

## 結合化学振動子系における周期的光刺激に対する同期現象 Synchronization Phenomena in Coupled Chemical Oscillator Systems in Response to Periodic Optical Stimuli

坂東 紗希<sup>†</sup>, 田中 吉太郎<sup>†</sup>, 高木 清二<sup>†</sup>, 櫻沢 繁<sup>†</sup>  
Saki Bando, Yoshitaro Tanaka, Seiji Takagi, Shigeru Sakurazawa

### 1. はじめに

非線形化学振動子は、自然界や生理現象に類似したパターン形成を示すことから広く研究されている。例えば、真性粘菌であるモジホコリカビは周期的な乾燥刺激に対する記憶現象を示すことが報告されており、その原因として細胞内部の化学振動子同士の同期が示唆されている[1]。また、同じ非線形化学振動子の一種である BZ 反応は、その周期的酸化還元反応を視覚的に確認できるため、化学振動子系のモデル実験として注目されている[2]。加えて自然界では、振動数や結合状態が同期現象に大きな影響を与えることが分かっており、特に、BZ 反応では、陽イオン交換樹脂に金属触媒を吸着させたもの(BZ ビーズ)同士を反応溶液内で近づけると、同期現象が起こることが明らかとなっている[3,4]。

これらを踏まえて、本研究の目的は、BZ ビーズを用いて結合化学振動子系を構築し、光刺激の周期によって振動子群間の同期現象にどのような影響が現れるかを実験的に検証することである。これにより、粘菌での予測反応に類似した現象の再現と、そのメカニズムの解明を目指す。

### 2. 方法

#### 2.1 BZ ビーズの調整と組成

##### 2.1.1 試薬組成

実験に用いた試薬の組成を Table. 1 に示す。硫酸( $\text{H}_2\text{SO}_4$ )は、関東化学社製の特級、臭素酸ナトリウム( $\text{NaBrO}_3$ )は、関東化学社製の鹿特級、マロン酸( $\text{C}_3\text{H}_4\text{O}_4$ )は、関東化学社製の鹿 1 級を用いた。臭化ナトリウム( $\text{NaBr}$ )は和光純薬工業社製の特級のものを用いた。ルテニウムビピリジル錯体( $\text{Ru}(\text{bpy})_3\text{Cl}_2$ )は、Alfa Aesar 社製を用いた。陽イオン交換樹脂は、デュポン社の強酸性陽イオン交換樹脂 No. 3(架橋度 4%, 100-200 メッシュ, H 形)を用いた。

Table. 1 The concentration of BZ reaction

Reagent	Concentration[M]
$\text{CH}_2(\text{COOH})_2$	0.1
$\text{H}_2\text{SO}_4$	0.83
$\text{NaBrO}_3$	0.28
$\text{NaBr}$	0.08
$\text{Ru}(\text{bpy})_3\text{Cl}_2$ (Adsorption to beads)	$1.4 \times 10^{-4}$

##### 2.1.2 BZ ビーズ調整方法

BZ ビーズは、ルテニウムビピリジル錯体溶液に陽イオン交換樹脂を浸漬しつつ、常温で 24 時間攪拌したものをを用いた。

### 2.2 光刺激装置および撮影システム

本研究で用いた実験装置の全体像を Fig. 1 に示す。

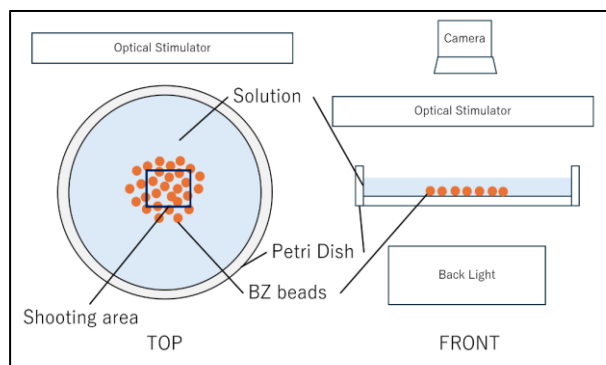


Fig. 1 Experimental set up

作製した BZ ビーズを、金属触媒以外を混合した反応溶液に浸漬させ、物質拡散で結合させた。

反応の様子を撮影するため、顕微鏡にホーザン社製の CMOS カメラを装着して実験を行った。

光刺激装置には、白色 LED を用いた。光を与える時間間隔を制御するために、Arduino を用いて駆動した。

### 2.3 実験方法

室温環境下のピーカーで、Table. 1 に示した組成のビーズ以外の BZ 反応溶液 10mL を混合した。その後 BZ 溶液を、ビーズを並べたシャーレ上へ投入した。顕微鏡に取り付けられた CMOS カメラで BZ ビーズの様子を撮影した。撮影開始後、一定時間後に周期的な光照射を行った。光照射開始時刻と光刺激の周期、振動子の個数を Table. 2 に示す。なお、光刺激は各実験で 6 回ずつ照射した。

Table. 2 Light Stimulus conditions for each experiment

Experimental number	Beginning of light stimulation[min]	Light stimulation cycle[s]	Number of oscillators
1	130	75	13
2	130	100	13
3	125	150	17

### 2.4 データ解析

取得した輝度値時系列データからスパイク検出を行い、各ビーズの振動周期を算出した。さらに、各振動子の位相データを単位ベクトルにより統計処理し、極座標プロットや平均位相、位相分散(平均ベクトルの長さ  $R$ )を求めることで、ストロボスコープ技法を用いて同期状態を評価した。

<sup>†</sup> 公立はこだて未来大学 Future University Hakodate

### 3. 結果

結合した BZ ビーズに周期的な光刺激を与えた際の、ストロボスコープ技法により得られた各振動子同士の位相差の時系列を Fig. 2~4 に示す。

なお、光刺激を与えない場合の BZ ビーズの周期は、約 100 秒であった。

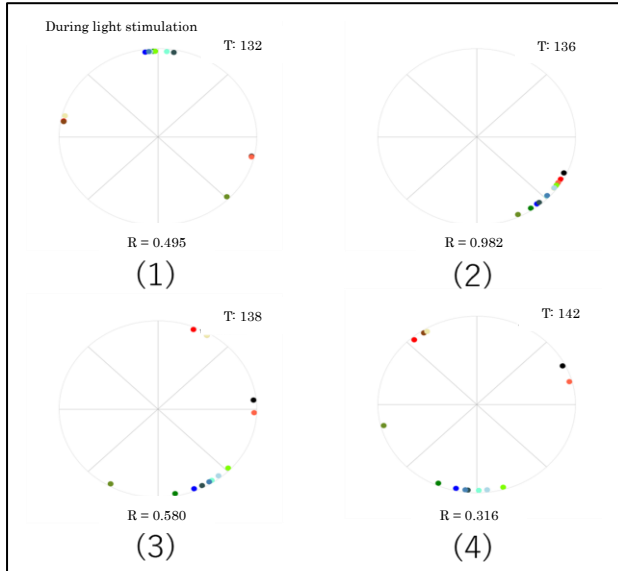


Fig. 2 Phase difference change, (Light stimulation cycles:75s)

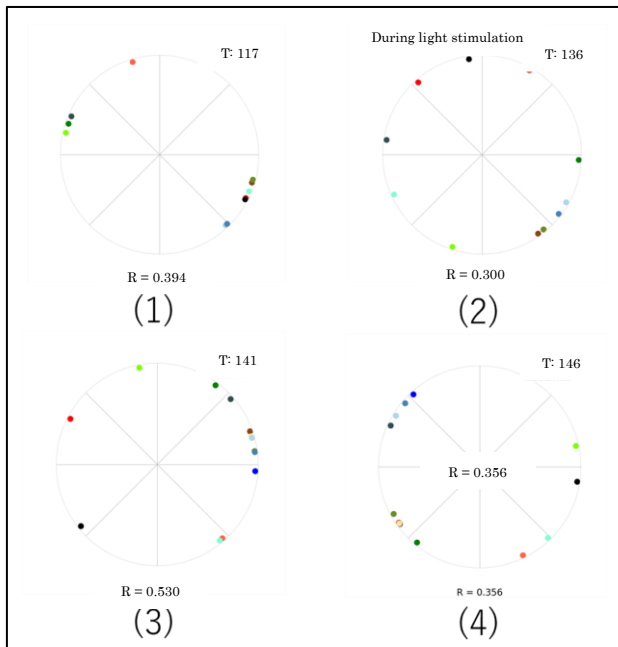


Fig. 3 Phase difference change, (Light stimulation cycles:100s)

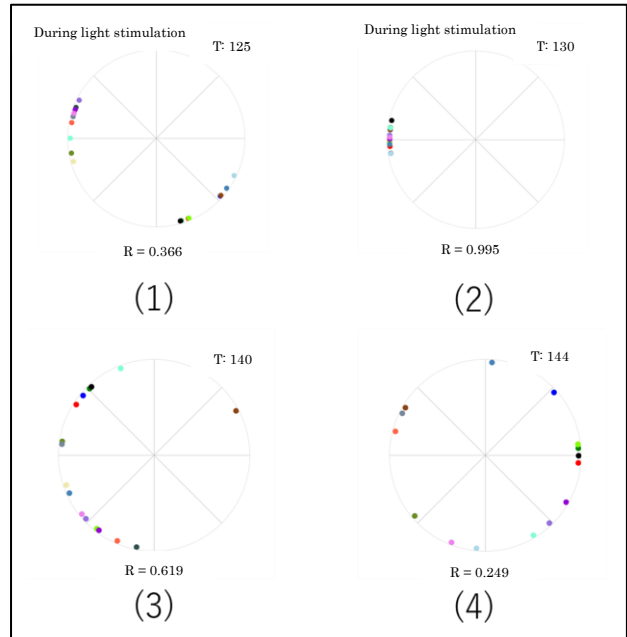


Fig. 4 Phase difference change, (Light stimulation cycles:150s)

光刺激の周期が、75 秒、100 秒の場合、光刺激後の平均ベクトル  $R$  の値が、光刺激照射中の値に比べ増加していることから、各振動子の位相が重なり、同期現象が起こることがわかった。しかし、照射直後から 3 分程度と、かなり短い時間しか同期現象を維持できていなかった。一方、光刺激の周期が 150 秒の場合、光刺激照射中のみ  $R$  の値が増加し同期現象が発生したが、照射後に影響が残らないことが分かった。

### 4. 結論

本研究では、BZ 反応ビーズを用いた結合化学振動子に対し、周期的光刺激を与えることで、振動周期や位相同期に与える影響を実験的に検証した。その結果、光刺激周期が BZ ビーズの固有周期と関係しており、固有周期前後を境に同期状態の持続性が変化することが示唆された。今後は、実験結果に基づいた数理シミュレーションおよび、さらなるパラメータ探索を通じて、反応機構の詳細説明および応用可能な化学システムの構築を目指す。

#### 参考文献

- [1] 三枝 徹, et al. “Amoebae Anticipate Periodic Events”, PRL, 100, 018101 (2008)
- [2] 三池 秀敏, et al. 非平衡系の化学III, 講談社, (1997)
- [3] 佐藤 勇一, et al. “振動子系の同期現象(2 台のメトロノームを対象とした実験と解析)”, 日本機械学会論文集 C 編, 66, 642: 363-369. (2000)
- [4] 長野 陽, “ペロゾフ・ジャポチンスキー振動子系における確率同期現象(複雑流体の数理 III)”, 数理解析研究所講究録, 1305: 149-156, (2003)