

Title	反応拡散系における長距離空間相互作用の統計力学的理論(長期研究会「パターン形成、運動およびその統計」,研究会報告)
Author(s)	徳山, 道夫; Ross, John
Citation	物性研究 (1989), 52(4): 377-387
Issue Date	1989-07-20
URL	<a href="http://hdl.handle.net/2433/93646">http://hdl.handle.net/2433/93646</a>
Right	
Type	Departmental Bulletin Paper
Textversion	publisher

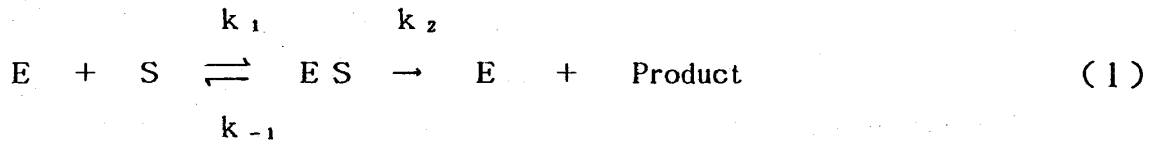
## 反応拡散系における長距離空間相互作用の統計力学的理論\*

東和大・工 徳 山 道 夫  
Stanford大 J o h n R o s s

## § 1. はじめに

ここでは、溶液中での反応拡散系において、拡散粒子の反応速度への他の反応体からの多体効果を統計力学的観点から議論する。

反応拡散系の一つの例題として、次の酵素反応を考える<sup>1)</sup>。



ここにEは酵素、Sは基質、ESは複合体であり、 $k_1$ 、 $k_{-1}$ 、 $k_2$ は反応速度係数である。N個の酵素が体積Vの体系にあるとする。酵素は半径aの球であり、それは基質に比べて充分大きく、その位置の空間分布は時間に依らないと仮定する。また、基質は拡散によって運ばれるものとする。このとき、各酵素の間には、基質の拡散と反応による長距離空間相互作用が働く。従って、これらの長距離相互作用による多体効果が反応過程の動的振舞い、即ち反応速度にいかに関与するかを統計力学的に研究することがここでの主な課題である。

酵素の体積比を $\phi_0 = 4\pi a^3 E_0 / 3$  (ここで $E_0 = N/V$ ) としよう。 $\phi_0$ がゼロの極限では、問題は拡散場中の一体問題となり、反応速度方程式はマクロの時空スケールで次のように書ける<sup>2-5)</sup>。

$$(d/dt)\langle S(t) \rangle = -\kappa_1^0(t)\langle S \rangle \langle E \rangle + \kappa_{-1}^0(t)\langle E_s \rangle \quad (2a)$$

$$(d/dt)\langle E(t) \rangle = -\kappa_1^0(t)\langle S \rangle \langle E \rangle + [\kappa_{-1}^0(t) + k_2]\langle E_s \rangle \quad (2b)$$

ここで $\langle E \rangle$ 、 $\langle S \rangle$ 、 $\langle E_s \rangle$ はそれぞれ酵素、基質、複合体の平均密度である。

$\kappa_1^0$ 、 $\kappa_{-1}^0$ は拡散に影響された反応速度係数であり、特にその定常値は

$$\kappa_1^{0s} = k_1 / (1 + \epsilon) \quad (3a)$$

$$\kappa_{-1}^{0s} = k_{-1} / (1 + \epsilon) \quad (3b)$$

で与えられる。パラメーター $\epsilon = (k_1 / 4\pi aD)$ は前向き反応が拡散に比べてどのくらい速いか遅いかの割合を表す。Dは基質の拡散係数である。特に、拡散が反応に比べて十分にゆっくりしている場合には(即ち $\epsilon \ll 1$ )、 $\kappa_1^s = 4\pi aD$ 、 $\kappa_{-1}^s = 0$ <sup>6,7)</sup>であり、一方、拡散が十分に速い場合には(即ち $\epsilon \gg 1$ )、 $\kappa_1^s = k_1$ 、 $\kappa_{-1}^s = k_{-1}$ となる。

\* ) 主論文はJ. Chem. Phys.(1989) に掲載予定。

ここでは、体積比  $\phi_0$  が小さいけれどゼロではない場合の反応速度係数  $k_1$  への多体の影響を議論する。まず、 $\epsilon$  の値に応じて次の二つの場合を考えよう。

(A)  $\epsilon \ll 1$

この場合は Diffusion-controlled reactions<sup>8-10)</sup> としてよく調べられている。

それによると反応速度係数は

$$\kappa_1(t) = 4\pi a D [1 + (3\phi_0)^{1/2}] + O(\phi_0) \quad (4a)$$

$$\kappa_{-1}(t) = 0 \quad (4b)$$

となり、時間に依らないことがわかる。

(B)  $\epsilon \ll 1$

この場合は拡散過程が反応に比べて非常に速く変化する（あるいは反応が非常にゆっくりと進行する）ので、各酵素間の長距離相互作用は反応が起こるまでの間に十分に平均化されてしまって反応に全く影響を及ぼさない。それで

$$\kappa_1 = k_1 + O(\epsilon^{3/2}) \quad (5a)$$

$$\kappa_{-1} = k_{-1} + O(\epsilon^{3/2}) \quad (5b)$$

であり、反応速度方程式 (2) は Michaelis-Menten 方程式<sup>1)</sup> に一致する。

このように、 $\epsilon$  が両極限の値をとる場合には、反応速度係数  $k_1$  への多体効果は分かっているので、ここでは全く議論されていない任意の  $\epsilon$  の値に対する、反応速度係数への長距離相互作用の影響を  $(\phi_0)^{1/2}$  のオーダーまでの範囲で調べる。

## § 2. 二種類の粗視化法

座標  $r$ 、時刻  $t$  での酵素、基質、複合体の密度をそれぞれ  $E(r, t)$ ,  $S(r, t)$ ,  $E_s(r, t)$  とすると、(1) 式より反応速度方程式は

$$(d/dt) S(r, t) = D \nabla^2 S(r, t) - k_1 S(r, t) E(r, t) + k_{-1} E_s(r, t) \quad (6a)$$

$$(d/dt) E(r, t) = -k_1 S(r, t) E(r, t) + (k_{-1} + k_2) E_s(r, t) \quad (6b)$$

で与えられる。また、密度  $E$ 、 $E_s$  は  $E_0$  を酵素の全密度として保存則

$$E(r, t) + E_s(r, t) = E_0 \quad (7)$$

を満足する。方程式 (6) は酵素についてのミクロの情報、即ちそれぞれの酵素の位置など、をすべて含んでいるという意味においてはミクロの式である。従って、反応速度係数  $k_1$  に対する多体効果を求めるには、それらのミクロの情報を適当な手段で消去し、式 (6) から密度の平均値に対するよりマクロな方程式を導く必要がある。平均値に対する方程式を求めるために、単純に式 (6) を平均すると、結果の式は二体の平均  $\langle S E \rangle$  を含む。また同様に、平均  $\langle S E \rangle$  に対する式を求めるとそれには三体の平均  $\langle S E^2 \rangle$ ,  $\langle S^2 E \rangle$  等を含む。このようにして、一体の平均値に対する式は階層方程式となる。この階層の鎖を断ち切り、平均値

$\langle E \rangle$ ,  $\langle S \rangle$ に対するマクロな閉じた方程式を導くには、適当なスモールパラメーターの存在と平均値に対する揺らぎの相対的な大きさが小さいことが不可欠である。ここでは次の二種類の粗視化の手段によってマクロの方程式をミクロから導出する。

第一の粗視化は、各酵素の初期の位置や状態などの情報を適当な手段で平均し、不必要な変数を消去し、マクロな変数に対する閉じた方程式を導くことである(変数の通減)。この為に酵素の密度  $E(r, t)$  をミクロに定義しよう。  $i$  番目の酵素の位置ベクトルを  $X_i$  とし、時刻  $t$  での酵素の状態を表す関数を  $P_i(t)$  とする。ここで  $P_i(t)$  は 0 と 1 との間の値をとる  $t$  の滑らかな関数であるとする。このとき、酵素および複合体の密度は、保存則 (8) を使ってそれぞれ

$$E(r, t) = \int_0^1 p \mu(p, r; t) dp \quad (8a)$$

$$E_s(r, t) = \int_0^1 (1-p) \mu(p, r; t) dp \quad (8b)$$

と定義できる。ここで  $\mu(p, r; t)$  は酵素の数密度であり、

$$\mu(p, r; t) = \sum_{i=1}^N \delta(p - P_i(t)) \delta(r - X_i(t)) \quad (9)$$

で与えられる。従って、平均値  $\langle E \rangle$ ,  $\langle S \rangle$  に対する閉じた方程式を求めることは、一体分布  $f(p, r; t) = \langle \mu(p, r; t) \rangle$  と  $\langle S \rangle$  とに対する閉じた式を求めることに帰する。

第二の粗視化は、体系内のすべてのプロセスの中から適当な手段によって、マクロの特性時間  $\tau$  及びマクロの特性長  $\ell$  によって特徴づけられるマクロのプロセスのみを抜き出すことである(プロセスの通減)。一体分布  $f(p, r; t)$  に対する方程式は一般に多体分布を含む階層方程式になるが、この鎖を断ち切り、 $f(p, r; t)$  に対する閉じた式を求めるには、適当なスモールパラメーターと一体分布の揺らぎ ( $\delta f = \mu - f$ ) の相対的な大きさ  $|\delta f / f|$  による組織的な展開が必要である。これはスケーリング展開法により実行される<sup>11, 12)</sup>。実際、式 (6a) よりマクロな特性長  $\ell$  及び特性時間  $\tau$  は

$$\ell(t) = (4\pi a^* \langle E(t) \rangle)^{-1/2} \quad (10a)$$

$$\tau = \ell^2 / D \quad (10b)$$

で与えられる。ここで  $a^* = \epsilon a / (\epsilon + 1)$  である。  $\phi_0 \ll 1$  であるので、これから

$$(a^* / \ell)^2 = 3\phi(t) = 4\pi a^{*3} \langle E(t) \rangle \sim \phi_0 \ll 1 \quad (11)$$

となる。従って、この系のスモールパラメーターは  $(3\phi)^{1/2}$  であることがわかる。スケーリング展開法はこのスモールパラメーターによって、時空スケール、系に含まれるマクロのパラメーター、密度の平均値  $\langle A \rangle$  (ここで  $A = E, S, E_s$ ,

$\mu$ ) およびそのまわりの揺らぎ  $\delta A$  ( $= A - \langle A \rangle$ ) 等を自己矛盾なく展開し、必要なマクロの情報のみを抜き出す組織的な展開法である<sup>11, 12)</sup>。 スケーリング展開法の主な結果は次の通りである。  $\ell$ )  $a^*$  であるので、 $\ell$  と  $a^*$  との違いをはっきりさせるために次のスケーリングを導入する。

$$\ell \rightarrow L\ell, \quad a^* \rightarrow a^*; \quad \phi \rightarrow L^{-2}\phi \quad (12)$$

ここで  $L \gg 1$  であり、体系内のミクロのパラメーターはスケールされないものとする。 このとき、着目しているマクロの時空スケールは

$$r \rightarrow Lr, \quad t \rightarrow L^2t, \quad (13)$$

とスケールされる。 これは時空の粗視化を与える。 また、体系のマクロのパラメーターは

$$N \rightarrow LN, \quad V \rightarrow L^dV, \quad E_0 \rightarrow L^{-2}E_0. \quad (14)$$

となり、これは熱力学的極限に対応する。 これから酵素の全密度が小さくなくても、体積  $\ell^d$  内の酵素の数は  $\ell^d E_0 \sim \phi^{-1/2}$  となり、増加することがわかる。 同様に、平均値  $\langle A \rangle$ 、揺らぎ  $\delta A$  は

$$\langle A \rangle \rightarrow L^{-2}\langle A \rangle \quad (15a)$$

$$\delta A \rightarrow L^{-(d+2)/2}\delta A \quad (15b)$$

となる。 これより  $d=3$  のとき  $|\delta A / \langle A \rangle| \sim \phi^{1/2}$  ( $1$  となり、揺らぎは平均値に比べて無視出来ることが分かる。 このようにして、スケーリング展開法は  $\phi^{1/2}$  によって時空スケールおよびマクロの物理量を自己矛盾なく同時に展開する方法を与えることが分かる。

### § 3. 繰り込まれた反応方程式

平均値に比べて揺らぎは無視できるので、ここでは平均値  $\langle A \rangle$  に対する反応方程式のみを議論する。 スケーリング (12-15) を適用し  $L^{-1}$  (即ち  $\phi^{1/2}$ ) のオーダーまで求めると、時空スケール ( $r \sim \ell$ 、 $t \sim \tau$ ) では

$$\begin{aligned} (\partial/\partial t)\langle S(r,t) \rangle &= D\nabla^2\langle S \rangle - \kappa_1^0(t)\langle E \rangle\langle S \rangle + \kappa_{-1}^0(t)\langle E_s \rangle \\ &+ (3\phi(t))^{1/2}[v(r,t) - C(r,t)] \end{aligned} \quad (16a)$$

$$\begin{aligned} (\partial/\partial t)f(p,r;t) &= -(\partial/\partial p)[\{h(p;\langle S \rangle) + k_2(1-p)\}f \\ &+ (3\phi(t))^{1/2}[v(p,r,t) - C(p,r,t)] \end{aligned} \quad (16b)$$

となる。 ここで  $h(p;\langle S \rangle) = [-k_1p\langle S \rangle + k_{-1}(1-p)]b$  であり、 $b = 1/(1 + \epsilon p)$  である。 このとき、ゼロ次の反応速度係数は

$$\kappa_1^0(t) = k_1\langle pb \rangle(t)/\langle p \rangle(t) \quad (17a)$$

$$\kappa_{-1}^0(t) = k_{-1}\langle (1-p)b \rangle(t)/\langle (1-p) \rangle(t) \quad (17b)$$

で与えられる。 ここで  $\langle p^n \rangle(t) = \int_0^1 p^n f dp / \int_0^1 f dp$  である。 また、 $v(p,r;t)$  は長距離相互作用の静的(遮蔽)効果を表し、 $C(p,r;t)$  は動的(相関或は

揺らぎ)効果を表す。 $(v(r;t)=\int_0^1 v(p,r;t)dp, C(r;t)=\int_0^1 C(p,r;t)dp)$ 。

$\phi_0=0$ の場合に対する補正項は $\phi^{1/2}$ のオーダーであり、二種類あることが分かる。それらの項が重要になるのは時間スケールが $\tau' = \tau / \phi^{1/2}$ のオーダーのときである。従って、マクロの時空スケール $(r) \ll, t \sim \tau'$ において $\langle S \rangle$ 、 $f$ は空間的に一様であると考えられる。このとき、多体効果は

$$v(p,r;t) = p b h(p,r;t) f \quad (18a)$$

$$C(p,r;t) = [\alpha(z)h(p,r;t) + \gamma(z) p b (\partial/\partial p) p b] f \quad (18b)$$

となる。 $\alpha, \gamma$ は $z = k_1 \langle S \rangle / (k_{-1} + k_2)$ および $\langle p^n b^m \rangle(t)$ の関数である。

従って、一体分布 $f$ に対する方程式は

$$\begin{aligned} (\partial/\partial t) f(p;t) = & (\partial/\partial p) [-h(p,r;t) + k_2(1-p) \\ & + (3\phi(t))^{1/2} \{(-pb + \alpha)h + \gamma pb(\partial/\partial p)pb\}] f \end{aligned} \quad (19)$$

となり、Fokker-Planck型になる。これから密度の平均値に対する方程式は

$$(d/dt) \langle S(t) \rangle = -\kappa_1(t) \langle S \rangle \langle E \rangle + \kappa_{-1}(t) \langle E_s \rangle \quad (20a)$$

$$(d/dt) \langle E(t) \rangle = -\kappa_1(t) \langle S \rangle \langle E \rangle + [\kappa_{-1}(t) + k_2] \langle E_s \rangle \quad (20b)$$

と導かれ、繰り込まれた反応速度係数は

$$\kappa_1(t) = \kappa_1^0(t) [1 + (3\phi)^{1/2} B_1(z)] \quad (21a)$$

$$\kappa_{-1}(t) = \kappa_{-1}^0(t) [1 + (3\phi)^{1/2} B_{-1}(z)] \quad (21b)$$

で与えられる。 $B_i$ は無次元のパラメーター $z, \epsilon$ 、および $(k_2/k_{-1})$ のみに依存する与えられた関数であり、二種類の多体効果を含んでいる。

式(19)、(20a)を任意の時間に対して連立して解くのは一般には大変であるので、ここでは十分に大きな時間に対する一体分布 $f$ および平均値 $\langle S \rangle$ の振る舞いのみを議論する。密度 $\langle S \rangle$ は密度 $\langle E \rangle$ に比べて非常に大きいので、酵素の時間スケール $(k_1 \langle S \rangle)^{-1}$ は基質のそれ $(k_1 \langle E \rangle)^{-1}$ に比べて非常に短い。従って、長時間後には密度 $\langle E \rangle$ における時間変化はほとんど無視出来ると考えられる。即ち、そのような準定常状態では $(\partial/\partial t) f = 0$ として式(19)を解くことができる。図1にパラメーターの値が $\phi_0 = 0.1, \epsilon = 10.0, k_2 = 9.9 k_{-1}$ である場合の規格化された分布関数 $F(p) = (f/E_0)$ を様々な $z$ の値に対して示す。時間が経過する( $z$ が小さくなる)にしたがって $F$ は平衡分布 $F_{eq} = \delta(p-1)$ に移行することが分かる。二種類の多体効果が分布 $F$ にどのような影響を与えるかを見るために、図1の中で $z=2$ の場合の分布 $F$ を取り出し図2に示す。図中で(0)は式(19)において多体効果がゼロ( $\phi_0=0$ )の場合、(v)は遮蔽効果のみ、すなわち相関効果 $C$ を無視した場合、(C)は相関効果のみの場合、(vC)は遮蔽効果及び相関効果をともに含む場合を表す。直線は $\delta$ 関数を表すものとする。これから遮蔽効果は酵素の時間発展を邪魔するような役割を演じることが分かる。これは拡散場のまわりに沢山の酵素があるために、

基質と酵素との反応が起こり易くなるためであり、その結果として複合体ができ易くなる。これとは逆に、相関効果は遮蔽効果を妨げるような役割を演じることが分かる。これは相関効果が揺らぎに基づくものであるので当然であろう。図2に示すように、この効果は $\delta$ 関数をばかす働きをもつ。

図3にはパラメータ値が $\phi_0=0.1$ ,  $z=0.5$ ,  $k_2/k_{-1}=99.0$ の場合の繰り込まれた反応速度係数 $\kappa_1(t)$ の結果を実線(A)で示す。比較の為に $\phi_0=0$ の場合の反応速度係数 $\kappa_1^0(t)$ も実線(B)で示す。 $\epsilon \ll 1$ のときは、反応は拡散に比べて早く起こるので、相関効果は平均されてしまってゼロとなり、遮蔽効果のみが残り、 $\kappa_1$ は $z$ に依らないことがわかる。このようにして、式(21)は正確に式(4)に一致する。また、 $\epsilon \ll 1$ のときは、反応はゆっくりと起こるので、拡散場は平均されてしまって長距離相互作用効果はすべてゼロとなり、式(21)は式(5)に一致する。一点鎖線は $z=0$  ( $t \rightarrow \infty$ )のときの結果である。実際、 $t \rightarrow \infty$ の極限では式(21)はそれぞれ次の定常値になることが一般に示される。

$$\kappa_1(\infty) = [k_1/(1+\epsilon)] [1 + (3K\phi_0)^{1/2} \{\epsilon/(1+\epsilon)\}^{3/2}] \quad (22a)$$

$$\kappa_{-1}(\infty) = [k_{-1}/(1+\epsilon)] [1 + (3K\phi_0)^{1/2} \{\epsilon/(1+\epsilon)\}^{3/2}] \quad (22b)$$

ここで $K = k_2(1+\epsilon)/[k_{-1} + k_2(1+\epsilon)]$ 。

#### §4. 反応速度

一体分布の場合と同様に、準定常状態においては $(d/dt)\langle E \rangle = 0$ であるので、式(20b)より

$$\langle E_s(t) \rangle = z E_0 / \Delta(z) \quad (23a)$$

$$\langle E(t) \rangle = \Delta(z) E_0 / [z + \Delta(z)] \quad (23b)$$

$$\Delta(z) = k_1 [\kappa_{-1}(z) + k_2] / \kappa_1(z) (k_{-1} + k_2) \quad (23c)$$

を得る。これらを式(20a)に代入して、反応速度 $V$ は

$$V = -(d/dt)\langle S \rangle = -\kappa(z) E_0 \langle S(t) \rangle \quad (24)$$

と求まる。ここで $\kappa(z)$ は繰り込まれた反応速度係数であり、

$$\kappa(z) = \kappa_1(z) k_2 / [\kappa_1(z) \langle S \rangle + \kappa_{-1}(z) + k_2] \quad (25)$$

で与えられる。図4に $\kappa(z)$ を $\epsilon$ の関数として示す。詳細は図3の場合と同じである。図5には $\phi_0=0.1$ ,  $\epsilon=10.0$ ,  $k_2/k_{-1}=99.0$ のときのスケールされた反応速度( $V/V_m$ )を $z$ の関数として示す。ここで $V_m = k_2 E_0$ は最大反応速度である。詳細は図2の場合と同じである。このように遮蔽効果は反応速度を増加させ、相関効果はそれを減少させるように働く。これらの役割は一体分布に対して述べたことと同じである。また、図5から分かるように、相関効果は平衡状態への緩和過程の途中で重要になり、 $z \rightarrow 0$  ( $t \rightarrow \infty$ ) および  $z \rightarrow \infty$  ( $t \rightarrow 0$ ) ではゼロとなることを注意しておく。(M-M)は式(25)において $\epsilon=0$ とした

ときの結果であり、Michaelis-Menten<sup>1)</sup>の結果である。

## §5. まとめ

ここでは酵素間に働く、反応拡散による長距離空間相互作用の反応速度への影響を議論した。そのような多体効果は $\phi^{1/2}$ のオーダーであり、二種類あることが分かった。一つは遮蔽効果であり、酵素間の静的相互作用による。これは反応速度係数 $\kappa_1$ 、反応速度 $V$ を増加させる役割をもつ。この効果は $\epsilon \rightarrow 0$ の極限ではゼロとなる。他は相関効果であり、酵素間の動的相互作用による。これは揺らぎに基づく効果であり、遮蔽効果を邪魔するような働きをし、 $\kappa_1$ 、 $V$ を減少させる。この効果は(1)  $t \rightarrow \infty$ 、(2)  $\epsilon \rightarrow \infty$ 、(3)  $\epsilon \rightarrow 0$ の極限ではそれぞれ平均化されてなくなってしまう。この効果は反応拡散系においては以前に誰によっても研究されていない。

多体効果はパラメーター( $\epsilon$ 、 $\phi_0$ 、 $k_2/k_{-1}$ 、 $z$ )の値に応じてその重要性が異なる。これをはっきりと見るために、反応速度への補正項の相対的な大きさ

$$\Xi(z) = [V(\phi_0)/V(\phi_0=0) - 1] \times 100 \quad (26)$$

を考える。図6は色々なパラメーターの値に対する $\Xi(z)$ を $z$ の関数として示す。

ここでパラメーターの値はそれぞれ

$$\begin{aligned} (a) & (\phi_0, \epsilon, k_2/k_{-1}) = (0.1, 100.0, 99.0), \\ (b) & (0.1, 10.0, 99.0), \quad (c) (0.01, 10.0, 99.0), \\ (d) & (0.1, 1.0, 99.0), \quad (e) (0.1, 10.0, 0.01). \end{aligned}$$

である。これから多体効果が重要になるのは、パラメーターが条件

$$(1) \phi_0 \neq 0, \quad (2) z \ll 1, \quad (3) \epsilon \neq 0, \quad (4) k_2/k_{-1} \ll 1 \quad (27)$$

の少なくともいずれかを満足する場合であることが分かる。

反応速度への拡散場の影響を調べる実験は一、二あるが、多体効果に関する実験は、その効果が大きくなる、 $\epsilon \rightarrow \infty$  (Diffusion-controlled reaction)の場合においてさえなかなか見いだすのが難しいが、パラメーターの値が条件(27)を満足するような様々な拡散反応系での実験が望まれる。

最後に、 $k_2 \neq 0$ の場合の不可逆反応過程における反応速度への拡散場の影響を調べたが、 $k_2 = 0$ の場合の可逆反応過程においては反応拡散は局所で起こり、これら二種類の多体効果はともにゼロとなることを注意しておこう。

## 参考文献

1. L. Michaelis and M. L. Menten, *Biochem.* **249**, 333 (1913).
2. A. Suna, *Phys. Rev.* **B1**, 1716 (1970).
3. M. Pagitsas and R. Kapral, *J. Chem. Phys.* **69**, 2811 (1978)



研究会報告

4. R. I. Cukier, R. Kapral, J. R. Mehafeey and K. J. Shin, J. Chem. Phys. 72, 1830 (1980).
5. S. Lee and M. Karplus, J. Chem. Phys. 86, 1883, 1904 (1987).
6. M. Smoluchowski, Ann. Phys. 48, 1103 (1915).
7. S. H. Horthrup and J. T. Hynes, Chem. Phys. Lett. 54, 244 (1978).
8. B. U. Felderhof and J. M. Deutch, J. Chem. Phys. 64, 4551 (1976).
9. M. Muthukumar and R. I. Cukier, J. Stat. Phys. 26, 453 (1981).
10. M. Tokuyama and R. I. Cukier, J. Chem. Phys. 76, 6202 (1982).
11. H. Mori, Prog. Theor. Phys. 53, 1617 (1975).
12. M. Tokuyama and H. Mori, Prog. Theor. Phys. 56, 1073 (1976).

Fig.1

「パターン形成、運動およびその統計」

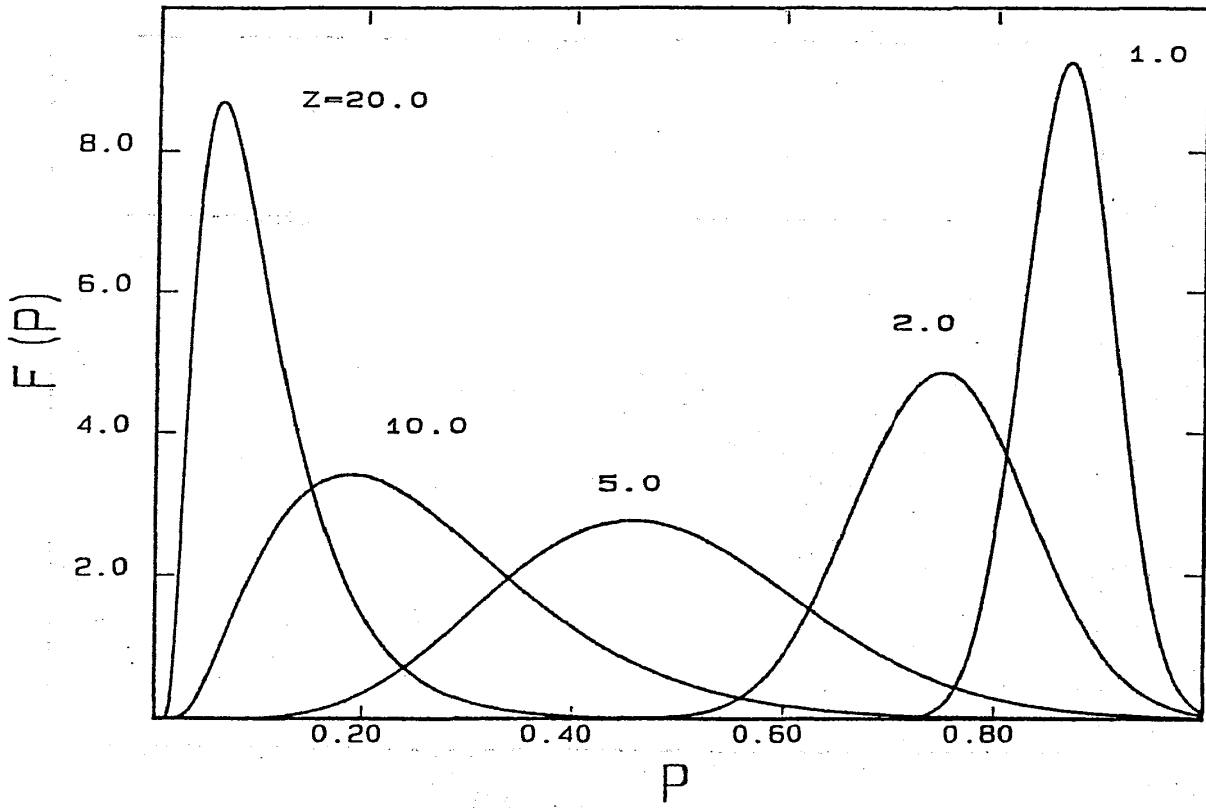


Fig.2

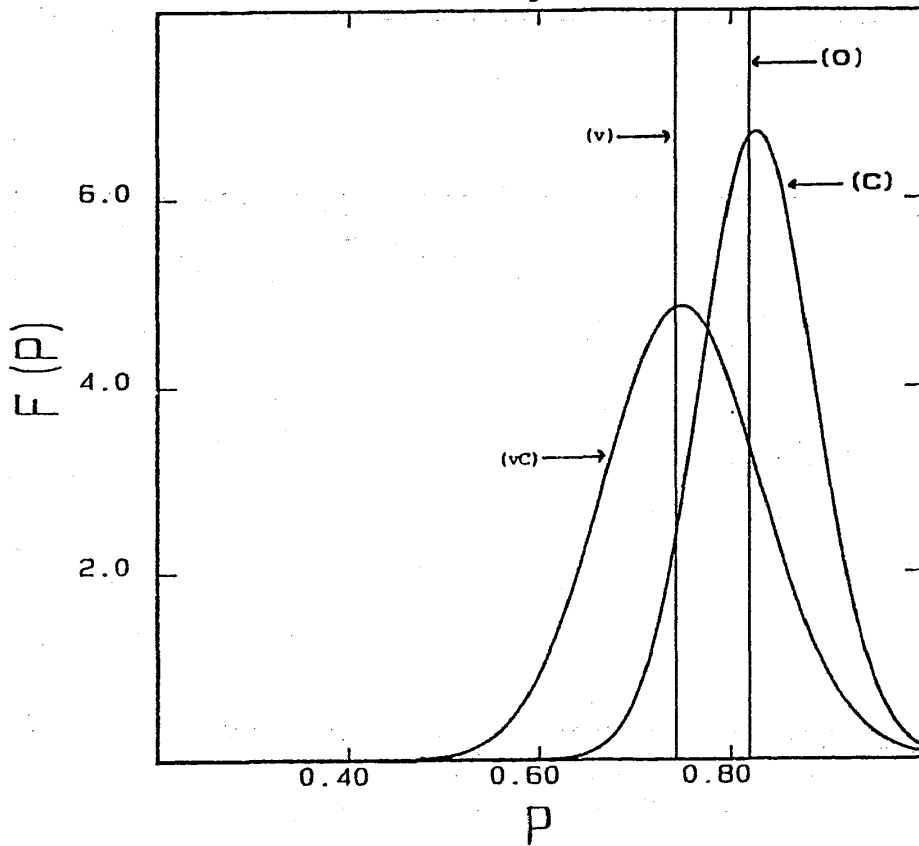


Fig.3

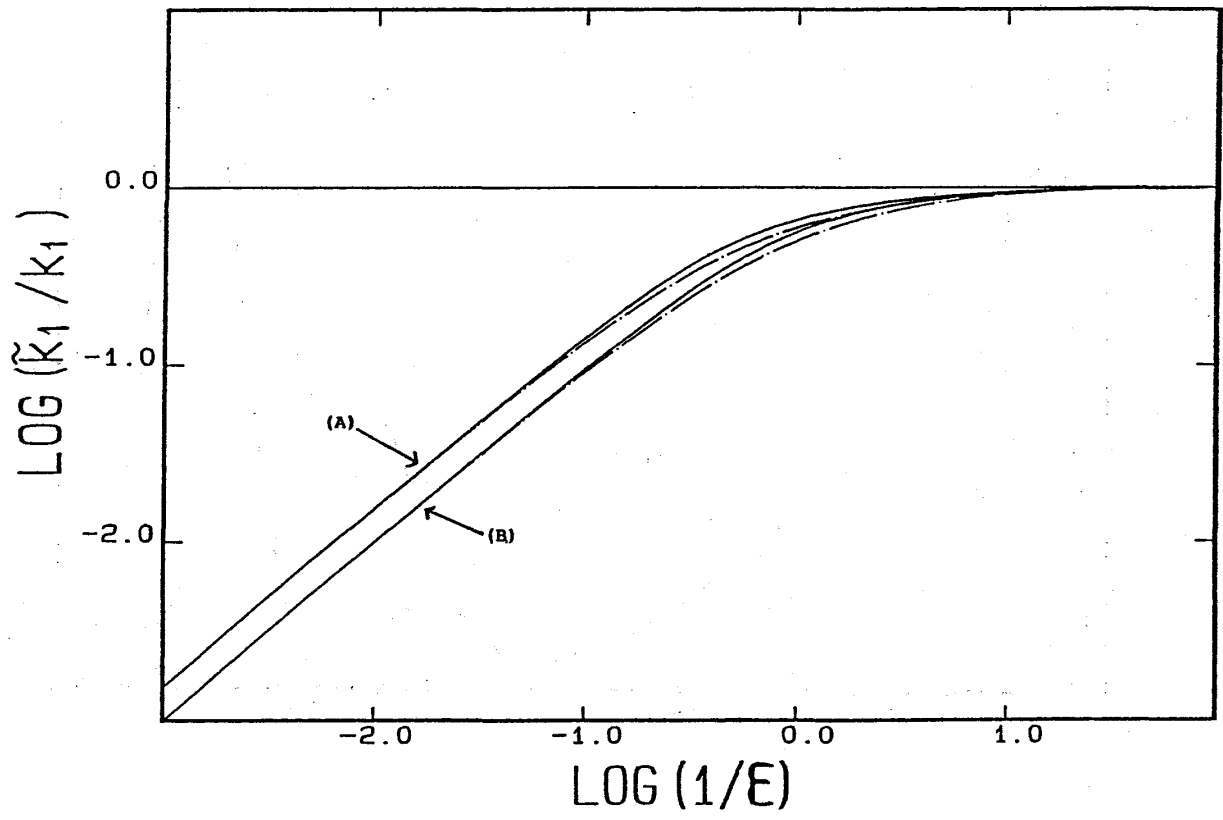


Fig.4

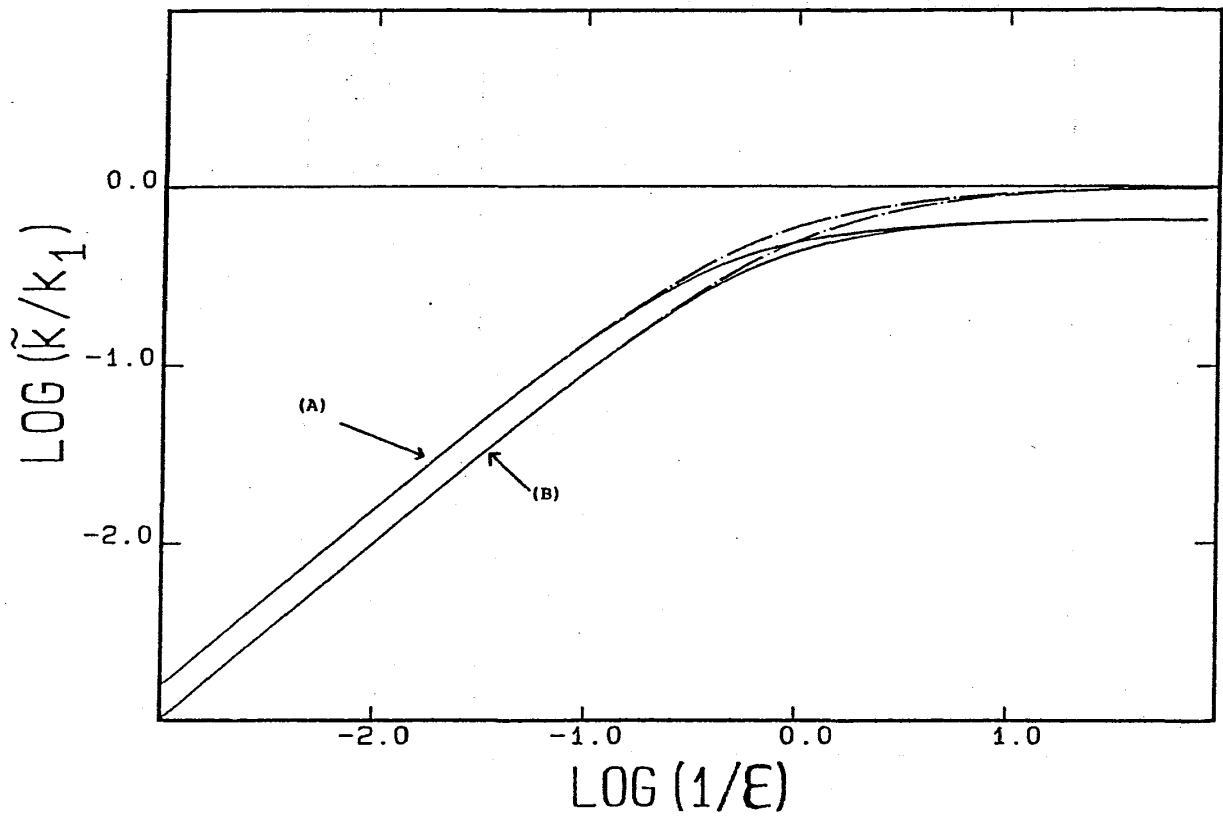


Fig.5

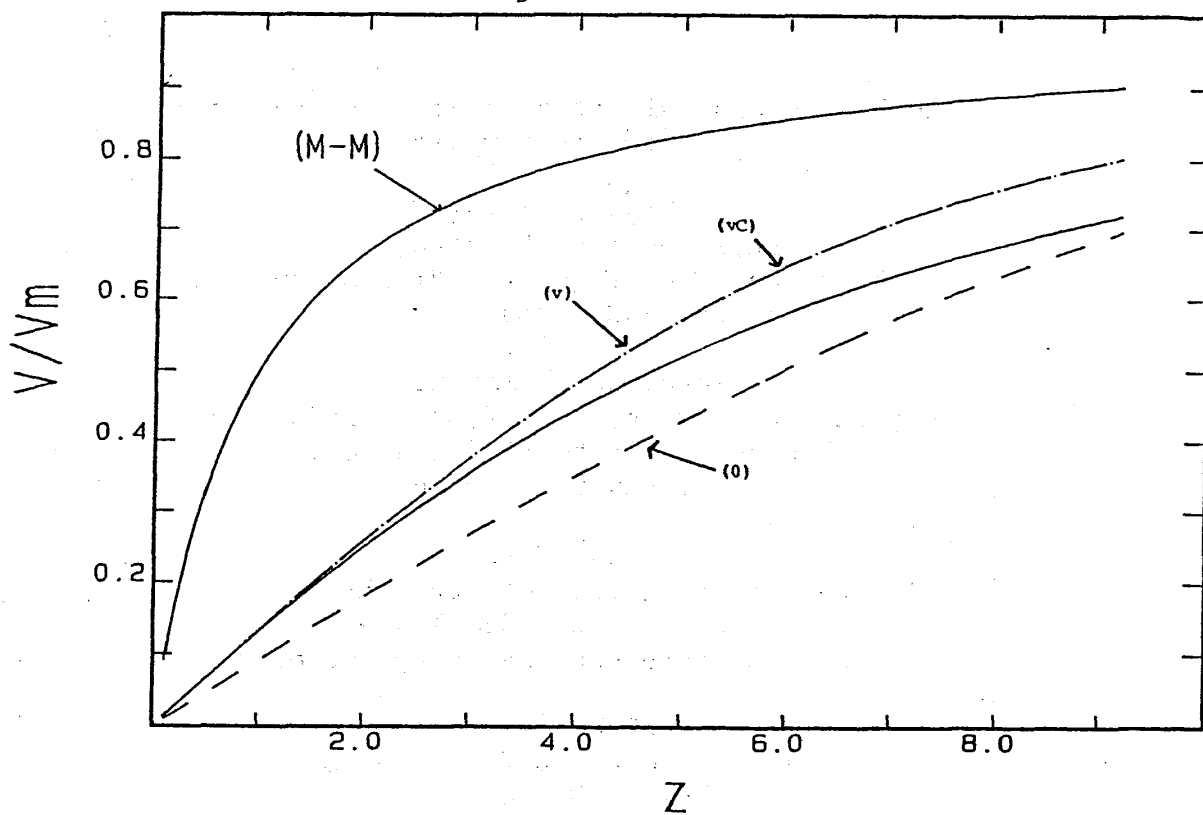


Fig.6

