

主 論 文 要 旨

報告番号	甲 乙 第	号	氏 名	杉 森 丈
主 論 文 題 目： キラリティの破れに対する揺らぎの効果 —確率論的モデルの構築—				
<p>(内容の要旨) 生命に関係のある有機物では一方の鏡像異性体しか存在しない。たとえば、アミノ酸はL体のみからなり、糖類はD体のみで構成されている。このように、異性体の一方が過剰に存在することをキラリティの偏りといい、完全に片方のみの異性体からなることをホモキラリという。この現象は現在に至るまでその原因は解明されていない。そのため多くのモデルが提言されている。しかし、それらのモデルではキラリティの破れは小さいため、その偏りを増幅させるために増幅反応が必須のものとなる。</p> <p>増幅モデルは Frank による理論的なモデルが初めてであり、それは自己触媒と相互抑制反応からなる。実験的に、近年 Soai らのグループは、自己触媒反応により初期状態に依存するキラリティの破れの増幅反応に成功した。この実験結果は二次の自己触媒反応により説明されている。さらに、理論的にリサイクル反応を加えることにより、Saito と Hyuga はホモキラリ状態が初期状態に依存せずに一意的に現れることを示した。</p> <p>反応速度式を用いる通常の理論解析では、粒子の揺らぎや相関が無視されている。そのため、揺らぎに敏感な系では正しい結果を与えない可能性がある。そこで、本研究の目的は、確率論的な手法を用いて揺らぎの結果を取り入れキラリティの破れの反応モデルをつくり、考察することである。</p> <p>本論文は5章構成であり、第1章は研究の背景、および目的を述べている。2章では自己触媒反応モデルに対する揺らぎの効果が考察されている。リサイクル反応がある場合に詳細釣り合いを仮定することで最終状態を解析的に導いている。二次の自己触媒反応の反応係数が臨界値を超えるとキラリティが破れること、また、ラセミックな初期条件では最終確率分布はダブルピーク構造をもつことを証明している。さらに、固有値解析により、零固有値にもっとも近い固有値が粒子数の増大につれて指数関数的に零に接近することを見出している。生体分子に関係のある反応では、強く作用する自己触媒反応は現在のところ見つかっていない。そこで、3、4章では、初期におけるキラリティの破れを発現させるために、自己触媒反応を用いずにホモキラリな状態を創り出す反応系をモデル化している。まず3章では閉鎖系において、自発的生成反応と異性体同士が互いに反応して原料に戻るリサイクル相互抑制反応からなる系を考えている。この系は反応速度式によれば、反応は途中で止まるが、マスター方程式により揺らぎを取り入れると、ホモキラリ化が発現することが示されている。これは固定曲線上の確率分布が揺らぎに駆動され、ホモキラリな位置にある吸収状態へと移動するためである。この効果が有効となるのは、系のサイズが小さい場合であるが、初期に小さなキラリティの破れがなくともホモキラリ化を発現する。4章では、開放系で自発的反応と相互抑制のみの反応からなる系を考えている。この場合も、閉鎖系同様に分布は揺らぎに駆動され増幅される。しかし、この系では異性体が絶えず流出及び流入を続けるため、最終状態は存在せずに反応は一定の速度を保ちながら、ホモキラリな状態へと移行することが解析的および数値的に示されている。また、比較的初期に鏡像体過剰率が増幅される。大きな系に対しては、この反応で局所的にキラリティの破れが生じた後に、自己触媒反応により全系のホモキラリ化が実現されるシナリオが提案されている。5章では結論を述べている。</p>				