

結合された化学振動間の位相差の固定化⁽¹⁾

東北大・通研 藤 井 英 彦
沢 田 康 次

Belousov-Zhabotinskii 反応では、初めに空間的に一様であったものから Trigger-Wave と呼ばれる進行波が自己組織することが知られている。ここでは Trigger 波の形成のメカニズムを知るために、相互作用している 2 つの集中定数化した B-Z 振動子間の位相差の動特性を測定した結果を報告する。⁽²⁾

図 1 はその装置図である。反応液をかくはんすることによって、それぞれのセルの中は「一様振動」となるが、同時にかくはんのスピードをかえることで振動周波数の制御も行っていることが特徴である。一般に激しくかくはんすると、かくはん速度の上昇と共にリミットサイクル周波数は低下し、やがて振動は停止する。このことは空気中の酸素によるものらしい。⁽³⁾ 事実、チッ素中での実験ではこのようなことは起らない。⁽⁴⁾ この効果を利用した振動周波数の制御は、たいへんスムーズで扱いやすい。

$t < 0$ で結合をなくしておいて、 $t = 0$ で突然結合をつけてやり、その後の位相差を時間とともに記録する。図 2 は、かくはん速度を一定に保って、 N ($t > 0$ のときの結合穴の数) をパラメータとしたときの結果である。系の老化のために $\Delta\omega$ の値が少し変化しているが N の値 (結合係数 M に反映) に臨界的なところがあり、それを境に定性的な振舞がかわっていることがわかる。また、図 3 は、 N は一定で $\Delta\omega$ をパラメータとしたときの結果で、同様の動特性となっている。

以上の現象を説明するために次のモデルを考える。 θ_1 , θ_2 をセルの位相、 M を結合定数として

$$d\theta_1/dt = \omega_1 - M \sin(\theta_1 - \theta_2) \quad (1a)$$

$$d\theta_2/dt = \omega_2 + M \sin(\theta_1 - \theta_2) \quad (1b)$$

ここで、結合項に $\sin(\Delta\theta)$ をとったのは、このような集中化された系では、結合が $\Delta\theta$ の周期関数だと考えられるからである。⁽⁵⁾

(1a), (1b) から、

$$d(\Delta\theta)/dt = \Delta\omega - 2M \sin(\Delta\theta) \quad (2)$$

となる。(2)は解析的に積分できて

- (i) $\Delta\omega/2M < 1$ のとき, $t \rightarrow \infty$ のとき $\Delta\theta \rightarrow \sin^{-1}(\Delta\omega/2M)$ へ収束する解となる。
(位相差の固定化)
- (ii) $\Delta\omega/2M > 1$ のとき, $t \rightarrow \infty$ のとき $\Delta\theta \rightarrow \infty$ へと単調に発散する解となる。
(位相差の拡大)

このことは実験結果をたいへんうまく説明する。

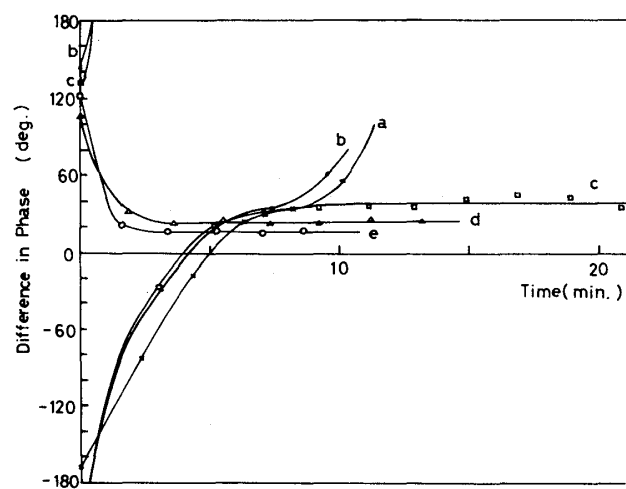
$\Delta\omega = 2M$ のとき私達のモデルでは臨界結合であるが, このときの実験条件をみると, セルの片方から, もう一方への流れの速さは $v \sim 1 \text{ cm/sec.}$ 程度とみつもられ, これも reasonable な値である。

現実の分布系では(ii)の解は出現しないで, すべて(i)の形になると考えられる。⁽⁵⁾ 分布系でのPseudo波からTrigger波への推移は, この集中系の位相差の固定化への過程と対応していると考えられる。

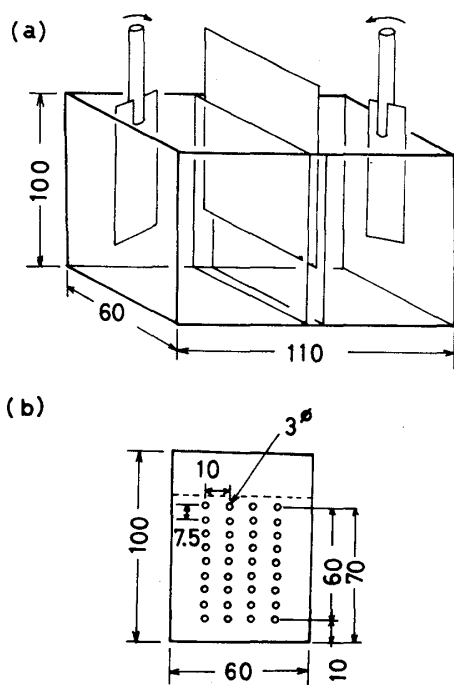
〔注 釈〕

- (1) J. Chem. Phys. に掲載予定。詳しくはそれをみてください。
- (2) すでに Marek, Stuckl (Biophys. Chem. 3, 241) によって Coupling の実験が行われている。私達は $\Delta\omega$ を小さくし, Phase-Dynamics に焦点をおいた。
- (3) R. M. Noyes 教授によると酸素はラジカル $\text{BrO}_2\cdot$ に影響を与えるそうである。
- (4) この実験は, 九州大学・平川研の山崎秀樹氏にご教示いただいた。私達の追試でも結果は同じであった。
- (5) 例えば, 蔵本・山田モデル (Prog. Theor. Phys. 56, 724) では連続系での結合として $\nu \nabla^2 \theta + \mu (\nabla \theta)^2$ を採用している。
- (6) R. M. Noyes 教授らによって Oregonator による同種の実験に対する計算機シミュレーションが行われ, 同様の結果が得られている。

結合された化学振動間の位相差の固定化



〔図 1〕 実験装置。数字の単位は mm。



(a) $N = 20$ ($2\pi/\Delta\omega = 18.6$ 分)

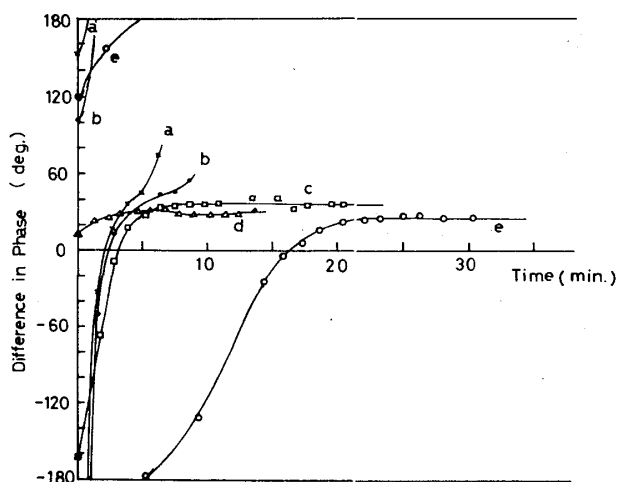
(b) $N = 24$ ($2\pi/\Delta\omega = 13.6$ 分)

(c) $N = 28$ ($2\pi/\Delta\omega = 15.7$ 分)

(d) $N = 32$ ($2\pi/\Delta\omega = 15.8$ 分)

(e) $N = 36$ ($2\pi/\Delta\omega = 19.8$ 分)

〔図 2〕 N をパラメータにしたときの位相差の推移。
かくはん速度は一定。



〔図 3〕 $\Delta\omega$ をパラメータにしたときの位相差の推移

$N = 24$ 一定

- (a) $2\pi / \Delta\omega = 9.3$ 分
- (b) " 10.8 分
- (c) " 13.6 分
- (d) " 14.8 分
- (e) " 49.2 分

Experimental Study on Wave Propagation in the Belousov-Zhabotinsky Reaction

静岡大・教養 長 島 弘 幸

昨年来より、B-Z反応系における波の伝播の測定を行なっているが、実験装置の改良と共に、測定結果の精度も向上しつつある。

シャーレ中に発生するB-Z反応の進行波は、一般に多くのpace-makerから種々の波長の波が発生、伝播し、壁、又は波どうしの衝突により消滅する。この個々の波は一見、法則性がない様に見えるが、注意深く測定すると、その波数 k と角振動数 ω との間には