

16. Oscillatory Deformations and Turbulent Behavior of Chemical Waves

Induced by Oscillating Surface Flow in BZ-reaction

— B Z 反応における流体现象と動的パターン形成 —

三池秀敏*、S.C.Müller** and B.Hess**

* 山口大学工学部 (宇部市常盤台2557)

** Max-Planck-Institut für Ernährungsphysiologie, Rheinlanddamm 201, D-4600
Dortmund 1, FRG

Abstract

Hydrodynamic instabilities in a reactive liquid induced by the propagation of waves of chemical activity (chemical waves) are investigated for ferroin-catalyzed Belousov-Zhabotinsky (BZ) reaction by 2D spectrophotometry and 2D velocimetry based on microscope video imaging techniques. Oscillations of the hydrodynamic flow were detected in rotating spiral waves with an open liquid/gas interface. Periodically varying deformations and irregular decompositions of chemical wave profiles were also observed in the reactive layer. These are due to an oscillatory hydrodynamic flow detected close to the layer surface. A model explaining the onset of oscillatory surface flow and dynamic pattern deformation is discussed. New mechanisms of chemical entrainment and curvature effect on chemical wave are introduced for the hydrodynamic instabilities in BZ-reaction.

1. 序論

非平衡開放系におけるパターンの自己組織化の問題は、現在の自然科学の中心的な研究テーマの一つとして広い分野の研究者の関心を集めている。Belousov-Zhabotinsky(BZ)反応は動的な化学反応パターンの出現する系としてよく知られ、非攪拌のバッチ・リアクターで観測されるTarget PatternやSpiral Wave は非線形結合した反応・拡散系の作る動的なパターンとして理論的に取り扱われてきた^{1,2)}。通常こうした実験は1mm程度の深さに反応溶液を満たしたペトリ皿を用い、液の蒸発を防ぐためガラスのカバーで覆っておこなわれる。しかし、カバーを取り去った場合には非常に多様なパターンが観測される。"Mosaic Pattern"と呼ばれる静的なパターンやTransientなパターン、さらには伝播するChemical Waveの波面の幾何学的な歪や不規則なパターンへの崩壊が報告されている³⁻⁸⁾。こうした現象は反応溶液表面の蒸発冷却や反応に伴う発熱によりもたらされる温度勾配(Rayleigh-Benard Instability)や、温度や化学成分の分布の不均一による表面張力の不均一(Marangoni Instability)によって引き起こされる対流の効果⁹⁻¹¹⁾として定性的に説明されてきた¹²⁾。

本研究では、こうした反応に伴う流体力学的な流れを定量的に計測すると共に、Chemical Waveと流体現象との相互作用を明確にするため、顕微鏡ビデオ画像処理技術を基礎とした二次元 Spectrophotometry^{13,14)} 及び二次元 Velocimetry¹⁵⁻¹⁷⁾ の二つの新しい計測法を開発し導入した。Spiral Wave を中心とした実験の結果、1) Spiral Waveを励起して一定時間経過後、周期的に振動する流れが反応溶液の表面近くに発生する¹⁸⁾、2) 振動的な表面流の影響でChemical Waveは波面の周期的な変形や不規則な崩壊を受けること^{19,20)} が明かとなった。すなわち、カバーのない反応溶液系の流体現象としては、従来考えられていた対流だけではなく溶液表面での振動的な流れという新しいタイプの流体現象が存在し、これが反応系に多様なパターンが形成される主因であることが判明した。ここではSpiral Waveを励起した系で観測された振動的表面流や波面の周期的変形のメカニズムについて、最近の一連の実験で得られたCircular Wave²¹⁾ やKinematic Wave¹⁸⁾ に付随する流体現象の知見を加えて総合的に議論する。

2. 試料及び方法

2.1 試料調整

実験に用いたBZ反応溶液は、48mM NaBr, 340mM NaBrO₃, 95mM CH₂(COOH)₂, 378mM H₂SO₄, 及びフェロイン3.5mM を成分とする。溶液は通常静止状態にあるが外部からの励起によりCircular WaveやSpiral Waveが励起できる^{3,7)}。反応溶液は混合後ミリポア・フィルター(0.22 μ m)を通した後、約7cm ϕ の傷や汚れの無いペトリ皿にセットされる。反応溶液中の流速を計測する場合には0.48 μ m ϕ のポリスチレン微粒子を少量(約10⁶/ml)混入する。溶液の量は液層の深さが一定(0.85 or 0.94mm)となるよう調整し、セルの中心から1-2cm離れた位置にSpiral Waveを励起する(励起法については文献13参照)。一定時間経過すると、回転するSpiral Waveにより図1に示しているようにほぼ一定の間隔でChemical Waveが次々と伝播するパターンが観測される。ここで注目すべきはセル中にCO₂ガスの発生に伴う気泡の形成が見られないことと、セルの周囲から励起したSpiral Wave以外の波が励起されていないことである。気泡の形成やセル周囲からの余分な波の発生は、パターン形成に悪影響を与えたり本質的な現象を覆い隠す場合がある。十分コントロールされた条件下での観測が再現性のある実験を行なう上で重要である。こうしたBZ反応におけるパターンのダイナミクスと流体现象を、反応セルにカバーをした場合としない場合について観測した。カバーをした時、溶液表面とガラス・カバーとのギャップは約12mmであり、測定は全て室温(25 $\pm$ 1 $^{\circ}$ C)で無風状態で行なった。

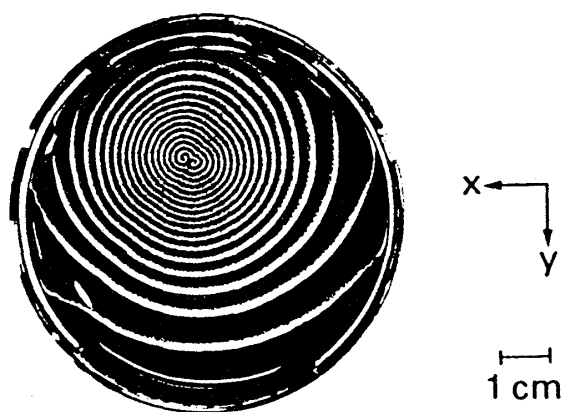


Fig.1 Pair of spiral waves in a thin solution layer (depth, 0.85mm) of the BZ-reaction. Transmitted light is measured in a 3x3mm² section at the dish center.

2.2 計測システム

計測に用いたシステムの概略を図2に示す。BZ反応により生じる酸化・還元の色は触媒であるフェロインの酸化状態 (Fe^{3+} :青色) と還元状態 (Fe^{2+} :赤色) の色の違いにより可視化される。光学干渉フィルタ(490nm)を用いることで、透過率の違いを利用して反応溶液中の Fe^{3+} イオン濃度の空間分布が定量的に観測でき化学的活性のモニタが可能である (2D-Spectrophotometry)^{13,14)}。一方、溶液中に混入させたポリスチレン微粒子をレーザ光(He-Ne:632.8nm)により散乱照明することで反応溶液中の流体力学的流れを可視化することができる。二つの照明方法を同時に用いることで化学的活性と流体現象を同時に観測できるのが特徴である。捉えられた顕微鏡 (Zeiss IM 35) 下の二次元像はTV-カメラを通してビデオレコーダ (Sony V0-5800) で記録したり、インタフェースを介してコンピュータ・システム (Parkin-Elmer 3230) に入力される。ビデオ装置及び動画像処理システムを利用することで二次元速度ベクトルの解析が可能となる (2D-Velocimetry)¹⁸⁾。ここではマニュアル操作を介在させて5秒毎の流速を解析しているが、動画像処理により1秒毎の流速が自動解析可能なシステムを現在開発中である^{16,17)}。また観測した化学反応パターンのダイナミクスを定量的に解析するために、ある領域の Fe^{3+} イオンの濃度変化を連続的にモニタする方法を導入した。すなわち図2右下に示しているように、TV-カメラのモニタTV上にフォトダイオードを置き、画像中の任意の場所での透過光量の変化を捉え、パワスペクトル等の解析をパーソナル・コンピュータにより実行した。

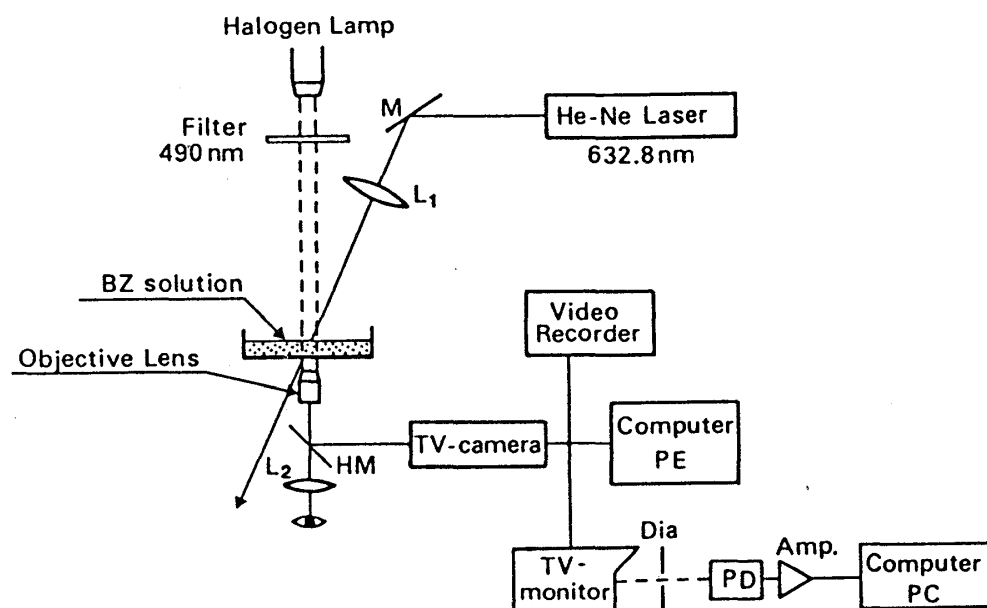


Fig.2 Schematic diagram of the microscope video image processing system for two-dimensional velocimetry and two-dimensional spectrophotometry.

3. 実験結果

3.1 Spiral Waveに付随する流体现象（反応セルにカバーをした場合）

図1に示したようなSpiral Waveを励起した状態で、反応セル中央の溶液表面近くの流速を計測した。実験は溶液の蒸発を防ぐためセルにガラス・カバーをした状態で行ない、Chemical Waveの伝播していく方向に垂直な方向をx方向、伝播方向を-y方向とした。おのおのの方向の流速の時間変化を図3，図4に示す。図中下部に示した矢印は、観測点に波が次々に到達する時刻を表わしている。図4は+y方向の速度成分で、反応スタート後3分位経過して過渡的な変動が落ち着いた後、 $3\sim 5\mu\text{m/s}$ の速度をもつ+y方向（Spiralの中心に向かう方向）の流れが発生している。この流速はそれほど大きなものではないが、図3に示した波の伝播方向に垂直な成分の変動が小さく（ $2\mu\text{m/s}$ 以下）ほぼ速度ゼロの回りで変動していることから、単なる不規則な揺らぎとは考えにくくまた現象の定性的な再現性も良い。反応セルにカバーがあることから、流れの成因が溶液表面の蒸発冷却等に伴い発生する対流によるものとも考えにくい。一つの可能性として、周期的なChemical Waveの通過が流れの発生メカニズムと関係していることが考えられる。このことは後述する反応溶液のカバーを取り去った状態での実験を通して明らかにされる。

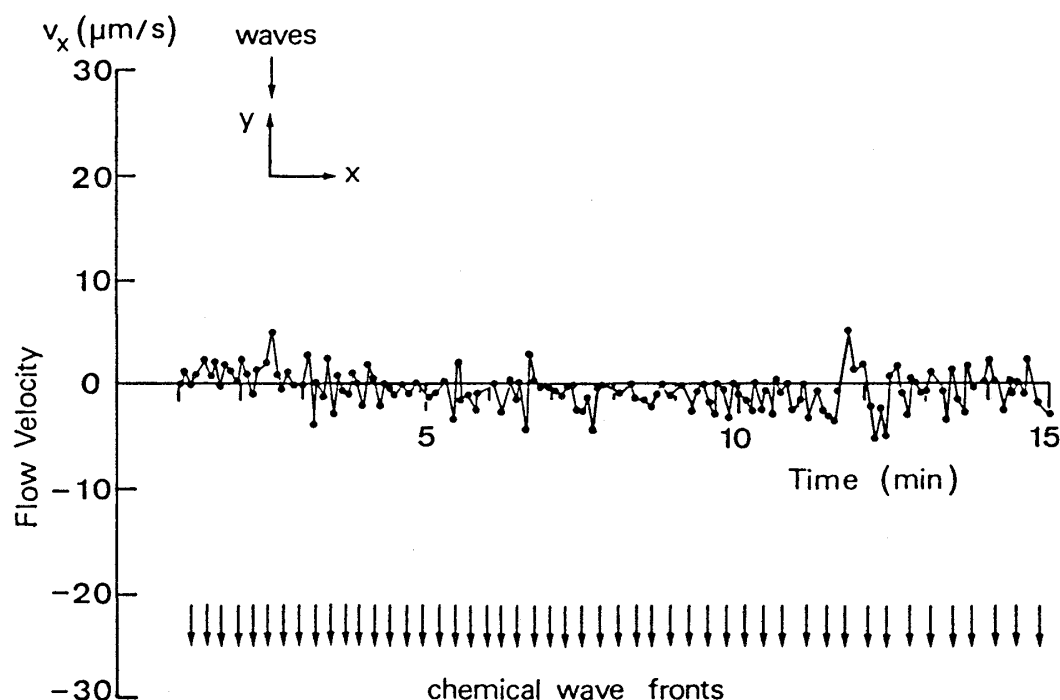


Fig.3 Temporal trace of flow velocity in x-direction (perpendicular to the chemical wave propagation) at the center of a covered layer (depth, 0.85mm) under triggering spiral waves. Arrows: passage times of wave fronts.

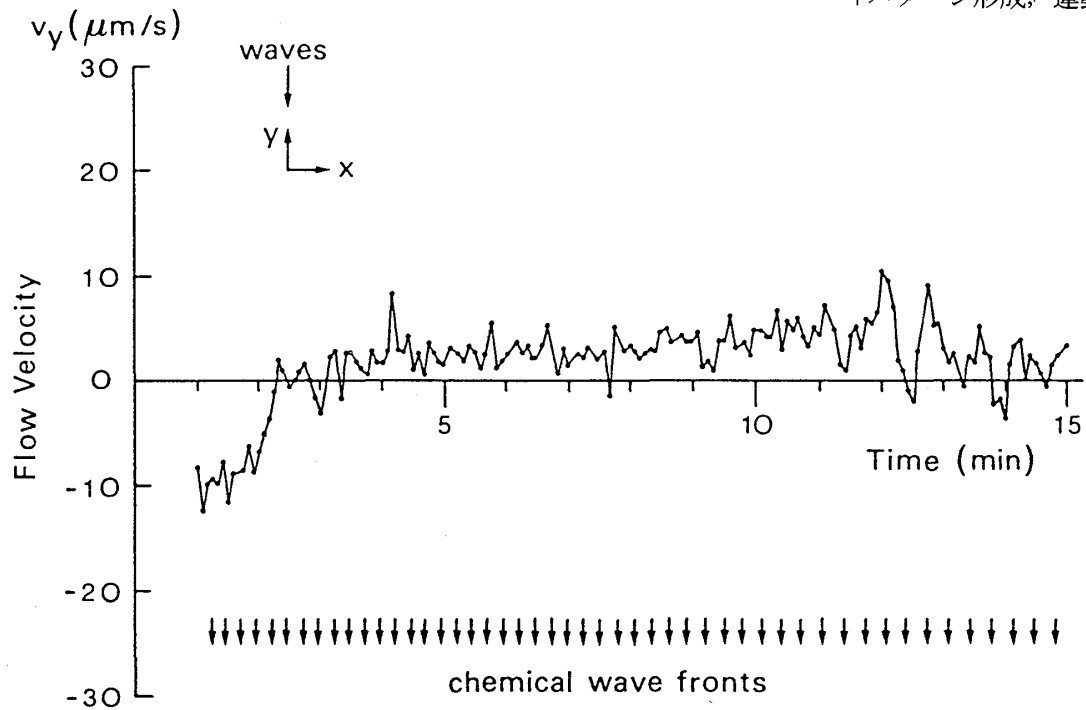


Fig.4 Temporal trace of flow velocity in y-direction (parallel to the chemical wave propagation) at the center of a covered layer (depth, 0.85mm) under triggering spiral waves. Arrows as in Fig.3.

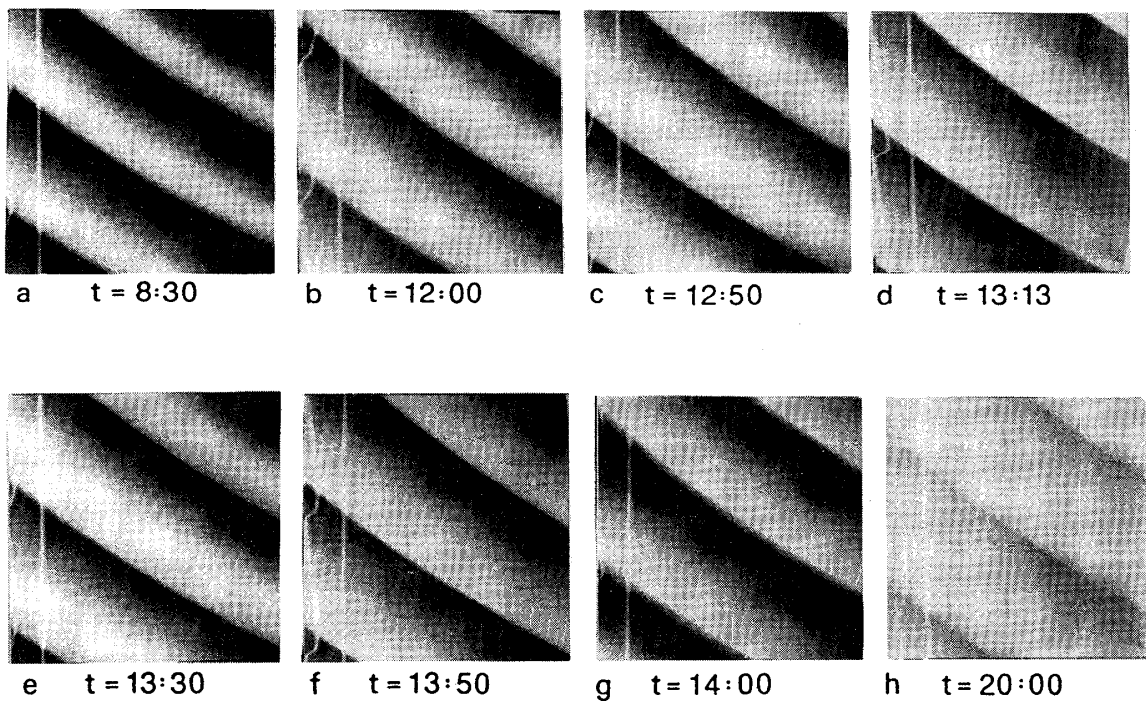
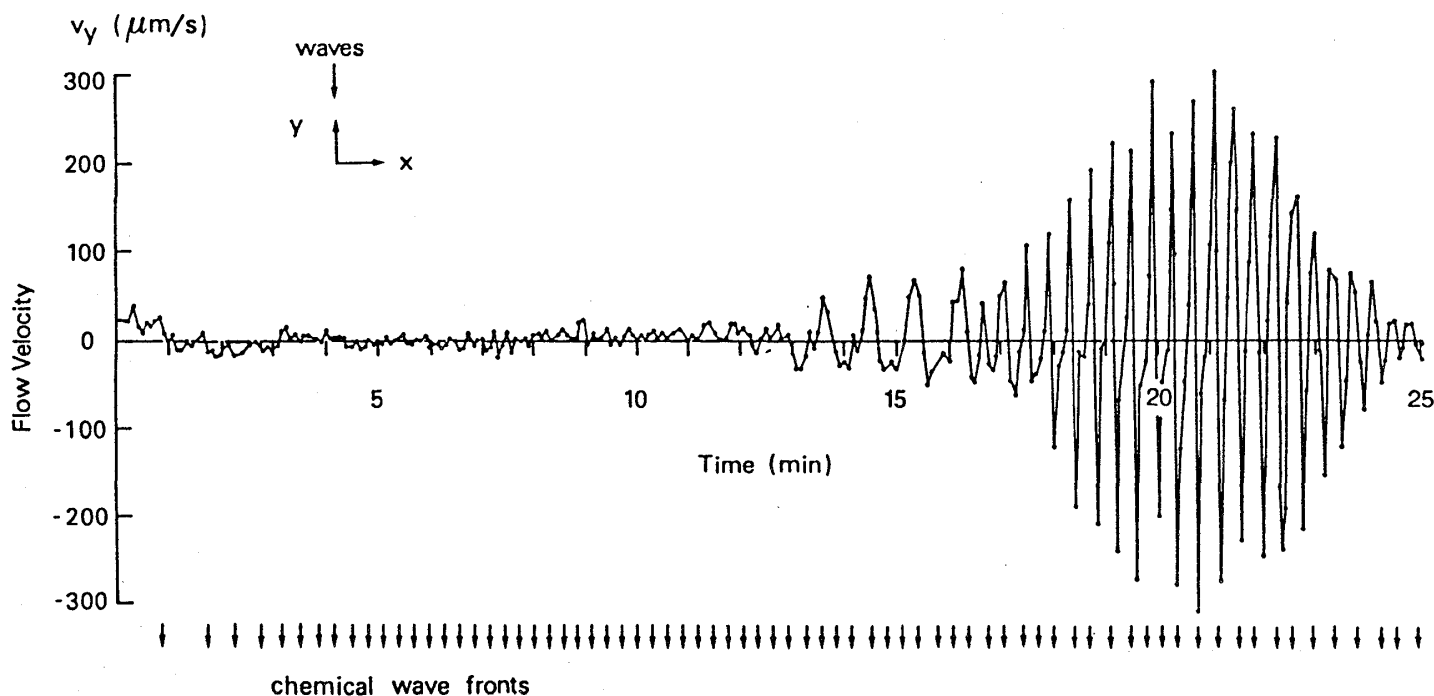


Fig.5 Image sequence of the temporal development of chemical waves at 490nm under covered condition (without illuminated polystyrene particles).

一方、注目すべきは測定開始後約12分の時点で弱いながらも振動的な流れが見られることで、この領域での流れの振幅は $6\mu\text{m/s}$ を超えている。この時間領域の Spiral Waveパターンの時間変化を図5に示している。全体的には特に顕著な変化は見られないが、注意深く見ると図4に対応して12分過ぎに伝播する波の波面状に波面と平行な白いラインやパッチ状の白い模様が現われている(図5(b))。また、波面の形状がシャープになったりフラットになったりする1~2周期の小さな変動が11~12分の時間領域で観測される(図5(c-g))。この時期が弱い振動的な流れの発生する時期と一致していることから、流体现象とパターンの変形との相関があることが考えられる。

3.2 Spiral Waveに付随する流体现象(カバーの無い場合)

反応セルのカバーを取り去った状態でSpiral Waveを励起すると、非常に顕著な流体现象やパターン・ダイナミクスが観測される。図6はこの状態で反応溶液の表面近くで観測された流速(Chemical Wave の伝播方向に平行な成分)の時間変化を示す。



Fi.6 Temporal trace of the flow velocity in y-direction (parallel to the chemical wave propagation) at the center of an uncovered layer (depth, 0.85mm). Cover removed at $t=0$ min. Arrows as in Fig.3.

図の下部の矢印はやはり観測点でのChemical Waveの通過時点を表わす。この例は特に顕著に流れが発達した場合を示しているが、

- 1) 約12分過ぎから明らかに発振的な流れが発生している、
- 2) 17分以降に発振的な流れは急速に成長し、その振幅は $300\text{ }\mu\text{m/s}$ を超える、
- 3) 振幅の最大期には振動流の周期と、伝播しているChemical Waveの周期がほぼ一致している、

などの特徴を持っている。また観測点が反応溶液の表面から離れて深くなると振動流の振幅は急激に減少するという実験事実より、振動流が反応溶液の表面近くに限られていることが判る。

図7はこうした状態に対応する、反応の進展に伴って観測されるパターンの時間変化を示している。この図でも、

- 1) 10分までは特に目立った変化は起こらない(a)、
- 2) 10分過ぎに白いパッチ状のパターンが反応波の波面状に現われる(b)、
- 3) 11~13分の時間領域で波面の形状がシャープからフラット、フラットからシャープへと周期的に変形する(b-j)、

4) 15分過ぎから波と波の重なりが生じ、ランダムなパターンへ崩壊している(k-p)、
 などのように多少の時間的なズレはあるものの図6に示した流速の変化に対応するパターンの顕著な変化が観測された。また特にこの例では、偶然小さなダスト粒子（約 $50\text{ }\mu\text{m}\phi$ ）が溶液表面に浮かんでいて（図中矢印）流れのモニタ役を果たしており、表面の振動流とChemical Waveのパターンの変化とが強い相関を持っていることが明らかとなった。すなわち、観測されたChemical Waveの波面の周期的変形が発振的振動流により引き起こされていると共に、振動流が特別発達した時にはSpiral Waveの崩壊をまねくことを示唆している。実際に、図6で観測された $300\text{ }\mu\text{m/s}$ の流速はその時点での波の伝播速度（約 $50\text{ }\mu\text{m/s}$ ）を遙かに上回っており、その可能性は高い。しかし、こうした振動流の異常な発達はいつでも観測されるわけではなく、約10%の確率である。多くの場合振動的流速は約 $40\text{ }\mu\text{m/s}$ の振幅まで発達した後減衰していく。

Chemical Waveの波面の周期的振動はほぼ毎回観測されるが、いつもランダムなパターンに崩壊していくわけではない。実験の条件を管理しほとんど同一の状態で繰り返しても、振動流の発達の程度は実験毎に微妙に変化する。反応セルのカバーが無いため、表面での溶液の蒸発が制御できないのがその原因とも考えられるが本質的なランダムネス（カオス的現象）が支配している可能性もある。

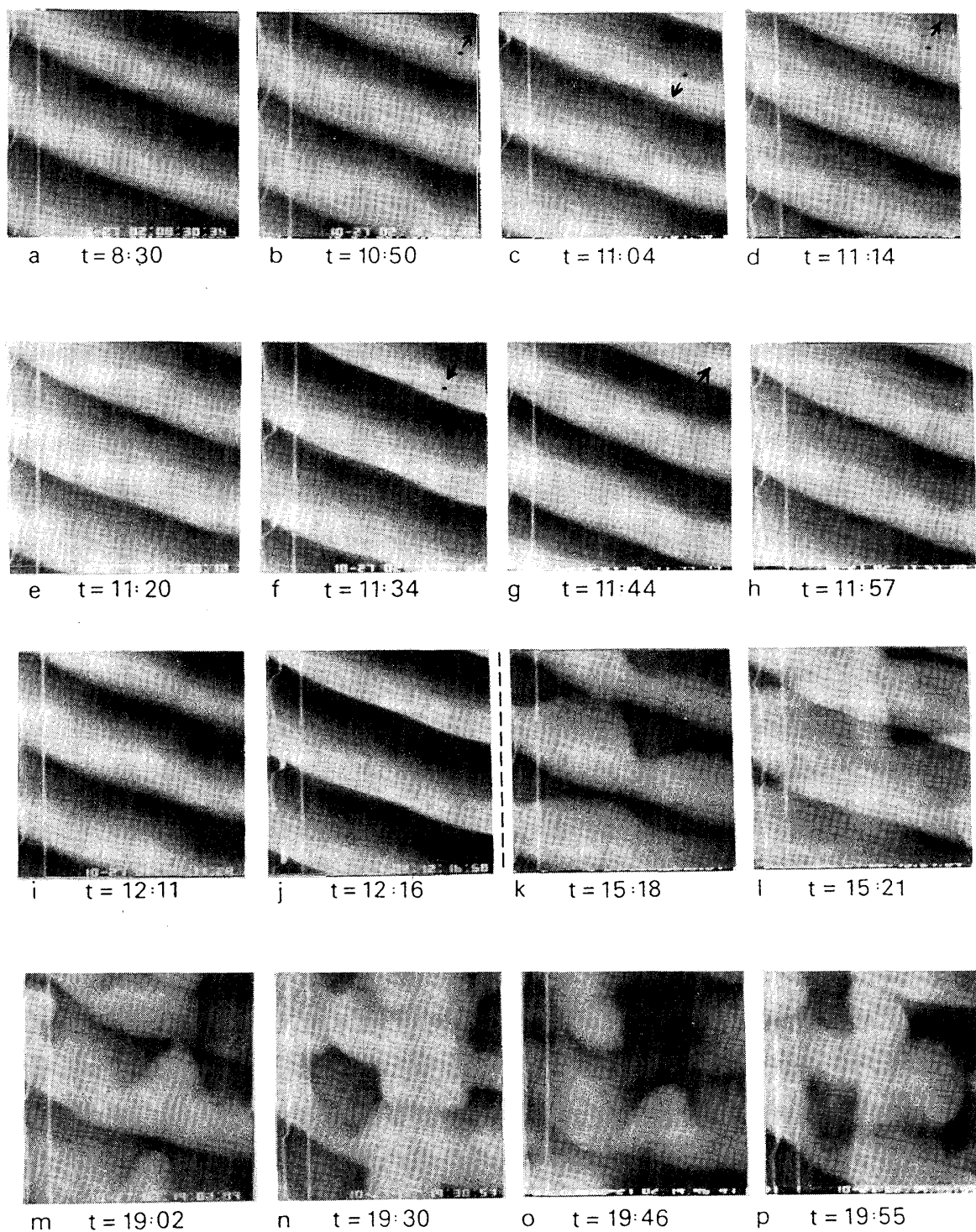


Fig.7 Image sequence of the temporal development of waves at 490nm under uncovered condition (without illuminated polystyrene particles).

1 mm

3.3 パターン・ダイナミクスの定量的評価

Spiral Waveの励起により、カバーをしていない反応溶液中に振動的表面流の発生やこれに伴う反応パターンの動的な変形・崩壊が観測された。ここでは反応波のパターン・ダイナミクスを定量的に捉えるため、ある局所領域（約 $20\ \mu\text{m}\phi$ ）における画像の濃淡強度（490nmでの透過光強度： Fe^{3+} 濃度を表わす）の時間変化をモニタした。図8(a)は反応セルにカバーをした場合の測定結果で、Spiral Waveにより励起された反応波の通過により持続的な強度の振動が観測される。全体的に振動の振幅及び周期が緩やかに変化しているが、1)強度のレベルが時間と共にしだいに上昇している、2)11~12分の時間域で振動の振幅が少し大きくなりかつ揺らぎも増大している、などの特徴を持つ。1)は反応の進展に伴い溶液中の Fe^{3+} のイオン濃度が増大していることを示しており、また2)の振舞は図4及び図5(b-g)で見られた11~12分時点での弱い振動的流れとこれに対応する波面形状の周期的変動と関連していると思われる。すなわち、弱い振動的な流れの発生によりChemical Waveの波面が周期的摂動を受けているためと考えられる。図8(b)は図8(a)の400-800秒の区間のパワースペクトルを示している。最も強いスペクトル強度を示す0.06Hzのピークは、反応波の伝播周期がほぼ17秒で一定であることを示している。11~12分時点での小さな異常はスペクトル上では確認し難い。

一方、図9(a)はカバーをしないときの測定結果で、1)振動振幅に長周期の変動が観測される（周期7-8分）、2)10分後頃から発振の振幅が一周毎に変化する、などの顕著な特徴が見られる。1)は変動のスタートが早いことや、その周期の長さから判断して、反応溶液のバルク中に発生した対流により伝播するChemical Waveが摂動を受けたものと考えられる。実際にChemical Waveを励起しない反応溶液層での実験より、カバーを取り去った後2-3分で対流の存在を示す“Mosaic Pattern”^{2, 22)}が出現することや、反応溶液中にゆっくりと変動する流れ（ $3-5\ \mu\text{m/s}$ ）が存在していることを確認している¹⁸⁾。一方、2)は図6、図7で示した振動的表面流及びパターンの周期的変形が観測された時期に対応しており、Chemical Waveの波面の形状がシャープからフラット、フラットからシャープへと周期的に変化する現象を定量的に捉えていると考えられる。図9(b)は図9(a)の後半の時系列のパワースペクトルを示し、基本周期を示すスペクトル f_0 とその倍の周期を持つ f_1 がはっきりと確認できる（周期倍化現象）。またここには示していないが、振動的表面流が異常に発達する場合には、伝播する反応波が崩壊していくとともに、図9に示した透過光強度の振動がランダムな変動にと変化していく。このように周期的振動から周期倍化現象を経てランダムな変

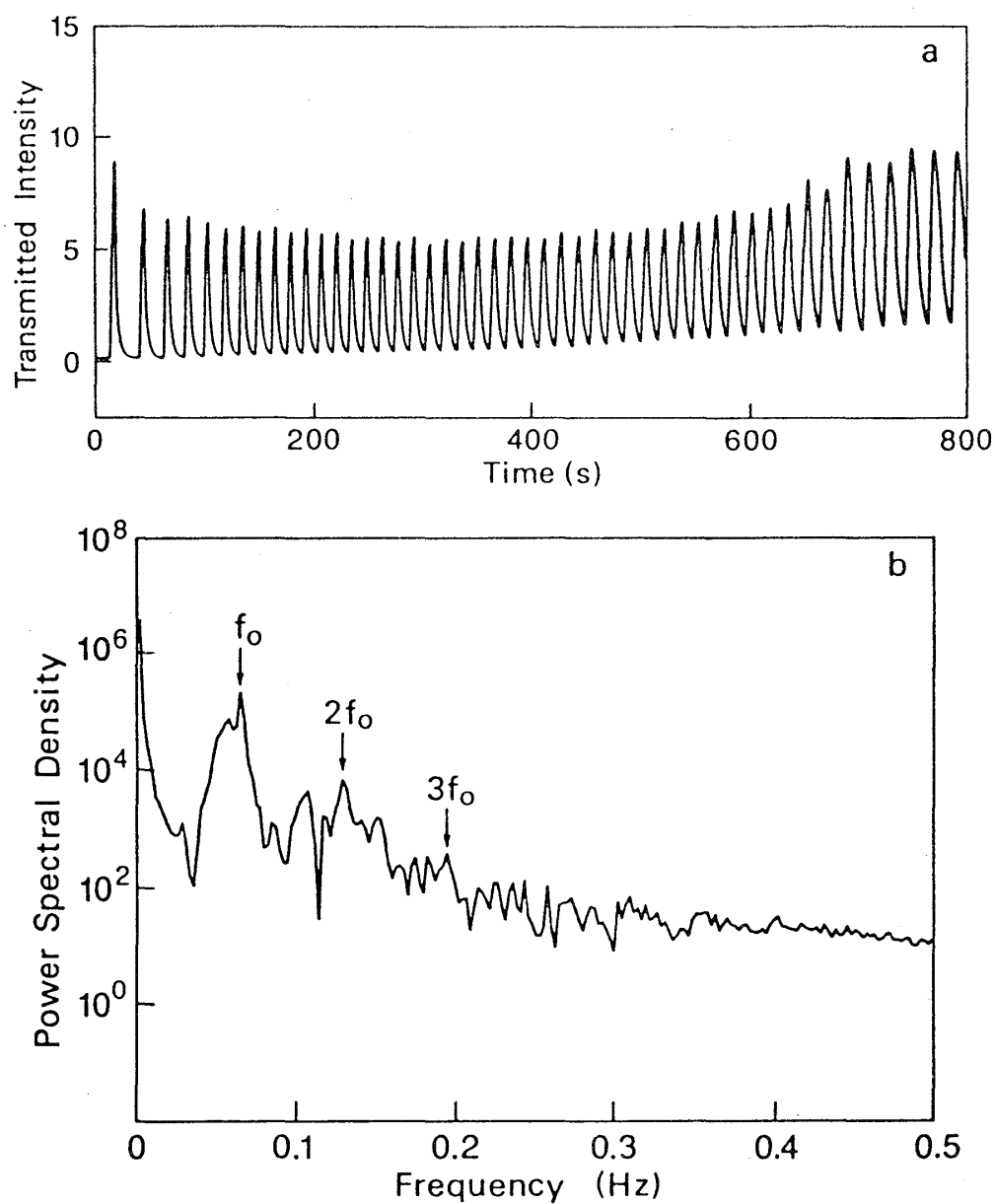


Fig.8 Time dependence of local transmitted light (a), and its power spectrum (b) in spiral waves under covered condition (depth, 0.94mm).

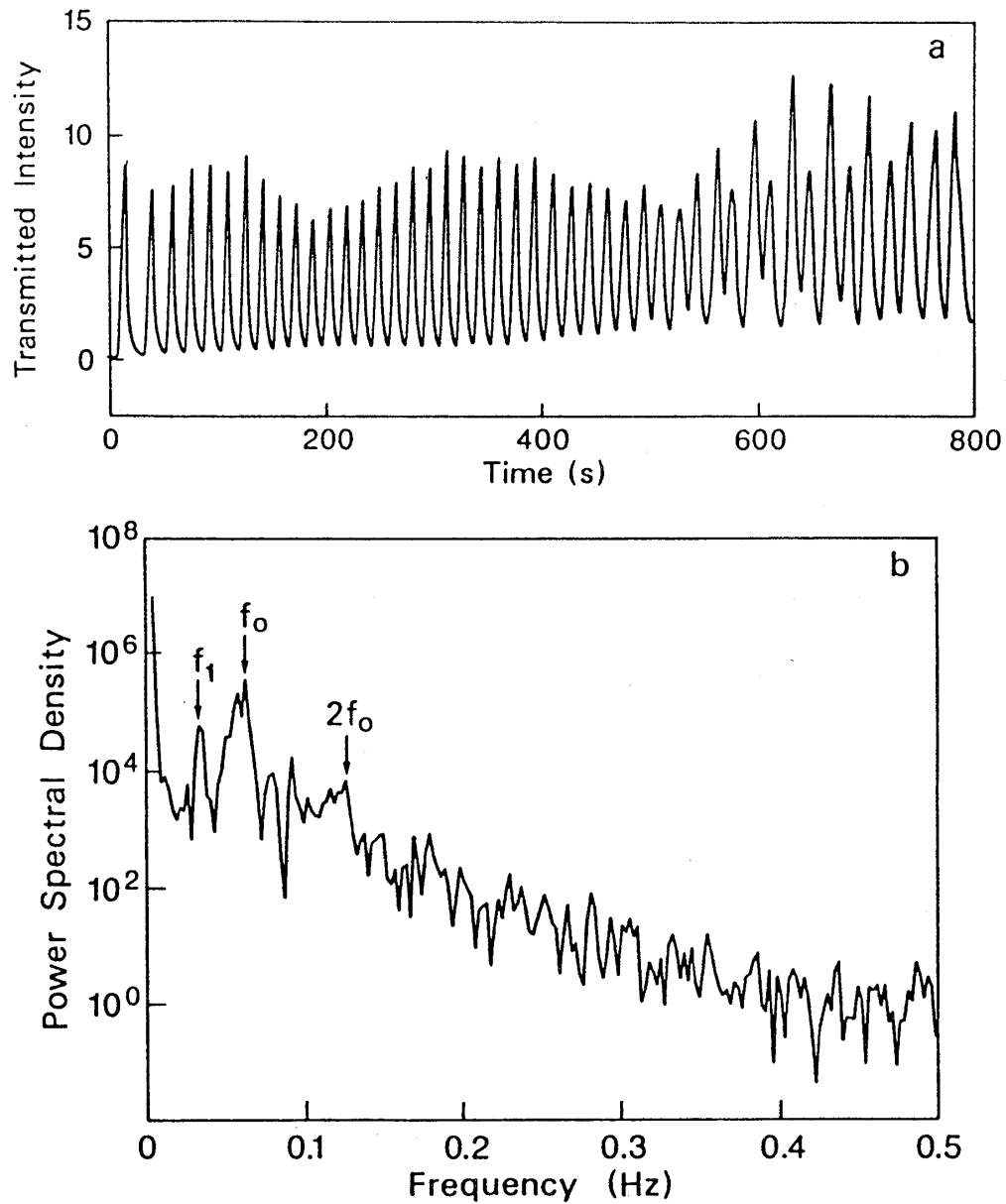


Fig.9 Time dependence of local transmitted light intensity (a), and its power spectrum (b) in spiral waves with an open liquid/air interface (depth, 0.94 mm).

動へと変化していくパターンの動的振舞は、系の発展がカオス的プロセスに従うことを示唆しているとも考えられる。

ここで以上の実験で得られた主な知見を列挙しておく。

- 1) Spiral Waveにより連続的に励起された反応波の連続的な通過により、反応セルにカバーをした状態でも波の伝播と反対方向の緩やかな流れが発生する。
- 2) 反応セルのカバーを除いた状態でSpiral Waveを励起すると、約10分後から溶液表面に周期的な振動流が発生する。
- 3) 周期的振動流に起因すると思われる、伝播するChemical Waveの波面形状の周期的変形が観測される。
- 4) 振動的表面流が異常に発達した場合、その流速はChemical Waveの伝播速度を遙かに超え反応波の波面の崩壊が観測される。
- 5) 化学反応波の波面形状の周期的な変形に伴って、ある局所領域で観測した透過光強度 (Fe^{3+} イオン濃度を示す) の変動に周期倍化現象が観測される。

4. 議論

反応セルにカバーをした状態でSpiral Waveを励起した時に観測される流体现象は小さいものであるが、カバーがあるため反応溶液の蒸発冷却にともない発生する対流によるものとは考えにくく、周期的なChemical Waveの通過が流れの発生を励起する可能性を前の章で指摘した(3.1)。また最近の実験で、十分還元が進んだ状態で一つの波 (Circular Wave) を励起した場合、その波の伝播とともに伝播していく対流状の流れが存在することを示した²¹⁾。すなわち、ある固定点で観測した時、一つの波が近づくに連れて波に向かう方向の流れが発生し、波の通過後波を追いかけていく方向へと流れが変化することを確認している。このことは一つのChemical Waveの通過が振動的な流れを励起する能力があることを示している。もちろんSpiral Waveでは次々に(約16-20秒の周期)波が伝播し、一つの波の通過後十分還元状態にならない内に次の波が伝播してくるため一個の波の通過だけではCircular Waveの場合のような大きな流体现象は発生しない。一つ一つの効果は小さいが、たくさんの波の通過による一種の化学的なEntrainmentにより流れが励起されたと考えることができよう。

一方、カバーの無い系では非常に顕著な流体现象とパターン・ダイナミクスが観測された。従来、こうした系で観測されていたChemical Waveの波面の幾何学的歪や不

規則なパターンへの崩壊は、反応溶液内に発生する対流によるものとして理解されていた^{2, 12)}。しかし、この研究で明らかになったように、反応溶液中に発生する主な流れは周期的に振動する表面近くでの流れであり対流ではない。振動的表面流により Chemical Waveの波面が周期的に変形するという新しい事実が確認されると共に、この振動流が異常に発達した時に波面の不規則な崩壊が生じることが明かとなった。問題はこうした振動的表面流の発生するメカニズムである。カバーのある系での流体现象のメカニズムとして提案した化学的なEntrainmentの効果は、カバーのない場合にも流体力学的不安定性を引き起こす一つのメカニズムと考えて良い。ただカバーの無い系で観測される顕著な流体现象とパターン・ダイナミクスの説明には、このメカニズムを増幅する別のメカニズムが必要であろう。

ここでCircular Waveを用いた実験より得られた新しい知見を紹介する必要がある。反応セルの両端で励起された二つのCircular Waveが、セル中央部で衝突すると大きな曲率を持つカスプ状の波となって非常に高速で伝播していく（それまでの伝播方向に垂直な方向へ）。これはKuramoto²³⁾あるいはKeener&Tyson²⁴⁾により示されているように、大きな負の曲率を持つ波の伝播速度が平面波より大きくなるためである。すなわち、曲率 K をもつChemical Waveの伝播速度 N は、

$$N = \mu - DK \quad (1)$$

で与えられる。ここに μ は曲率がゼロの時のすなわち平面波の伝播速度であり、 D は拡散定数を表わす。通常、こうした曲率の違いによる波の伝播速度の違いは、波面にひずみが生じた時これを歪の無い状態に復帰させようとする働きを持つ。ところで、二つの波の衝突により生じたカスプ波の高速な伝播に伴って、反応溶液表面近くに大きな流体力学的流れ(最大約 $150 \mu\text{m/s}$)が発生することを最近確認した²¹⁾。このとき反応セルはカバーがしてあり対流の効果は考えにくく、流れの方向はカスプ波の伝播方向と一致している。すなわちこの流体现象は大きな曲率を持つChemical Waveに流れを引き起こす能力があると考えないと説明できない。

以上の知見よりSpeculationの要素は多いが、Spiral Wave中に観測された振動的表面流の発生を説明する一つの可能なメカニズムとして図10に示すようなモデルが考えられる。すなわち、

- 1) たくさんのChemical Waveの通過によるEntrainmentの効果で、流体力学的流れが発生する、
- 2) 発生した流れは伝播する波の波面の幾何学的形状に歪を与える、
- 3) 波面の歪はこれが十分大きくなった時に、その曲率の効果でその歪を生じる原因と

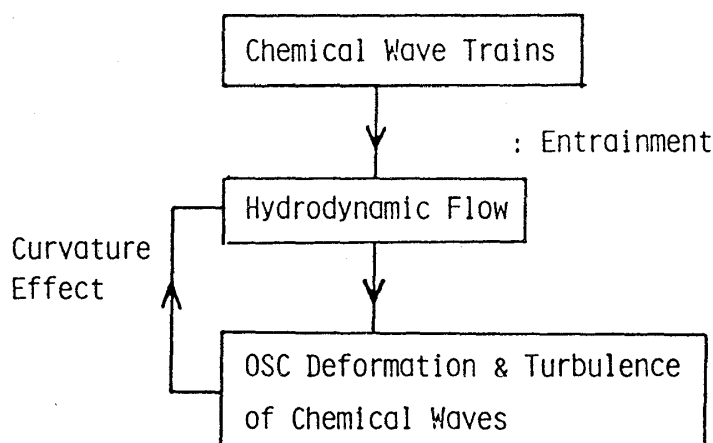


Fig.10 Model for oscillatory deformation and turbulent behavior of chemical waves. Chemical entrainment and curvature effect on waves may bring the hydrodynamic instability in BZ-reaction.

なった流れと反対方向の流れを発生する、
のように流体现象とパターン・ダイナミクスが結合するフィード・バックのループを
考えることができる。

5. おわりに

Spiral Waveを励起した系に観測された振動的表面流とこれに起因するパターンの
動的振舞を説明するメカニズムを議論してきた。しかし実際の系では、1)セルのカバ
ーが無い場合対流の発生が考えられること、2)バッチ・リアクターであることにより
系は定常な状態ではなくたえず変化していること、等を考慮する必要がある。実際に、
Chemical Waveの崩壊が起こる時にはパターンの広い領域を観測した時、対流に起因
すると思われる”Mosaic”状のラインが伝播する波のパターンに重畳する形で観測され
ている²⁰⁾し、深いセル（液層1mm以上）を用いた場合にはパターンの崩壊が容易に観
測される。また、振動的表面流やパターン・ダイナミクスが観測されるのはいつも一
定時間（約10分）経過後で、この時間は温度が高いほど早くなる傾向にある。反応溶
液中の化学成分（イオン濃度等）にある一定の臨界値が有り、その値を超えた時振動

的流れが励起される可能性もある。以上のように実際の現象は複雑であるが、いずれにしても定量的な実験を積み重ねつつ、現象の本質を的確に捉えたモデルを組み立てていく必要がある。

謝辞：研究に際し有益な議論を頂いたTh.Plessner博士、Zs.Nagy-Ungvarai博士及び辻欣子博士に、また実験上の技術的な援助を頂いたU.Heidecke, K.Dreher, E.Schlüter, G.Schlute 及び B.Plettenberg の各氏に深謝する。またこの研究の一部はフォルクス・ワーゲン財団 (Hannover) の援助の下で行なわれた。

参考文献

- 1) R.J. Field and M. Burger, eds., Oscillations and travelling waves in chemical system (John Wiley, New York, 1985).
- 2) C. Vidal and P. Hanusse, Intern. Rev. Phys. Chem., 5(1986)1.
- 3) A.M. Zhabotinsky and A.N. Zaikin, J. Theor. Biol., 40(1973)45.
- 4) M. Orban, J. Am. Chem. Soc., 102(1980)4311.
- 5) K.I. Agladze, V.I. Krinski and A.M. Petsov, Nature, 308(1984)834.
- 6) P.M. Wood and J. Ross, J. Chem. Phys., 82(1985)1924.
- 7) S.C. Müller, Th. Plessner and B. Hess, Ber Bunsenges. Phys. Chem., 89(1985)654.
- 8) M. Markus, S.C. Müller and B. Hess, Biol. Cybern., 57(1987)187.
- 9) C. Normand, Y. Pomeau and M.G. Velarde, Rev. Mod. Phys., 49(1977)581.
- 10) H. Linde, in: Convective transport and instability phenomena, eds. J. Zierep and H. Oertel jr., (Karlsruhe, Braun, 1982) p.265.
- 11) S. Chandrasekhar, Hydrodynamic and hydromagnetic stability, (Clarendon, Oxford, 1961).
- 12) P. Borckmans and G. Dewel, in: Chemical to biological organization, eds. M. Markus, S.C. Müller and G. Nicolis, (Springer Series of Synergetics, 1988) to be published.

- 13) S.C.Müller, T.Plesser and B.Hess, *Anal.Biochem.*, 146(1985)125.
- 14) S.C.Müller, T.Plesser and B.Hess, *Physica*, 24D(1987)71.
- 15) H.Miike, Y.Kurihara, H.Hashimoto and K.Koga, *Trans. IEEE*, E69(1986)877.
- 16) 古賀和利、三池秀敏、電子情報通信学会論文誌, J70-D(1987)1508.
- 17) H.Miike, K.Koga, M.Momota and H.Hashimoto, *Jpn.J.Appl.Phys.*, 26(1987)L1431.
- 18) H.Miike, S.C.Müller and B.Hess, *Chem.Phys.Lett.*, 144(1988)515.
- 19) H.Miike, S.C.Müller and B.Hess, "Oscillatory deformation of chemical waves induced by surface flow", submitted.
- 20) H.Miike, S.C.Müller and B.Hess, "Coherent dynamic structures and turbulence in chemical waves induced by oscillatory surface flow", in preparation.
- 21) H.Miike, S.C.Müller and B.Hess, "Travelling hydrodynamic flow with circular wave propagation", submitted.
- 22) S.C.Müller, Th.Plesser and B.Hess, in: *Physicochemical hydrodynamics: interfacial phenomena*, eds., M.G.Velarde and B.Nichols, NATO ASI Series(1987), to be published.
- 23) Y.Kuramoto, *Prog.Theor.Phys.*, 63(1980)1885.
- 24) J.P.Keener and J.J.Tyson, *Physica* 21D(1986)307.