

解説



2. 諸科学に見られる不動点論の散策

2.3 化学モデルと不動点

—化学反応によるリズムとパターン†—

吉川 研一†† 川上 博†††

1. 化学反応のダイナミクス^{1),2)}

化合物 A と B から C ができる反応を考えてみよう。たとえば A を Na^+ (ナトリウムイオン), B を Cl^- (塩素イオン) とすれば, C は NaCl (塩化ナトリウム) である。あるいは, A を H_2 (水素分子), B を O (酸素原子) とした場合, C は H_2O (水分子) となる。

このとき, 化学反応は次のようになる。



各反応物 A, B, C の時刻 $t=0$ での濃度を, それぞれ $a, b, 0$ とする。時刻 t での A の濃度を x で表す。すると, 時刻 t での C の濃度は $(a-x)$ となる。 B については $(b-a+x)$ となるので, 反応速度式は(2)式ようになる。

$$\begin{aligned} dx/dt &= -k_1x(b-a+x) + k_{-1}(a-x) \\ &= -k_1x^2 - \{k_1(b-a) + k_{-1}\}x + k_{-1}a \end{aligned} \quad (2)$$

この微分方程式は, x^2 の項があるので, 非線形であることが分かる。

(1)式のような, 非常にありふれた化学反応の速度式が, 非線形であること(この場合には二次式)に注意したい。これ以外にも, 触媒反応・酵素反応や電気化学反応など, どのような反応系をとってみても, 反応速度の方程式が線形になるほうがむしろまれである。従来化学者向けの反応速度論の教科書に, このような重大なことに關する説明が欠けていたのは, 非線形の現象でも, 線形で近似して考えることが一般的であったためである。

化学反応の最も一般的なタイプは, 分子同士の

衝突によるものである。このため, 二次反応速度式が, 反応速度式の基本的なタイプとなっている。一方, 一次反応の反応のネットワークは, 線形の連立微分方程式で書き表すことができる。すなわち, この場合は, “解の重ね合せ”の原理が成り立つ。しかし, 反応のネットワークの中で, 一カ所でも二次反応が存在すると, 速度式は, 非線形となり, もはや, “解の重ね合せ”は成り立たない。不均一触媒(固相触媒など)での界面への吸着や, 酵素が關する反応の場合は, 単純な一次や二次反応では表せない。すなわち, 非線形性の強い速度方程式となる。

反応の方程式が非線形である場合には, 線形の方程式では, まったく予想のできないことが現れる。

(1) 反応に閾値がある。初期濃度に依存して, 反応の進行の仕方が異なる。また, ある誘導期間が存在して, その後急に反応が進行し始めるような場合も, このカテゴリに含まれる。

(2) 反応に過去の履歴が關する。反応物を入れる順番を入れ換えると, 生成物が異なる。過飽和溶液を作る場合も, これに当てはまる。温度を下げる操作によって, 過飽和状態を作ることができるが, 温度をあげることは, 作れない。

(3) 多重安定状態が現れる。これと, 履歴現象は, 密接に關係している。温度・圧力・濃度などを, 一定にしても, 異なる状態が現れる場合, これを多重安定状態と呼ぶ。

(4) 興奮現象が現れる。ある閾値以上の刺激が与えられると, 系が大きく変化するような現象。神経では, 外部からの刺激により, 興奮が生じるが, 化学反応でも類似の現象がみられる。

(5) リズムや, 空間の動的パターンが自発的に生じる。このうち, 典型的な実験系が, 後述するペロソフ・ジャボチンスキ反応(BZ)反応である。

† Fixed Point in Chemical Dynamics-Rhythms and Pattern Induced by Chemical Reaction by Kenichi YOSHIKAWA (Nagoya University, Graduate School of Human Informatics) and Hiroshi KAWAKAMI (Tokushima University, Faculty of Engineering).

†† 名古屋大学人間情報学研究所

††† 徳島大学工学部電子工学科

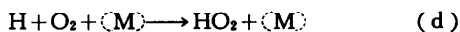
	実験系	時間的リズム	空間パターン	関連したシステム
BZ 反応				H ₂ O ₂ -KIO ₃ -H ₂ SO ₄
酵素反応				Oscillation in Glycolysis
蛍光				Pulsation in Laser
固体触媒反応				Oxidation of H ₂ by Pt or Ni
電気化学反応				Au/4N HCl Zn/4N NaOH
リーゼガング現象				Pb ²⁺ -I ⁻ in a Gel etc.

図-1 化学的リズム現象

2. 化学における非線形発振現象³⁾

図-1 に、化学領域でのリズム現象や、パターンの成長現象を示した。このうち、BZ 反応、酵素反応、固体触媒上の気体反応、電極反応は、いずれも酸化還元がリズムを示したり、パターンを形成する実験系である。家庭の台所でガスが燃焼するときの、“ガー”とか“ゴー”といった音も、反応-拡散-対流系でのリズム現象であるとみなせる。蛍光のリズムも、光反応のからだ、反応-拡散-対流系での自発的な振動である。リーゼガングは、沈澱が生じるときの反応-拡散系として、解釈されてきている。以下、これらの現象のうち燃焼反応をとりあげ、そのメカニズムを考えてみよう。

燃焼反応の中でも簡単な H₂ と O₂ の混合気体の反応をとりあげよう。このとき素反応は次のように考えられている。(Hinshelwood の機構)。



H, O は、おのおの水素原子、酸素原子を表している。(a) が開始反応、(b, c, d, f, g) は連鎖反応、(e, h, i) が停止反応になっている。ここで特に、(b, c) の反応が、自己触媒的になっていることに注意しておこう。すなわち、一回の反応で、ラジカル(反応の活性中間体、ここでは、O, H, OH を指す)が倍増することになる。なお、反応(d)で M は衝突に関与するが、それ自身は変化しない分子を考えている。H₂, O₂ 以外の混入した気体分子とみなしてもよいし、三体衝突で反応しない H₂ や O₂ と考えてもよい。

実際の、H₂ と O₂ の反応では、図-2 のように爆発反応と、定常的な燃焼との間に、第一～第三

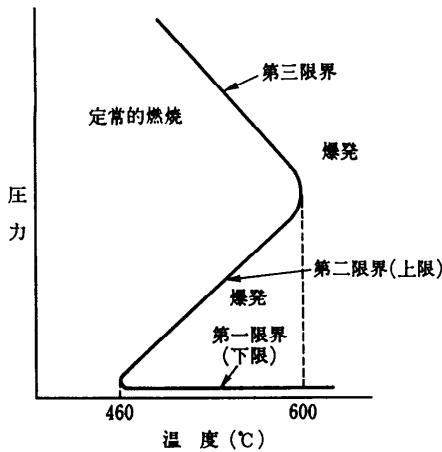


図2 H₂ と O₂ の燃焼反応の分岐図
実線が、定常的燃焼と爆発との分岐を示している。

の3種類の「爆発限界」がある。このような挙動は、上記の(a)~(i)の素反応を考えると説明することができる。

まず、第一限界付近の低圧部を考える。このとき、(d, e, f) はあまり重要ではなくなる。そこで、このときの水素原子(H)、酸素原子(O)、水酸基(OH)の反応速度は、(3)~(5)式ようになる。

$$\frac{d[H]}{dt} = v_a - k_b[H][O_2] + k_c[O][H_2] + k_o[OH][H_2] - k_n[H] \quad (3)$$

$$\frac{d[O]}{dt} = k_b[H][O_2] - k_c[O][H_2] \quad (4)$$

$$\frac{d[OH]}{dt} = k_o[H][O_2] + k_c[O][H_2] - k_o[OH][H_2] - k_i[OH] \quad (5)$$

k は反応速度定数、 $[]$ は、各化学種の濃度を意味する。なお、(a)の開始反応では v_a の一定速度で進行すると仮定している。

定常状態(不動点)を調べてみよう。

$$d[H]/dt = d[O]/dt = d[OH]/dt = 0 \text{ より}$$

$$[OH] = \frac{2v_a k_o [O_2]}{k_o k_n [H_2] + k_n k_i - 2k_o k_o [H_2][O_2]} \quad (6)$$

したがって、反応の最終生成物である H₂O が生成する速度は(7)式のように由る。

$$\begin{aligned} \frac{d[H_2O]}{dt} &= k_o[OH][H_2] \\ &= \frac{2v_a k_o k_o [H_2][O_2]}{k_o k_n [H_2] + k_n k_i - 2k_o k_o [H_2][O_2]} \quad (7) \end{aligned}$$

反応中間体の H, O, OH の濃度が一定(定常濃度)であるときの、反応全体の進行速度が、反応物 H₂, O₂ の濃度で表されたことになる。 k_n や k_i は、ラジカルが器壁に衝突して消失する速度の速度定数であった。低圧では、 $[H_2]$ や $[O_2]$ は小さいので、(7)式の右辺はある定常的な値を取る。すなわち、定常的な燃焼を行う。圧力が上昇し、 $[H_2]$ や $[O_2]$ が大きくなるにつれて(7)式の分母の第三項目が増大し、分母全体としての値が小さくなる。すなわち、H₂O の生成速度が増大する。圧力がさらに増大し、 $[H_2]$ と $[O_2]$ の濃度が(8)式のようにになると(あるいは、(7)式の分母がゼロになると)、(7)式は発散する。このことは、爆発的に反応が進むことを意味している。

$$[O_2] = \frac{k_o k_n [H_2] + k_n k_i}{2k_o k_o [H_2]} \quad (8)$$

これが、図2の第一爆発限界である。

圧力がかなり高いときには、器壁での反応である(h)や(i)はあまり反応全体には寄与しなくなり、(d)(e)(f)が重要となる。そこで、これらの反応のバランスがとれると、定常的な燃焼が実現する。この閾値が第二爆発限界となる。この近傍では、振動的な燃焼がよく観測される。第三爆発限界は、前節で議論したような、熱爆発への転移になり、(a)~(i)の反応速度を定数とした取扱いはでてこない。すなわち、温度が上昇するほど、反応が速くなり、そのことにより熱の発生も増大する。熱の発生により、温度が上がり、反応がさらに加速される。このような効果(反応の活性エネルギー)を考慮に入れることにより、第三爆発限界を説明することができる。

3. BZ (ペロソフ・ジャボチンスキ) 反応⁴⁾

均質な水溶液であるにもかかわらず、リズムやパターンが自発的に作り出される化学反応がある。これはソ連の生物物理学者である B. P. Belousov が 1951 年に発見した現象である。生物でのエネルギー代謝に関わる重要な反応系として、トリカルボン酸サイクルがある(クエン酸回路とも呼ばれる)。これは、生物が取り入れた糖や脂肪が分解し、酸化反応により ATP (代謝反応の高エネルギー中間体) を合成していく過程にみられる、有機酸の化学反応系のことである。彼は、このトリカルボン酸サイクルの化学反応に関係している

クエン酸を、いろいろな触媒を使って酸化反応させる実験を進めていた。そのような研究を行っているときに、たまたま反応液の酸化・還元反応が繰り返して生じる現象を見いだした。

Belousov は、このような事実を論文にまとめて、学会誌に投稿した。彼が実験に用いた反応液の組成は次のとおりである。クエン酸, 2 g; $\text{Ce}(\text{SO}_4)_2$, 0.16 g; KBrO_3 , 0.2 g; H_2SO_4 (1: 3), 2 ml. これに水を加えて全量を 10 ml とした。彼はセリウムイオンが 4 価(黄色)と 3 価(無色)の間で繰り返し変化することを発見した。繰り返しの周期は約 80 秒であると記載している。

ところが、「化学反応がリズムをつくり出す」といった奇妙なことは起こるはずはないと、論文のレフリヤ編者からは、掲載を拒否 (reject) された。彼の論文はついに、どの学会誌にも掲載されることがなかった。結局、彼自身の発表物としては、1958 年のソ連の放射線医学界の学会発表要旨があるだけである。Belousov は失意のうちに死んでいったと言う。

その後、同じくソ連の化学者である A. M. Zhabotinsky が、

Belousov の実験の追試を行い、化学反応のリズムがより明瞭な形で現れる実験系を確立した。そこで、2 人の名をとって、Belousov-Zhabotinsky 反応、あるいは単に、ジャボチンスキ反応と呼ばれている。

図-3 に示したような、空間的なパターンを作り出す現象を、空間的振動反応という。しかし、振動反応 (Oscillatory Reaction) とはいっても、水面にできる波のような、液面が上下する振動ではなく、液面は水平のまま、化学反応のみがパターンを作りながら空間的に伝播していていることに注意したい。また図-3 を詳しくみると面白い

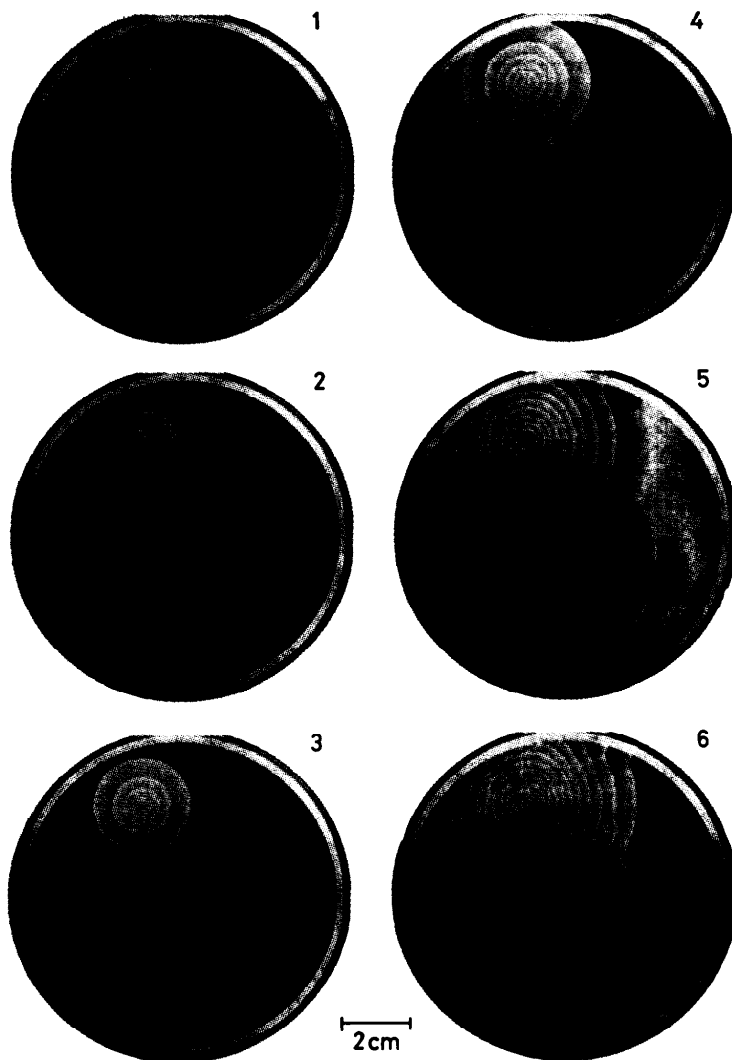


図-3 ペトリ皿上の BZ 反応の同心円パターン

黒い領域は Fe^{3+} (赤色), 白い領域は Fe^{2+} (薄青色).

(1) 0 (2) 45 (3) 90 (4) 135 (5) 285 (6) 345 秒後.

ことに気付く。波同士が衝突したら、互いに波が消失することである。普通の水面にできる波は衝突すると干渉縞が生じるが、この空間的振動反応ではこれがない。このような現象は、反応拡散系の非線形波の示す一つの特徴であり、神経膜での電気的パルスの衝突の際でも同じようなことが観察されている。

BZ 反応の詳しいメカニズムは、オレゴン大学の研究者によって調べられた。そのため、シミュレートするのに最もよく用いられる方程式は、オレゴネータと呼ばれている。オレゴネータの反応速度式は次のようになっている。

表-1 オレゴネータの記号と化学種の対応関係

記号	化学種
A	[BrO ₃ ⁻]
B	[マロン酸]と[臭化マロン酸]
C	[Ce ³⁺]+[Ce ⁴⁺] (セリウムの全濃度)
H	[H ⁺]
X	[HBrO ₂]
Y	[Br ⁻]
Z	[Ce ⁴⁺]

オレゴネータの反応式

$$\frac{dX}{dt} = k_3 H^2 A Y - k_2 H X Y + k_5 H A X - 2k_4 X^2 \quad (9)$$

$$\frac{dY}{dt} = -k_3 H^2 A Y - k_2 H X Y + \frac{1}{2} k_7 B Z \quad (10)$$

$$\frac{dZ}{dt} = 2k_5 H A X - k_7 B Z \quad (11)$$

表-1には、オレゴネータの記号と、化学種の対応関係を示した。

Field と Noyes は、実際の化学反応の実験結果を参考にして各パラメータを次のように推定した。

$$k_2 H = 1.6 \times 10^9 M^{-1} sec^{-1}$$

$$k_3 H^2 A = 0.08 sec^{-1}$$

$$k_4 = 4 \times 10^7 M^{-1} sec^{-1}$$

$$k_5 H A = 500 sec^{-1}$$

$$k_7 B = 1 sec^{-1}$$

ここで、H=0.8 M (水素イオン濃度)、A=0.06 M とし、反応中は一定濃度に保たれているとする。M=mol/dm³ であり、モル濃度を表している。かくして、オレゴネータはx, y, zの三変数の連立微分方程式となる。

4. 非線形振動の同調現象 (モード・ロッキング)⁴⁾

BZ 反応の反応液を攪拌すると、酸化状態と還元状態が、交互に繰り返す、化学反応のリズムが現れる。反応槽を二つ作り、それらの間に細孔を

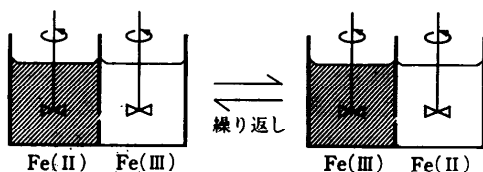


図-4 BZ 反応の反応槽を二つ並べ、細孔を開けておくと、二つの化学的リズムが自発的に同調する。

あけ、反応液が流通できるようにすると、二つのリズム反応が自発的に揃うようになる(図-4)。おのおののリズムの元来の周期が異なっても、この「引き込み同調」により、それらの周期は完全に同一となる。すなわち、時空間(Spatio-Temporal)の秩序が自発的に出現する。反応槽をゆらしたり、少量の酸を加えるなどして、この同調を無理矢理はずしても、もとの同期したモードに自然に戻る。すなわち、リズムの揃った秩序だった状態が安定であり、無秩序の状態は不安定となる。

図-5 は、BZ 反応の類似の反応である、Briggs-Rauscher 反応での、三つの化学的リズムの相互作用を調べる実験装置を示した。図-6には、その実験結果を示した。おのおのの反応のリズムが、120度互いに位相のずれた3相のモードとなっていることが分かる。それぞれの反応槽で酸化還元反応を繰り返しているので、電極を入れると、酸化還元電位の変化として記録することができる。そこで、図-5 の反応槽に、電極を入れると、「3相交流」として電力を取り出せることになる。

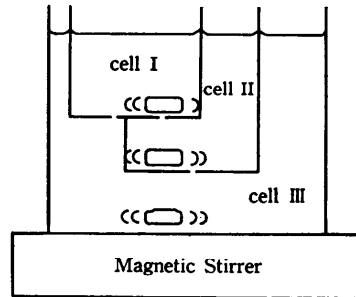


図-5 Briggs-Rauscher 反応での、三つの化学的リズムの相互作用を調べるための実験装置 各穴の直径は 1mm. 反応液: 3 M H₂O₂, 0.2 M KIO₃, 0.16 M HCl, 0.15 M マロン酸, 15 mM MnSO₄, 1% デンプン.

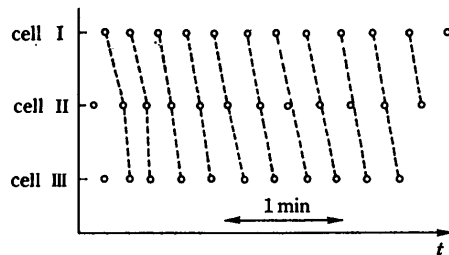


図-6 3相モードの出現。

図-5の装置での実験。○印は、反応液が黒青色(ヨウ素デンプン反応)になった時刻を示している。おのおのの反応液は、無色と黒青色の間のリズムの反応を行うが、細孔があるために、120度位相のずれた、3相モードが安定モードとして出現する。

3相交流は、回転運動を無理なく引き起こすことができ、3相モータを回すことができる。すなわち、化学反応（酸化還元反応）により、3相交流をとりだし、3相モータを働かせることが可能となる。化学エネルギーを力学的エネルギーに高い効率で変換する、全く新しい化学機関として、このような実験系はきわめて面白い。

一般にBZ反応の基本的な性質は、3変数からなる微分方程式であり、前述したOregonatorを用いて記述することができる。しかしながら、同心円やラセン状のパターンの発生・成長などの興味深い現象は、2変数のvan der Pol方程式に、空間に関する微分を取り入れたBonhoeffer-van der Pol (BVP) 方程式(12), (13)でもって説明することができる。

$$\frac{\partial x}{\partial t} = \frac{1}{\tau} \left(x - \frac{1}{3}x^3 + y \right) + \varepsilon^2 \nabla^2 x \quad (12)$$

$$\frac{\partial y}{\partial t} = -\nu y + \Delta^2 y \quad (13)$$

ここで、 x, y はおのおの activator (ラジカル中間体) と、inhibitor (臭素陰イオン) の濃度に対応している。

今、図-7のようなシステムで、二つの振動反応系を相互作用させると、(12), (13)式は、(14)~(17)式のような、常微分の形に変形できる。

$$\frac{dx_1}{dt} = \frac{1}{\tau} \left(x_1 - \frac{1}{3}x_1^3 + y_1 \right) + \frac{\varepsilon^2 \nu}{V_1} (x_2 - x_1) \quad (14)$$

$$\frac{dy_1}{dt} = -\nu y_1 + \frac{\nu}{V_1} (y_2 - y_1) \quad (15)$$

$$\frac{dx_2}{dt} = \frac{1}{\tau} \left(x_2 - \frac{1}{3}x_2^3 + y_2 \right) + \frac{\varepsilon^2 \nu}{V_2} (x_1 - x_2) \quad (16)$$

$$\frac{dy_2}{dt} = -\nu y_2 + \frac{\nu}{V_2} (y_1 - y_2) \quad (17)$$

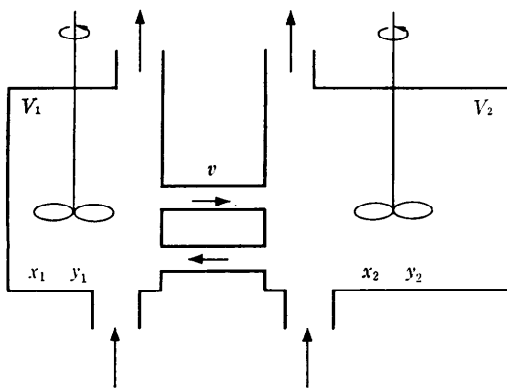


図-7 二つの振動反応系を相互作用させる実験装置の模式図

ここで、 v は二つの反応槽間の体積流速であり、添字の1, 2は反応槽の番号を意味している。 V は反応槽の容積である。(14)~(17)式は、次のような性質を有している。

(a) v が十分大きいとき、二つの反応系は同調する。

(b) $V_1 = V_2$ のときは、同相 (in phase) のモードが安定である。

(c) V_1 と V_2 の非対称性が大きくなると、逆相 (out phase) も、次第に安定化する。

これ以外にも、引き込み同調にとまない、同相と逆相のモードが一般的に出現する。

非線形振動子の個数が3以上の場合、特に面白いのは、逆相モードでの引き込みである。すなわち、三つの振動子が相互作用すると、図-8に模式的に示したように、右回りと左回りの3相モードが双安定な解として存在する。これは二つの振動子同士は、逆相になろうとするが、三つの振動子間では、どうしても frustration が生じる。この frustration を少なくする動的モードとして、図-6のような3相モードが出現することが分かる。同様の3相モードは、「塩水振動子」においても見ら

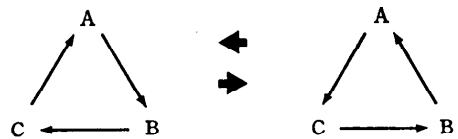


図-8 3相引き込みモードの双安定性

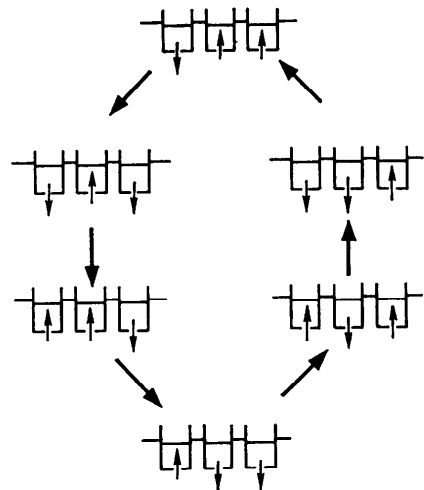


図-9 三つのコップを用いたときの時空間の秩序形成 (引き込み同調)

れる。図-9には、三つの塩水振動子の引き込み同調の様子を示した。なお、「塩水振動子」は、底に穴のあいたコップの中に塩水を入れ、それを真水の入った容器に浸したときに生じる、穴を介しての水のリズミ的な上下流のことである。図-9の実験では、三つのコップを一つの容器に浸している。

5. 結合振動子の不動点

以下3個の発振子の場合を例にとって、発振子の同調の様子を定性的に考えてみよう。塩水発振子については、三つのコップの水位に関する方程式を

$$\begin{aligned} \ddot{x} + F(x)\dot{x} + cx + d(y+z) &= 0 \\ \ddot{y} + F(y)\dot{y} + cy + d(z+x) &= 0 \\ \ddot{z} + F(z)\dot{z} + cz + d(x+y) &= 0 \end{aligned} \quad (18)$$

また、Briggs-Rauscher 反応系に対する Bonhoeffer-van der Pol 方程式を

$$\begin{aligned} \ddot{x} + F(x)\dot{x} + cx + d(2\dot{x} - \dot{y} - \dot{z}) &= 0 \\ \ddot{y} + F(y)\dot{y} + cy + d(2\dot{y} - \dot{z} - \dot{x}) &= 0 \\ \ddot{z} + F(z)\dot{z} + cz + d(2\dot{z} - \dot{x} - \dot{y}) &= 0 \end{aligned} \quad (19)$$

とし、これらの方程式にみられる同調周期解を考えよう。

(18), (19)式どちらの方程式についても、変数の循環的な置換

$$\begin{aligned} P : (x, y, z) &\rightarrow (y, z, x) \\ P^2 : (x, y, z) &\rightarrow (z, x, y) \\ P^3 : (x, y, z) &\rightarrow (x, y, z) \end{aligned} \quad (20)$$

によって、方程式は不変である。 P^3 は3回続けて置換すると、元に戻ることを意味している。この対称性によって、方程式の解にも P 不変な性質をもつ解が存在する。すなわち、任意の時刻において

$$x(t) = y(t) = z(t) \quad (21)$$

あるいは、

$$x(t) + y(t) + z(t) = 0 \quad (22)$$

を満たす解がこれにあたる。(21)式の解は、三つの振動子の波形が同じであり、これは波形間に位相差がない同相解を表す。他方、(22)式の解は、三つの波形間の位相差がそれぞれ120度ずつずれた、時間的に循環する3相解を表す。すなわち、

$$\begin{aligned} (x(t), y(t), z(t)) &= (x(t), x(t+2\pi/3), x(t+4\pi/3)) \\ (x(t), y(t), z(t)) &= (x(t), x(t-2\pi/3), x(t-4\pi/3)) \end{aligned} \quad (23)$$

の性質をもつ解となる。

このように方程式を直接解くことなく、3次の巡回置換に対する不変な性質をもつ解として、自発的に生じるリズムが同相または3相の波形となることが分かる。

次に(18)式を例にとって各リズムに対応する解を計算してみよう。同相解は、(21)式の関係(18)式に代入して、

$$\ddot{x} + F(x)\dot{x} + (c+2d)x = 0 \quad (24)$$

の周期解として求めることができる。弱非線形系の場合については、調和解法によって近似的に周期解を求めることができる⁶⁾。すなわち、解を

$$x(t) = A \cos \omega t \quad (25)$$

と仮定し、(24)式に代入して、 $\sin \omega t$ および $\cos \omega t$ の係数をそれぞれ零とおくことにより、 A と ω を決定する。これより A は

$$\int_0^{2\pi} F(-\omega A \sin \theta) \sin \theta d\theta = 0 \quad (26)$$

の解として求めることができる。ただし、 $\theta = \omega t$ とおいた。また ω は

$$\omega = \sqrt{c+2d} \quad (27)$$

となる。たとえば、非線形関数が

$$F(x) = \varepsilon(a - bx^2) \quad (28)$$

(ただし ε は小さなパラメータとする) で与えられる場合、同相解は

$$x(t) = y(t) = z(t) = 2\sqrt{\frac{a}{3b}} \cos(\sqrt{c+2d}t) \quad (29)$$

と求められる。なお(24)式の周期解をさらに詳しく計算する方法としては種々の方法があるが、強非線形系に関しては占部・ガレルキンの方法が有効である⁷⁾。

次に、3相解も同様に求めておこう。(22)式より

$$y(t) + z(t) = -x(t)$$

であるからこれを(18)式に代入して、3相解の満足すべき方程式

$$\ddot{x} + F(x)\dot{x} + (c-d)x = 0 \quad (30)$$

を得る。非線形関数 $F(x)$ が(28)式で与えられる場合、解を(25)式と仮定して計算すると

$$A = 2\sqrt{\frac{a}{3b}}, \quad \omega = \sqrt{c-d} \quad (31)$$

となる。したがって3相解は

$$\begin{aligned} x(t) &= 2\sqrt{\frac{a}{3b}} \cos(\sqrt{c-d}t) \\ y(t) &= 2\sqrt{\frac{a}{3b}} \cos\left(\sqrt{c-d}t \pm \frac{2\pi}{3}\right) \end{aligned} \quad (32)$$

$$z(t) = 2\sqrt{\frac{a}{3b}} \cos\left(\sqrt{c-dt} \mp \frac{2\pi}{3}\right)$$

となる。

このようにして同相解と、2組の3相解を求めることができた(図-8)。これらに対応して塩水発振子には三つの異なるリズムがみられることになる。なおどのリズムに落ち着くかは初期条件によって決まる。

より一般的に、結合系の方程式が適当な対称性をもつと、この対称性を保持する解があり、これが同調解(モード・ロッキング)となっている⁹⁾。

上記の例では、変数の巡回置換によって方程式が不変となる。同調解・ n 相解は、この置換の不動点となっている。

参 考 文 献

- 1) Yoshikawa, K.: Oscillatory Phenomenon in Chemistry: Development of Temporal Order Molecular Assembly, in *Dynamical Systems and Applications*, ed. N. Aoki, World Scientific, pp. 205-224 (1987).
- 2) Yoshikawa, K. and Yoshimoto, M.: Nonlinear Phenomenon in Chemistry, *IEICE Trans.*, E74, pp. 1388-1392 (1991).
- 3) 吉川研一: 非線形科学—分子集合体のリズムと私たち—, 学会出版センター (1992).
- 4) Field, R. and Burger, M., Eds: *Oscillations and Travelling Waves in Chemical Systems*, John-Wiley, pp. 1-681 (1985).
- 5) Yoshikawa, K., Fukunaga, K. and Kawakami, H.: A Tri-Phasic Mode is Stable when Three

Nonlinear Oscillators Interact Each Other, *Chem. Phys. Lett.*, 174, pp. 203-207 (1990).

- 6) Hayashi, C.: *Nonlinear Oscillations in Physical Systems*, MacGraw-Hill, New York (1964).
- 7) Rouche, N. and Mawhin, J.: *Ordinary Differential Equations*, Pitman Publishing Inc (1973).
- 8) Golubitsky, M. Stewart, I. and Schaeffer, D. G.: *Singularities and Groups in Bifurcation Theory Vol. 2*, Applied Mathematical Sciences 69 (1988).

(平成3年8月20日受付)



吉川 研一

1948年生。1971年京都大学工学部石油化学科卒業。1976年京都大学大学院工学研究科博士課程単位取得退学。工学博士。化学領域の非線形現象に関する研究に従事。現在名古屋大学人間情報学研究科教授。著書「非線形科学」(学会出版センター)など。



川上 博

1941年生。1964年徳島大学工学部電気工学科卒業。1969年京都大学大学院工学研究科博士課程単位取得退学。工学博士。非線形力学の定性的研究に従事。現在徳島大学工学部電気電子工学科教授。電子情報通信学会、IEEE各会員。

