

## 化学反応波の伝播に伴う流体现象とパターンダイナミクス

## - Chemical Entrainment by Spiral Wave Trains -

三池 秀敏 (山口大工)、S.C.Müller (MPI für Ernährungsphysiologie, FRG)

非攪拌のBelousov-Zhabotinsky (BZ) 反応系ではSpiral WaveやTarget Patternのような化学反応波(トリガ波)の存在が知られており<sup>1)</sup>、非線形に結合した反応拡散のモデルで理論的に取り扱われてきた<sup>2,3)</sup>。反応が溶液中で進行するため、制御困難な溶液中の流れの発生(溶液表面での蒸発冷却に伴う対流の発生など)を抑える目的で特殊な寒天が用いられることもある<sup>4)</sup>。一方、溶液中の化学反応波の伝播が純粋なPhase Waveであるのか、あるいはMass Transportを伴うものであるのかは違った意味で興味深い。最近BZ反応等に伴う”Mosaic Pattern”の発生や<sup>5,6)</sup>、伝播する化学反応波の”Irregular Decomposition”などが報告され<sup>7,8)</sup>、流体现象の存在の間接的な証拠とともに”Chemical & Spatial Chaos”の一例ではないかとの期待もある<sup>7)</sup>。

我々はデジタル動画像処理をベースとした独自の二次元スペクトル測光法<sup>9)</sup>と、二次元速度計測法<sup>10,11)</sup>を用いて、BZ反応に伴う流体现象とパターンダイナミクスを直接定量的に調べて来た。今までにSpiral Waveに伴う振動流の発生<sup>12-14)</sup>やCircular Waveの伝播に伴うグローバルな流れの存在を明らかにしてきた<sup>14)</sup>。今回は、主にSpiral Waveによる周期的な反応波伝播による振動流の発生と、振動流による反応波パターンのダイナミクスに焦点を当てて、その流れのグローバルな構造や振動流発生メカニズムについて議論する。

図1は、測定システムのブロック図を示す。490nmの透過光によりFe<sup>3+</sup>イオン濃度分布を検出しBZ反応波のパターンダイナミクスをモニタすると共に、ポリスチレン微粒子(0.48μm)をHe-Neレーザーにより散乱照明し流れを可視化する。可視化された流れはTVカメラ(National WV-1850)と画像入力ボード(Altec; ALT256-8-DMA)を通してパソコン(PC98)に取り込まれる。その後動画像処理による独自の速度解析法により流速の時間変化や流れの二次元速度ベクトル場の計測が実行できる<sup>10,11)</sup>。

図2はExcitableな反応溶液中にトリガしたSpiral Waves(a)と、これに伴って反応セル中央(溶液表面)で観測された流体

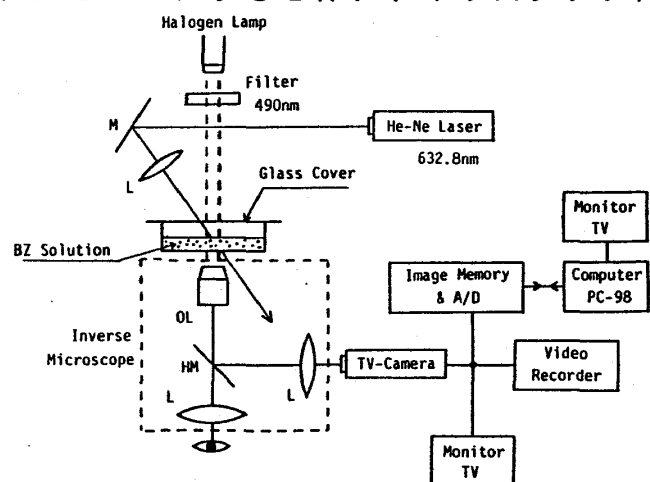


図1. 計測システムブロック図

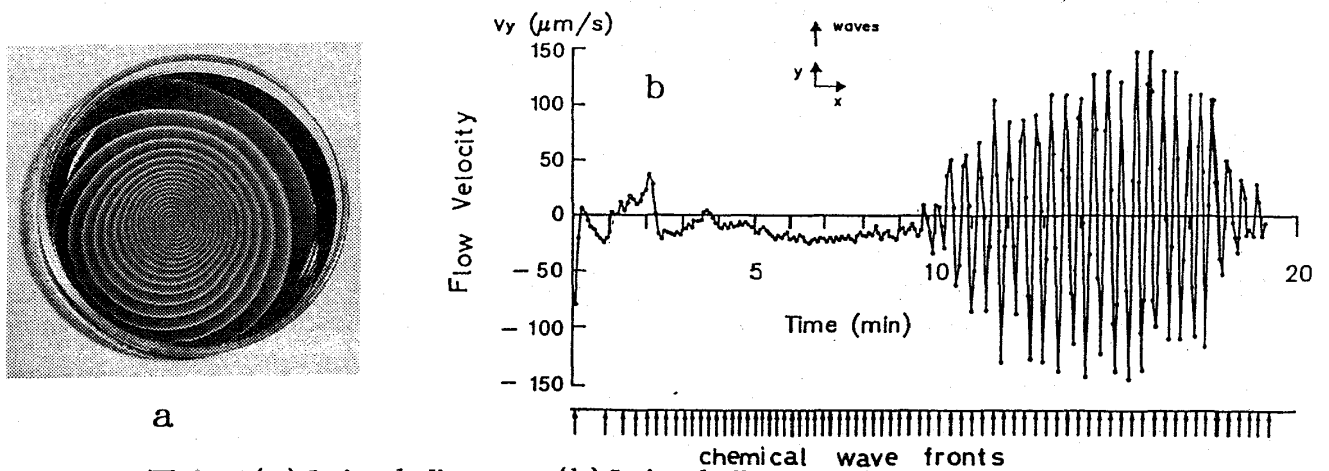


図2. (a) Spiral Waves, (b) Spiral Wavesに伴う振動的流体现象

力学的流れの時間変化(b)を示す。図2(b)中下部の矢印は化学反応波の伝播時刻を示しており、反応波伝播の時間間隔が一定でなく時間変化していることが判る。反応波の伝播に対する流れの様子は大きく分けて三つの時期に分けられる。第一の時期は反応波の伝播の間隔が比較的長い時期で、離散的な波の伝播に対応して流れの方向の変化が確認できる(図中\*印)。十分還元した溶液中を一つの酸化波が伝播する場合には流体力学的な流れが発生し、波の通過と共にその方向が変化する事を別の実験で確認しているが<sup>14)</sup>、図2中の第一の時期はこの流体现象と同一の現象と考えられる。反応波の伝播の間隔が次第に短くなるにつれて、溶液が還元する十分な時間が無いため、この現象は顕著ではなくなってくる。しかし、反応波が次々と伝播する事により流体现象の質が変化し、一方向性の流れが発生する第二の時期に移る。一方向性の流れの流速は余り大きくはないが(-20 μm/s)、比較的安定しており約7分間続いている。第一の時期から第二の時期への移行期において流速が大きく変化している(+45 μm/s → -20 μm/s)ことは注目し得る。第三期は振動流が形成される10分以降である。この時振動流の振幅は最大150 μm/sにも達し、化学反応波の伝播速度を超えて反応波の波面の周期的変形を経て崩壊へとつながる。図3はこの時のパターンの変化を示している。

流速の深さ方向の分布や、反応セル中での観測点の位置を変えて流れのグローバルな構造を推定したところ、図4に示すようなプロファイルが得られた。こうしたスパイラル波を励起した溶液中で観測される周期振動流の発生メカニズムは明らかではないが、現時点で考えられるストーリーとして、

- 1) 反応波の周期的な通過により、反応溶液全体に及ぶ一方向性の流れが発生する。
- 2) 発生した流れは、伝播する反応波の波面の形状に変形(垂直方向)を与える、
- 3) 波面の変形が十分大きくなった時、その曲率の効果で反対方向の流れが発生する。
- 4) 化学反応波の周期的通過による引き込み現象により、波の伝播周期とほぼ同期した周期振動流が形成される、

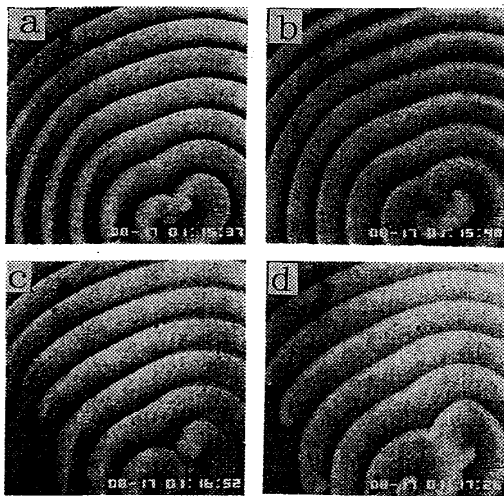


図3. 振動流によるパターンの  
周期的変形と崩壊

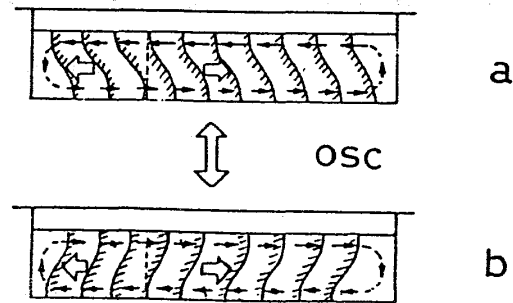


図4. Spiral Wavesに伴う周期振動流  
発生のプロファイル

のように流体现象と化学反応のパターンダイナミクスが非線形に結合していると考えることができる。しかし以上のストーリーは、傍証はあるものの<sup>14)</sup>、曲率の効果による流れの発生などの十分確立していないメカニズムを基礎としており、推測の域をまぬがれない。今後の定量的な実験と定性的なモデルに基づくシミュレーション等により、各メカニズムを確立していく必要がある。

謝辞：この研究の一部はフォルクス・ワーゲン財団(Hannover)及び文部省科学研究費助成金(一般研究C)の援助のもとで行なわれた。

#### 参考文献

- 1) A.M.Zhabotinsky and A.N.Zaikin: J.theor.Biol., 40(1973)45.
- 2) H.L.Swinney and J.C.Roux: Oscillations and Travelling Waves in Chemical System, Wiley, New York (1977).
- 3) C.Vidal and P.Hanusse: Intern.Rev.Phys.Chem., 5(1986)1.
- 4) L.Kuhnert, Naturwiss., 70(1963)461.
- 5) K.Schowalter, J.Chem.Phys., 73(1980)3735.
- 6) M.Orban, J.Am.Chem.Soc., 102(1980)4311.
- 7) K.I.Agladze, V.I.Krinsky and A.M.Pertsov, Nature, 308(1984)834.
- 8) M.Markus, S.C.Müller, Th.Plessner and B.Hess, Biol.Cybern., 57(1987)187.
- 9) S.C.Müller, Th.Plessner and B.Hess, Physica, 24D(1987)71.
- 10) H.Miike, Y.Kurihara, H.Hashimoto and K.Koga, Trans.IECE Japan, E69(1986)877.
- 11) K.Koga and H.Miike, Proceedings in ISSSE'89(Erlangen, FRG 1989)pp.517-520.
- 12) H.Miike, S.C.Müller and B.Hess, Chem.Phys.Lett., 144(1988)515.
- 13) H.Miike, S.C.Müller and B.Hess, Phys.Rev.Letters, 61(1988)2109.
- 14) H.Miike, S.C.Müller and B.Hess, Phys.Lett.A, 141(1989)25.