

4.2 小グループ「非平衡下における自己発展現象の科学」

森義仁	ymori@cc.ocha.ac.jp	お茶の水女子大学理学部化学科
雨宮隆	amemiya@nimc.go.jp	物質工学工業技術研究所・化学システム部
中田聡	nakatas@nara-edu.ac.jp	奈良教育大学教育学部

4.2.1 はじめに

本研究小グループでは、「時空間発展する現象」についてモデル実験系の設計しつつ、普遍的な理論構築を行うことを目的とした。（主に化学）実験系の多くが、平衡系の反応を中心に行われてきたが、「理論的考察をフィードバックしながら、時空間発展する現象の普遍的なモデル実験系を設計する」ところに、「新分野の開拓」の研究理念に沿っていると考え、研究を進めてきた。具体的には、次の項目について議論を進めてきた。

- 生命体が持つ機能（環境適合性、自己修復、感覚、エネルギー変換）を、擬似的（人工的）に発現させ、そのメカニズムを普遍的なモデル実験系から解明する。
- 基礎研究として、「時間発展する現象」を、「材料の機能性の増幅」や反応の制御」に活用する。
- 科学教育への環流を行う。

4.2.2 モデル実験の設計：モードセレクトとモードスイッチング

様々なモデル実験系が作成されると予想されるが、その1例として、モードセレクトとモードスイッチングについて説明する。

「樟脳船」は、樟脳粒をつけたプラスチック船を水面に浮かべた系であり、自発的に動き出す現象を示す。ここで、樟脳粒が気水界面に薄膜を形成することによって生じる気水界面の界面張力が低下する。つまり、界面活性物質（樟脳膜）の濃度勾配を駆動力としている。樟脳粒だけを気水界面に浮かべても、自発的運動は観測され、運動ベクトルは樟脳粒の形状に依存することは報告されている。

一方、化学反応を起こすためには、反応相が必要であり、「ピーカー」が思い浮かぶであろう。化学反応を一樣に進行させるには、ピーカー中で攪拌するのが化学実験の常識ともなっている。つまり、一樣な反応を起こすには、反応相はできる限り等方的かつ滑らかな形状である必要がある。そこで、反応相（或いは反応場）に異方性を導入することで、化学反応にベクトル、モードセレクト、モードスイッチングする実験系を設計した。例えば、円筒型セルを2つ組み合わせた、8の字セルを作成し、樟脳船を浮かべる。すると、樟脳粒の付着場所とプラスチック船の形状に依存して、図1のようなモードセレクトを行うことが可能になる。また、樟脳船が反応場全体を感じるにより、モードスイッチングを起こす現象も再現することができた。この系を利用して、反応相の場を感じながら、多様な運動モードを発現させる新しい化学実験系を設計できると考えている。

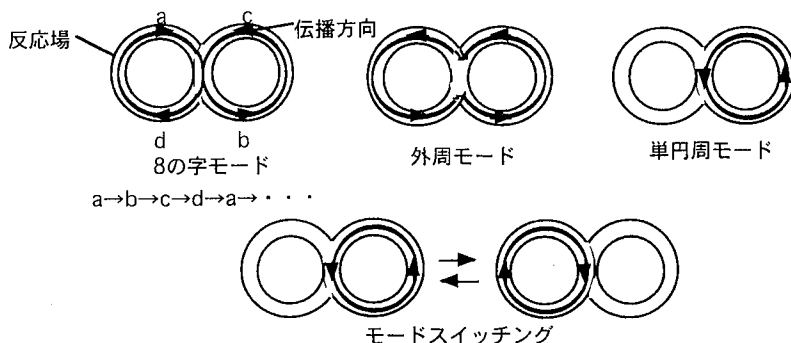


図 1: 時間発展現象のモードセレクトとモードスイッチング

4.2.3 正と負のフィードバックの組合せによるリズム反応系の構築

第1章「はじめに」において、本研究小グループが議論の対象として3つの事柄を挙げた。(a)生体機能疑似表現、(b)工学的発展性、(c)科学教育である。本研究において、研究目標をモデル実験系の探索と捉え、何か一つの共通性の下に研究を進めることを模索してきた。そしてその一つとして分岐現象を候補として考えている。第2章での樟脳船のモードセレクトやモードスイッチングはそのよい例である。分岐現象が起こる系は、単一のプロセスではなく、複数のプロセスが絡み合ってネットワークを形成しており、そこでは相反するプロセスの競争が分岐現象の原因と考えられる。競争が起こるのであるからもちろん系は非平衡条件下にあることは必須である。分岐現象のような劇的な変化はめりはりのある変化として捉えることができ、生体系はまさにこの劇的な変化を実現し、工学的発展におけるその利用というは未だ十分には開拓されていない領域でありさらに、科学教育においてはめりはりのある現象は第一に好奇心に原因とあるであろう。これが巨視的現象となればなおさらである。

4.2.3.1 実験系の整理・分類

では一体どのような相反するプロセスの競争が起これば都合がよいのであろうか。今世紀後半になり分岐現象の実験例として見出されてきたリズム化学反応について考察してみる。リズム化学反応は系を平衡から遠く離すことにより分岐を経由して、はじめて非平衡定常状態からリズム状態となる。その実験系の発見の数はここ数十年間で急速的に増大してきた。それぞれの実験例のうちで先導的であるものはだいたいにおいて偶然の産物であると判断される。実験例の数が増えていくに際し、これまでのそれらの実験系を解析することにより、新しい実験系を生み出すための指針を探すことができなかつたという試みが2つなされている。その一つは、リズムを生み出す実験系の特徴を正のフィードバック過程(PF)と負のフィードバック過程(NF)の競争であると捉えるたのである。多くの実験系の場合にはPFは自己触媒応過程であるの対し、NFは各実験系について種々の事情があることが見て取れるのである。そこでNFを分類することによりこれまで見出された実験例を体系化しようという試みである。これによりPFとNFの組合せによるリズム反応系の

構築が行われるようになった。

一方、もう一つは、化学反応ネットワークを構成する要素つまり物質に着目することにより、反応ネットワークを構成する物質の役割という視点から構成物質を2つに分けるというものである。一つは essential species(ES)と non-essential species(NS)というものに分けるのである。反

応系が振動状態にあるとき、すべての濃度は一定となることはなく振動に応じた変動を示すことになる。これに関してESとNSは次のように定義される。外部から供給または外部への排除を行うことによりESの濃度を一定に調節すると振動は停止してしまうものであり、一方、NSの濃度を一定にしても振動は停止しないというものである。これはリズム反応における構成物質の役割というものを考え、リズム発現に最低必要の構成を明確にすることができるのである。

4.2.3.2 探索指針

分岐を生じる化学反応ネットワークをフィードバック過程(PF・NF)とネットワークの構成物質の役割という視点からの解析法は直ちに先導的な化学反応ネットワークの構築に結び付くことは困難であるが、一つの探索の指針としてPFを見つけ出すということが考えられよう。ネットワーク解析は特に工学の制御系においては欠かせないものであるが、そこではPFよりはNFのほうが、安定な制御という観点からは重要視されている。一方、本研究グループの求めるモデル実験系設計に関しては、逆にPFによる不安定性発現が、時間発展という観点からは望まれることである。化学反応におけるPF、つまり自己触媒過程はNFに比較して、多分に偶然的発見の産物であるので、いくぶん網羅的とはなるが探索が必要である。その場合には界面等の均一場におけるPFだけではなく不均一系におけるPFをも探索範囲とすることは効果的である。

以上のような探索において、先の2つの解析法に加えてシステムダイナミクス解析法と呼ばれる方法も適応できる可能性が考えられる。システムダイナミクス解析法は1950年代後半に生まれたものであり、線形モデルは捉えきれない環境問題等の社会システム問題をいかに取り扱うかということに対して提案された集団のダイナミクスの解析法である。集団というものを反応ネットワークと捉え、構成要素間の関係における因果ループを、その

基本単位とするものである。これは先に述べたPF・NFに関連するが、より大規模なネットワークに適用できるものである。そして、ネットワーク全体に対する寄与の大きさを

それぞれのループに見出そうというものであり、新しい先導的なリズム反応系の探索には有用であろうと判断される。

4.2.4 モデル実験系の設計2

非平衡下にある非線形現象は、電子回路やレーザーなどの物理系、分子の衝突が関与する化学反応系、生物の神経伝達系など科学の広い領域で見られる。それぞれの分野で技術的な応用が進められ、非平衡下、時間発展する現象の有用性が認識され始めている。非平衡下にある非線形系の特徴の一つとして、外部環境の影響を強く受けることが知られている。化学反応を例にとると、外部のゆらぎによって、非平衡状態の系は幾つかの安定状態間を遷移したり、あるいは偶然にある一つの安定状態を選択して平衡状態へ向かうことがある。その結果、反応終了後の生成物の収率がゆらいだり、時として特異的な値をとることもある。従って、反応終了後に定常的な収率を得るためには外部環境のゆらぎの制御が重要な課題となってくる。あるいは、ゆらぎを積極的に利用することで、反応の制御を行ったり、ゆらぎ自体を増幅することも可能となる。さらに、ゆらぎは、非平衡状態の選択に関与するだけでなく、もっと劇的な変化、すなわち化学反応の現象論からは予測されない新しい非平衡転移を引き起こすことも知られている。このことは、ゆらぎによる新物質、新材料合成の可能性を示唆している。

このように、非平衡、非線形性、ゆらぎは密接に関連している。ゆらぎの効果として最近注目されている現象に確率共鳴がある。これは、非線形系に加えられた微弱で周期的な摂動が、最適なノイズを加えることによって、系の同期現象として顕在化されるものである。ここではモデル実

験系として、非平衡下で進行する非線形化学反応（ペロソフ・ジャボチンスキー、BZ反応）を取りあげ、より一般的な条件下において確率共鳴が起こることを示す。今までに行われてきた確率共鳴に関する研究では、微弱な周期摂動とノイズの物理的な起源が同一である系（単一パラメータ系）のみが取りあげられてきた。しかし、様々なゆらぎが存在する自然環境下では、微弱な摂動とノイズの起源が必ずしも同じであるとは限らない。そこで、微弱摂動とノイズの起源が異なる2パラメータ系について検討した。これは、例えば、自然環境下に生息する生物がある感覚器官に入ってきた情報（ゆらぎ）を別の感覚器官に入ってきたノイズを用いて検出・増幅する機能の可能性を想定している。

光によって反応制御が可能な送液系でのBZ反応の数値モデルを実験に基づいて作成した。この系では、反応物の送液速度と光強度が独立な制御パラメータになっている。はじめに、送液速度に定常値に対して数を加えると、最適の光ノイズ強度によって送液速度のゆらぎが感度良く検出されることが示された。これとは、逆に光に微弱なゆらぎ、送液速度にノイズを加えた場合にも、最適ノイズ強度は異なるものの同様な確率共鳴現象が見られた。このように、通常では検出されない微弱なゆらぎがそれとは無関係なノイズを加えることによって、系の同期性を通して顕在化されることが示された。この研究で得られた知見は、ノイズと非平衡下にある非線形系を利用した新しいセンシング手法への応用につながると考えている。