大きくしたときのスポットの振る舞い。間欠的な分裂が起こる。 $\sigma=0.01$ 。(c) ノイズを加え始めてから分裂するまでの時間間隔の頻度分布。 $\sigma=0.01$ 。○: $k=0.0643$ 。□: $k=0.064$ 。(a-c) $F=0.03$, $D_u=2.0 \times 10^{-5}$, $D_v=1.0 \times 10^{-5}$ 。(a,b) $k=0.0643$ 。(a-c) 計算領域のサイズは 0.5×0.5 。

が大きくなるにつれ、間欠的に大きく穴が変形するようになり、分裂をするようになる事が分かった。実験で得られた穴の変形と重心運動について説明するために、我々は反応拡散系での spot 解に対して提唱されている変形と重心運動についてのモデル方程式を使った。その結果、間欠的な大きな変形や分裂が起こる時間間隔などの穴の基本的なダイナミクスを説明できることを示した。これは、安定な穴から分裂する穴への形状の分岐はサブクリティカル・ピッチフォーク分岐になっており、間欠的な穴の分裂はノイズ由来で起こっていることを示唆している。また、比較のためノイズ入りのグレイスコットモデルの数値計算を行った。その結果、グレイスコットモデルのスポットもノイズにより分裂が促進され、分裂するまでの時間の分布関数も指数関数的になることが分かった。

我々のこれまでの研究により、分裂する穴の時空カオスの統計的性質はグレイスコットモデルの分裂するスポットのそれとよく似ている事が分かっている [4]。また、今回の研究により安定なスポットから分裂するスポットの分岐点近傍での振る舞いも似たものになるということが分かった。これらの結果が分裂するパターンの持つ普遍的な性質を示しているのか、分裂する穴がグレイスコットモデルで良く記述できるだけなのかはさらに検討する必要がある。

参考文献

- [1] F. S. Merkt, R. D. Deegan, D. I. Goldman, E. C. Rericha and H. L. Swinney, Phys. Rev. Lett. **92** 184501 (2004)

- [2] Y. Xu, X. Gong, Y. Sun, S. Xuan, W. Jiang and Z. Zhang, *Phys. Rev. E* **83** 056311 (2011)
- [3] H. Ebata, S. Tatsumi and M. Sano, *Phys. Rev. E* **79** 066308 (2009)
- [4] H. Ebata and M. Sano, *Phys. Rev. Lett.* **107** 088301 (2011)
- [5] R. D. Deegan, *Phys. Rev. E* **81** 036319 (2010)
- [6] C. Falcón, J. Bruggeman, M. Pasquali and R. D. Deegan, *EPL* **98** 24002 (2012)
- [7] H. Ebata and M. Sano, *Phys. Rev. E* **88** 053007 (2013)
- [8] T. Hiraiwa, M. Y. Matsuo, T. Ohta and M. Sano, *EPL* **91** 20001 (2010)
- [9] T. Ohta, T. Ohkuma and K. Shitara, *Phys. Rev. E* **80** 056203 (2009)
- [10] T. Ohta and T. Ohkuma, *Phys. Rev. Lett.* **102** 154101 (2009)
- [11] D. Armbruster, J. Guckenheimer and P. Holmes, *Physica D* **29** 257 (1988)
- [12] D. Armbruster, J. Guckenheimer and P. Holmes, *SIAM J. Appl. Math.* **49** 676 (1989)
- [13] F. Lesmes, D. Hochberg, F. Moran and J. Perez-Mercader, *Phys. Rev. Lett.* **91** 238301 (2003)
- [14] A. Munteanu and R.V. Solé, *Int. J. Bifurcation Chaos* **16** 3679 (2006)
- [15] J. E. Pearson, *Science* **261**, 189-192 (1993)