

1. はじめに

国際宇宙ステーションの実現が身じかになり、特に最近では新聞やテレビなどで宇宙や重力の話題が大変多くなっている。化学反応は重力の影響を受けないものと考えられてきたので、実験データはほとんどないのが現状である。実際に、宇宙空間では化学反応はどのように進むだろうか。そんな疑問に答はまだ出されていない。

地球の長い歴史のなかで、生き物が進化をたどって今日のようになったのは、1 gの地球上でのことであった。筆者らはこの生き物との関連をふまえて、非平衡過程で進む非線形化学反応として典型的な化学振動反応を実例とし、化学反応が微小重力場でどのような影響をうけるかを実験的に研究してきた。微小重力実験は北海道空知郡上砂川町の(株)地下無重力実験センター(JAMIC)における落下実験施設で行い、 10^{-5} gが9.8秒持続するあいだに化学反応がどのように影響を受けるかを測定した。本稿では、この研究を発想した動機とそこに至った背景、遅い化学反応をある程度精度よく結果を出すにはどのように実験をレイアウトして化学変化を追跡するか、実験装置作製のノウハウ、実験結果とその考察などを記述し、化学反応の重力相関を考えるとときの参考になればと考える。

2. 非平衡過程の非線形化学反応

化学反応にも非線形現象[1]がみられ、次のような特徴がある。

- (1) 反応にいき値があり、反応の進行状況が出発物質の初濃度に依存したり、反応に誘導期間が存在する。
- (2) 反応に過去の履歴が関係し、反応物質を加える順序に影響したり、過飽和状態などが現われる。
- (3) 多重安定状態が現われ、温度、圧力、濃度などを一定にしても異なる状態が現われる。
- (4) あるいき値以上の刺激で系が大きく変化したり、外部刺激により系に興奮現象が生じる。
- (5) リズムや空間の動的パターンが自発的に生じる。

本稿でとりあげる化学振動反応は非線形化学反応が非平衡過程で自発的に進行し、自触媒過程が内在する典型的な反応系として以前から知られている。Ferrocyanide - Bromate - Sulfite系やFerrocyanide - Hydrogen peroxide - Sulfite系などのpH振動をはじめ、成分物質を変更した化学振動子、固体触媒による反応の振動現象なども知られているが、ここでは、化学振動反応のなかでも、化学マジックなどに多用されることも多く、最も一般的で、比較的簡単に振動反応が実現できるBelousov-Zhabotinsky (BZ) 反応を実験例に用いた。NADHの過酸化酵素による酸化、解糖系におけるATPの振動反応、生物体による現象例も知られている。

生命体の内部は非平衡状態のきわめて複雑な化学反応系によって構成され、多くの動的不安定性をもつ多数の化学反応が進行している。プリゴジンらはこの非平衡状態にある化学反応系が電場や重力場のような外場、外部環境に対して高い感受性をもつ[2]ことを指摘した。散逸構造の理論的な研究[3]から1977年にノーベル化学賞を受けた。生命活動はエネルギーの散逸過程のなかで、機能構造体をつくり、ミクロな生体分子間の非線形反応系によって増幅される可能性を指摘している。プリゴジンらの理論的研究との関連性も含

め、筆者らは生命現象と重力の関係についての鍵を解く発端を実験の立場から見極めたい考えている。そのために生命現象を極限的レベルまで単純化した実験系モデルとして、化学振動反応を位置づけた。さらに、生き物を直接に使う実験とは違って、いかに非線形反応の初期値依存性が高いとしても、化学物質を混ぜあわせれば実験の準備が簡単にできることも現段階では必要なことと考えた。また別の見かたとして、西原克成は生き物の進化における重力の役割を生物学実験の立場から主張している[4]。

3. 化学振動反応

BZ 反応は生命現象の営みと対比させることができる。すなわち、生命現象では、脂肪、タンパク質、糖類などの反応基質と、酸化剤として呼吸によって吸収する酸素が酵素の触媒作用によって、心臓の拍動のような時間的秩序と、子供から大人に成長するような空間的秩序がある。化学振動反応では、これらと同じように、反応基質にマロン酸 ($\text{CH}_2(\text{COOH})_2$)、酸化剤にオキシハロゲン化物、金属触媒によって反応溶液を構成し、均一系化学反応により自発的に自己組織化が進む。この反応系は基本的には酸化還元反応であり、金属触媒にどのような物質を使うかによって酸化状態と還元状態で色変化が大きいときは、化学振動を可視化することができる。通常の BZ 反応ではマロン酸、酸化剤として硫酸酸性下の臭素酸塩 (BrO_3^-) に加えて、金属触媒としてトリス-1, 10-フェナントロリン鉄錯体(II) (フェロイン, Ferriin) を出発物質として使う。これらの混合溶液をビーカーのなかで攪拌しつづけると、2. (1) に述べた誘導期間ののち、溶液全体がフェロインの赤色とフェリイン (トリス-1, 10-フェナントロリン鉄錯体(III) (Ferriin)) の青色の間で、時間とともに交互に色が変わるのが観察され、時間的振動を示す。攪拌をとめると、赤色の溶液のなかに青色のもやもやした構造 (structure) が観察される。一方、同じ溶液をシャーレ (Petri dish) にそそぎ入れ、深さ 1~2 mm の薄い液層にして静置すると、反応-拡散系による空間的振動が現われ、同心円状の赤色と青色の縞が生成する。これらは化学波で、形がダーツや弓的に似ていることからターゲットパターンと呼ばれ、ゆっくりと広がって行くのが観察される。さらに、同じ溶液を細いガラス管に入れると、擬 1 次元系の振動挙動として、ターゲットパターンを横切りにしたように、赤色と青色の縞がガラス管内を移動するのが観察される。ここで観察される赤色と青色はフェロインとフェリインの色変化であるが、金属触媒として、Ce (IV) / Ce (III) 塩を用いたときは黄色と無色の間で、Ru (III) / Ru (II) 錯体では緑色と黄色の間で化学振動反応が観察される。Ru 錯体では紫外線を当てると暗室で蛍光が点滅する化学振動も見られる。

4. ベローゾフ-ジャボチンスキー反応の振動挙動と落下実験

国際宇宙ステーションほどではないが、地上の JAMIC で行う実験と言えども、制約が比較的多い実験条件下で、少ない実験の機会から無駄なく、確実性があり、しかも測定精度の高い実験成果をえることが必要である。そのためには、新規性を追及するよりも、これらの条件により間違いのない手法で、可能な限り簡単に、単純な操作を選ぶことの重要性を最優先させた。装置の開発もこの立場から行って、それなりに成功したと考えている。

生き物になるべく近い実験を行うには、散逸系の流れのなかで自己組織化に対応する化学振動反応を行わ

せたいところであるが、この落下実験では、装置と実験操作を簡単にする目的で、バッチ形式による反応-拡散系の実験を行った。

4.1 化学振動反応の重力相関を実験的に研究するねらい

一般に、水溶液中で化学反応が進むには対流と拡散によって物質移動が行われると考えられている。しかし、微小重力場では、対流が抑えられるため、物質移動は拡散のみに依存するはずである。1 g の状態と比べて、微小重力下では化学反応の進み方が遅くなり、遅くなった分が対流によって物質が運ばれていることになる。BZ 反応の反応-拡散系実験では、化学波の進む速さが微小重力下では対流で運ばれる分だけ遅くなるはずである。これに対して、水溶液でなく、ゲルの中で同じ化学反応が起きると、対流が抑えられて物質移動が抑制されるであろう。そこでは、同じ化学波の移動する速さは、1 g 下と微小重力下との違いがなくなるはずである。したがって、重力相関の実験では、水溶液を用いた化学反応の 1 g 下と微小重力下の比較、およびゲルを用いた化学反応の 1 g 下と微小重力下の比較を対比させ、水溶液の実験結果に有為の違いが見られれば、今の仮説が正しいことになる。何回かの装置と方法の改良の結果、反応容器を改善することにより、JAMIC の実験で、微小重力場だけでなく、カプセルを軟着陸させるために制動をかける際の 3~8 g が加わる時間が短時間あり、この間を利用した。フェリイン/フェロインの色変化を利用する BZ 反応では、ターゲットパターンの動きを目視的に捕えることができるので、ある注目した化学波について、1 g μ g 大きい g 1 g の時間経過を CCD カメラで追跡し、画像データとして取得し、画像解析により、化学波の移動速度を求めることができる。

4.2 微小重力場実験に向けての化学振動反応の吟味

演示実験として通常使われる BZ 反応の溶液組成では不都合があり、微小重力実験に適切な実験条件を見つけるために、次の視点から化学反応系の検討を行った。ただし、これらの吟味は化学反応系だけの問題ではなく、4.3 の実験装置との関連性も当然あり、必要ところで触れながら記述したい。

(1) 化学振動が長時間持続するような出発物質とそれらの濃度組成を検討

化学マジックとして演示実験(デモンストレーション)を行うときは、化学振動が1時間半も持続する必要はなく、むしろ誘導期間が短くて、反応溶液を調製した直後に化学振動が起きることがのぞましい。それに対して、JAMIC における実験では、私達実験者から JAMIC の担当技術者に落下実験装置を引き渡してから落下までのカプセル-インテグレーションの時間が 50~100 分程度ある。BZ 反応としては、装置の引き渡し前に反応容器に溶液を導入すると、インテグレーションの間に誘導期間を経過して、化学波が生成したところで、落下するようなスケジュールが望ましい。ある程度の試行錯誤のすえ、表 1 のような初濃度で各物質を混ぜて反応溶液を構成した。水溶液系実験では、化学波の発生はあまり早くないが、1時間半程度は持続させることができた。二酸化炭素の発生は反応開始からの時間経過(Aging)によって激しくなり、その放出により化学波がこわされることは多くなった。一方、ゲル系実験では、ゲル相を作製しておき、反応溶液をゲル相の表面上に導入して化学波を生成させた。場合によっては、反応溶液を一定時間ゲル相と接触させたのち、排出して化学波の生成を待った実験も行ったが、本質的な違いは見られなかった [5]、[6]。

(2) 化学反応の Aging による気体の放出を最小限にとどめる検討

表 1 に示した反応溶液は Aging を遅くするように配慮したが、より一般性のある濃度範囲の溶液を使いたいと考えた。そのためには、インテグレーションの間に、落下実験装置内で自動的に反応溶液を調製し、ポンプで反応容器に導入し、化学振動の誘導期間を待ったのち、化学波が生成して安定化したところで、落下が行えるような装置を作製した [7]。カプセルに搭載する装置はやや複雑になったが、(1) の実験に比べると、画像データとしてもかなりの改善がなされた。詳細は 4.3 に述べる。

表 1. マロン酸を使う BZ 反応の反応溶液-----各出発物質の初濃度

反応物質	水溶液系実験	ゲル系実験	
		反応溶液	ゲル相
臭素酸ナトリウム	0.30 M	0.70 M	
マロン酸	0.10 M	0.70 M	
硫酸	0.20 M	0.25 M	0.25 M
フェロイン	0.96 mM		3.36 mM
水ガラス			6.42 - 7.04 %

反応溶液を構成する出発物質として、臭素酸塩はカリウム塩が一般的であるが、溶解に時間がかかるためにナトリウム塩を用いた。臭素酸イオンは酸性下で使用する必要があり、BZ 反応では硫酸が用いられる [8]。

(3) 気体発生を伴わない化学系の検討

二酸化炭素のような気体発生を伴わない BZ 反応が Kurin-Csorgei らにより 1996 年後半に発表された [9]。有機反応基質としてマロン酸の代わりに、1, 4-Cyclohexanedione (CHD) を使うものである。マロン酸と比べて、誘導期間が長く、化学波を生成している期間も長いため、JAMIC における落下実験には大変使いやすい化学系になった。ただ、それなりの使いにくい面もあり、予備実験を重ねて、最適な濃度の組み合わせなどを行った。この反応系は臭素の放出を伴うので、JAMIC でもドラフトを使用した。

表 2. 1, 4-Cyclohexanedione (CHD) を使う BZ 反応の反応溶液-----各出発物質の初濃度

反応物質	水溶液系実験	ゲル系実験	
		反応溶液	ゲル相
臭素酸ナトリウム	0.30 M	0.70 M	
CHD	0.20 M	0.60 M	
臭化ナトリウム	55 mM	44 mM	
硫酸	0.30 M	0.30 M	0.30 M
フェロイン	0.63 mM		1.68 mM

(4) 微小重力下の 9.8 秒内に、進行が遅い化学波の動きを明確に検出する手だて

化学反応の速さは変わらないが、発生した気体が放出するときに化学波を壊していたので、おのずと測定精度を低下させていたが、気体発生を伴わない状況下で、化学波が移動する速さを測定することは、改良前に比べてかなりの精度向上に役立っている。さらに、装置作製の面で化学波のコントラストを強調するために青色フィルターを用いたり、画像情報をデジタル化するなどの改良と併せて総合的な検討が有効であり、最終的には 5. に記載するように、微小重力場だけでなく、過大重力場での化学波の挙動も実測が可能となった。

4.3 装置の検討と落下実験

(1) 特に注意をはらったところ

何らかのトラブルのためガラス部分が破損して、硫酸を含む化学物質が実験装置のなかに飛び散らないように、また、反応物質を含む気体が放出しないように完全に閉じた系内で溶液が扱えるように設計し、液送による圧力変化のためにも液留を設備した。さらに、不慮の事故にそなえて、強力な吸水材を随所に用いた。

BZ 反応は温度による影響が反応の進行、化学波の挙動を大きく左右するので、落下実験装置の作製そのものが実験結果の良否を決めてしまうことになる。落下実験装置は JAMIC の規格で横 1/4 ラック (奥行き 870 mm x 幅 425 mm x 高さ 443 mm) [10] を使用し、温度のことを考慮して 3 階層 (下から 1 階、2 階、3 階) に分けて構成した。

1 階：化学反応関係はすべてこの部分で行った。4 面とも厚さ 5mm 程度のベニア板で囲い、光の反射を防ぐために内部を黒く塗った。囲った内部温度は 35W 電気ヒーターによる PID 制御で、25℃ に保った。温度を何箇所かでモニターしたが、変動範囲は 1℃ 程度であり、落下前後はほぼ一定とみなすことができた。熱や光は外部へも出さないようにし、また外部からも入りこむことを避けた。同じカプセル内で相乗りする実験の内容が直前までわからないが、外部からの影響がありそうな場面では JAMIC 側で厚さ 15 mm 程度のアルミ板を準備してあって、これらの手当には行き届いたサービスが受けられた。

2 階：CCD カメラの電源、画像収録用デッキ、変圧器、リレー類、ヒーター電源などの熱の発生を伴う電気電子部品を可能な限り集めた。当然周囲は開放し、空気の流れをよくした。

3 階：JAMIC の制御室にあるモニターで、反応の進捗状況を観測するために、画面 4 分割器を搭載した。3 階の部品点検がやりやすいように、4 分割器は取り外しが簡単な位置に固定した。

どの実験装置にも共通して、微小重力下は質量の大小を問わず、空中を浮遊するので、装置を組み上げる際に、ビスやワッシャの一つや、塵や埃、毛くず、短い毛髪片などがいないような、緻密な注意が必要である。また、1 落下ごとに、チェックリストを作って、ひとつひとつを確認しながら、インテグレーション前の引き渡しに臨んだが、これらは貴重な落下実験のチャンスを無駄にしないための先行研究者からの貴重なアドバイスであった。JAMIC で実験をする利点として、インテグレーションの直前まで研究者が介入して実験条件を決めたり、簡単な手直しが許されることである。実はこのことが JAMIC での実験に限らず当り前のこ

とではあるが、研究を目的として実験をするときは不可欠なことで、極めて大切なことである。1回の落下によって学んだことを適切に対処して必ず次の落下に反映させ、一步一步進んで行く研究態度が実現できるかどうかは、目的達成への道が遠いか近いかの決め手になっている。

(2) 実験装置

落下用実験装置は JAMIC の横 1/4 ラック規格にあわせてアングルで骨組みをつくり、そのなかを以下に述べる各部分で構成した。ここでは JAMIC における実験装置を作製したが、微小重力場の実験や重力関連の実験を行うには、これらと共通する考え方が必要になるであろう。

1) 反応容器：BZ 反応は酸化数が多種類にわたるハロゲンが関係し、化学的な反応性が高いので、ガラス以外にはテフロン程度しか使用できない。ごく短時間でも反応容器が化学的に侵されることもあるが、そのときは BZ 反応そのものが影響を受けて反応が進まなくなってしまう。

2 次元系化学波の測定では、基本的に図 1 に示すようなガラス板 2 枚の間に使い易さからシリコンのスペーサーを挟んだ反応容器を作製したが、ペーサーが臭素におかされて繰り返しの使用に耐えないため、ガラス板に穴（直径 3 mm）を 2 箇所あけ、テフロンコーティングの O リングをスペーサーとする反応容器を作った。

1 次元（厳密には擬 1 次元）系化学波の測定では、内径 0.500、1.00、1.50 mm で、外径はすべて 6.00 mm のガラス管を長さ 150 mm に切って反応容器とした。この両端に曲げやすいものとしてシリコンチューブをつないで、落下実験を行った。収録した化学波の画像をよく注意して見ると、化学波の先端がひずんでいることに気が付いた。落下中の極めてわずかな振動によると推測され、シリコンチューブの部分をやめて、図 2 のように、両端をストップコックで固定し、たわみの原因になりそうな部分を排除したところ、5. に述べるように制動時の画像も得られるようになった。ただし、アクリル材の繋ぎ部分の接着剤が何回かの使用により、やはり臭素で変色してしまっている。BZ 反応は初期値依存性が高いことから、多数の反応容器で化学波の生成を行い、落下時に適切な状態になりそうなものを選んで落下実験に供した。

ゲル系の実験では、1 次元系をめざして、テフロン板（厚さ 1 mm）に幅 1 mm と 2 mm の溝を作り、厚さ 2 mm のスペーサーを介して 2 次元系反応容器で用いたガラス板に挟んで用いた。この反応容器ではテフロン板とガラス板の間に 1 mm のすき間ができる。表 1 のゲル系実験に示したように、溝にゲル相を作っておき、反応溶液をこのすき間に導入し、必要な時間の後に反応溶液を抜き去って化学波を生成させた。これらの時間経過による操作はタイミングチャートに示すように、タイマーを用いた回路で実現した。

反応容器は 2 枚のアクリク板の枠に挟み、CCD カメラを支える光学ベンチに直角の位置で 8 箇所を固定した。落下実験ごとにアクリル板の枠を取り外して、反応溶液の交換を行った。

2) 自動化した溶液調製・導入装置：マロン酸を使う BZ 反応では、反応の進行とともに生成する気泡（二酸化炭素）の発生を抑えることは原理的には避けられないことである。それゆえに、出発物質の濃度組成を変えても限度がある。この理由のため、無理のない一般的な濃度組成をもつ反応溶液を使うことを前提として、カプセルのインテグレーションの時間を利用して、その間に自動的に反応溶液を調製して容器に導入することの検討が不可欠であると考えた [7]。

全体的な構成と溶液流路を図 3 に示す。各くパーツは図 4 のリレー回路により図 5 に示すタイミングチャ

ート、すなわち、リレー動作のシーケンスにしたがって動作させた。反応容器と CCD カメラとの位置関係は図 6 で述べる。ここでは水溶液系実験の場合のみを簡単に説明する。

JAMIC におけるインテグレーション前の装置引き渡し時点では、図 3 において触媒溶液にフェロイン、反応溶液に臭素酸ナトリウム、マロン酸、硫酸の混合溶液を入れておく。2 個の排気溜は硫酸を含むヒュームを系外に放出しないためであり、溶液は完全に閉じた空間内に保たれている。自動的に反応溶液を調製するためのパーツとして液送シリンジメカニズム（自作、電池駆動）とマグネティックスタラー（小型、AC100V 駆動）、自動的に反応溶液を反応容器に導入してオーバーフローさせるパーツとして液送ペリスタポンプ（井内盛栄堂製 M 3 型 2 流路タイプ、AC100V 駆動）をリレー回路に組み入れた。さらに、画像データの取得に必要なパーツとして、CCD カメラと化学波の照明に使う EL (electric luminescent) 板（昭和シェル石油製 Vitrolumine V0901-PW）の両電源を ON にする回路を加えた。これらのパーツ類の動作は時間差をつけて行う必要がある。これらの時間的経過を図 5 の中に示した文字と対応させて以下に述べる。まず、液送シリンジメカニズムを動かして触媒溶液を反応容器へ正確な液量を完全に加える (T_1)。このとき触媒溶液の加え始めと同時に反応溶液の攪拌を開始する。すなわち、マグネティックスタラーの動作をはじめ (T_2)。十分な反応時間を経過 (T_3) したのち、反応溶液を反応容器（反応セル）に導入し、オーバーフローした分は液溜に流れこませて止める (T_6)。CCD カメラの作動と照明用 EL 板点灯の時間はできるだけ短くしておくことが望ましい。その理由は、反応セル内で進行する BZ 反応に対し、これらの発熱の影響が無視できる程度に抑える必要がある。しかし、オペレーションルームのモニター画面で反応溶液の導入を確認して化学波の生成を待つために、ペリスタポンプの動作開始とともに CCD カメラなどの作動を開始した。実際には 4.3 (1) に述べたように、化学反応を行う 1 階部分は 30 W のヒーター、温度制御装置 (Keyence 製 TF 3-12)、2 箇所のファンで温度をほぼ 0.5 以内に制御し、5 箇所で 2 秒ごとの温度測定を行っている。反応溶液の攪拌期間とポンプによる送液期間は BZ 反応に特有の誘導時間によって決まる。また、反応溶液を反応セルに導入してからの放置時間は溶液の導入に伴う流れの効果がなくなるまで静置する必要があり、送液速度をはじめとする実験条件と用いた材質などに左右される。図 5 に示した T_1 などの時間は予備実験から事前に決めておき、リレー動作のスタートは JAMIC によって決められる落下予定時刻から逆算して、オペレーションルームからの信号（スタート信号）により行われた。一例を示すと、 T_1 /s、 T_2 /s、 $T_3 = T_5$ /s、 T_4 /min、 T_6 /s、 T_7 /min、 T_R /s は、それぞれ 30、732、600、60、132、50、348 であった。

3) 画像データの取得：金属触媒にフェリイン/フェロイン系を用いて、その酸化還元反応による青色と赤色の間の交互に進む色変化を利用して BZ 反応を可視化している。ここで行った化学反応の重力関連の実験では、溶液全体の色変化が観察される場合ではなく、化学波がターゲットパターンとして生成する場合に注目した。CCD カメラを用いることにより画像データとして化学波の伝播速度、すなわち、化学反応の速さを求めることは、特定の化学種の挙動を機器測定する手法よりは、マクロに化学反応を追跡することになり、微小重力場を利用する研究としてわかりやすい結果が得られることも期待した。ただし、難点として、これらの化学波は伝播が遅く、特にゲルの中での進行は相当遅いので、計測精度をかなり良くしないと、解析に耐える結果は得られない。

ここで用いた 2 種類の反応容器と、化学反応を追跡するための各 CCD カメラ (XC-77、モノクロ、ソニー)

の全体的な関係をブロック図で図 6 に示した。CCD カメラは光学ベンチ上で移動調整し、反応容器に応じて 25 mm と 16 mm レンズを使い分けた。ほぼ 2.5 cm x 2.5 cm の被写体部分を収録した。2 台の 8 mm ビデオカメラ (TR1000、ソニー) は CCD カメラに対するデッキとして 8 mm ビデオテープへの画像収録に使用した。実験装置の配置の点から配慮して、発熱を伴うカメラの電源類は可能な限り化学反応系に関係しない 2 階に固定した。

落下実験から回収した映像は、言うまでもなく JAMIC 内で直ちに確認し、可能な手直しは次の落下実験に反映させることができるので、1 回の落下実験ごとに問題点の改善をはかることができた。非線形化学反応のように初期値依存性の高い化学反応を扱う場合は、精巧な装置を完成してから実験を行うことがそぐわない分野であり、研究者自身で細かい部分まで手出しが許される、このような実験の進め方ができるかどうかが決め手になることを痛感している。

5. データ解析

オフラインのデータ解析により、1 つの化学波について落下前、落下中、制動下、落下後の進行状況を時間経過とともに可能な限り精度良く、正確に求める必要がある。そして、その挙動を比較して、化学波の進行速度の重力相関を調べるために、落下前後の数分にわたって 8 mm ビデオカセットに収めた化学波の動きを詳しく調べる。パソコン事情の変遷と動きに応じて、研究室レベルにおけるデータ解析の手法も変化した。この研究でも、アナログ画像信号はセレクトラ (SB-V900、ソニー) を通してモニタとパソコンに分け、パソコンへの画像取り込みは画像ボード (MT98-MN、マイクロテクニカ) を用いていた。入力した画像信号は処理プログラム (STM-STS2、ユニソク) により輝度を表わす 1 次元情報を時間毎に積み重ねて 2 次元化して表わしていた。いろいろ問題点があり、改善したい部分もあったが、とりあえず、化学波の g に対応した動きがわかるようにしていた。落下前と落下中のデータを出すのが、精一杯であった。

しかし、今はデータ解析の手法だけでなく、化学反応系の改善、反応容器の工夫、その他多種多様な細かい改良の総合的な結果により、1 つの化学波の落下前、落下中、制動下、落下後の時間経過に応じた進行挙動を追うことができるようになった。オフラインのデータ解析作業で、まずアナログ画像信号をデジタル化する。現状では、まだあまり長時間の画像データを扱うことはできないので、落下 10 秒前から落下後の画像の解析ができるところまでのすべてについて、1 秒当り 30 枚のデジタル画像に変換する。画像解析のソフトウェアには NIH Image (Version 1.52) を用いて、反応容器のガラス管 1 本のうち、収録した化学波のほぼ中心を切り出した。

6. 実験結果と考察

化学反応は重力によって影響を受けないと考えられているが、はたして本当なのだろうか。生き物が地球上で長い時間をかけて進化を続けてきたことは事実であるが、地球上は 1 g 下である。もし g の値が小さかったり、大きかったら生き物はどのようなになったであろうか。この疑問に答える実験は簡単にはできない。

一方、生命現象との共通性があり、非線形性の強い化学反応が非平衡状態で自発的に進行する反応の実例として化学振動反応が知られており、既述のように BZ 反応はその典型例である。ここに述べている研究

の目的は、BZ 反応の反応-拡散系を用いて、自発的に生成するターゲットパターンの化学波がどのように重力相関を示すかを実験的に検証することである。水溶液中の分子、イオンなどの物質移動は一般に対流と拡散によって行われるが、無重力場では対流が抑えられる。したがって、地球上で実験的に実現できる微小重力場では、物質移動は拡散のみに依存するため、化学波の伝播速度は定性的には 1 g 下より小さくなるはずである。これに対して、ゲルの中では 1 g 下でも対流が抑えられ、物質移動は水溶液に比べて抑制される。その結果、化学波の伝播速度は微小重力場と 1 g 下に実質的な違いは生じないはずである。これらの予想のもとに、ここでは BZ 反応の反応-拡散系について、化学波の伝播速度を画像データとして取得し、解析を行う。ただ、化学波の伝播速度はあまり大きくないので、9.8 秒間に進むわずかな距離を精度よく測定するために、いろいろな種類の誤差が影響を与えるであろう。

1 連の落下実験では 1/4 ラックの落下チャンスが通常 3~8 回与えられたので、取得した画像データから解析が可能な限り得られた結果を論文や報告書の形でまとめてきた。この種の実験では、装置の作製そのものも研究対象になった。ここにそのらの結果を網羅する必要はないが、特に実験結果については主なところをまとめて述べることにする。

水溶液系の化学波の伝播速度は表 3 に示す結果をえた [11]。3 回の実験において、各化学波の伝播速度は異なるが、同じ化学波の 1 g 下における速度に対して μg 下における速度の比率は、実験誤差の範囲ではほぼ一定とみなせば 0.809、すなわち、80.9%が拡散により、残りの 19.1%が対流によって物質が運ばれることが実験により明らかになった。

表 3. 水溶液系における化学波の伝播速度

No.	1 g 下 / mm s^{-1}	μg 下 / mm s^{-1}	比率 (μg 下 / 1 g 下)
1.	8.11×10^{-2}	6.24×10^{-2}	0.769
2.	8.52×10^{-2}	7.20×10^{-2}	0.845
3.	8.31×10^{-2}	6.75×10^{-2}	0.812

これに対して、水ガラスを用いたゲルの中で、同様に反応-拡散系実験を行った。厚さ 1 mm のテフロン板に刻んだ幅 1 mm と 2 mm の溝にゲルを作り、化学波を作製した。g の方向に対し、化学波が上向きと下向きに進む場合を分けて解析を行った結果を表 4 に示した [11]。

表 4. ゲル系における化学波の伝播速度

波の方向	溝の幅 / mm	1 g 下 / $10^{-2} \text{ mm s}^{-1}$	μg 下 / $10^{-2} \text{ mm s}^{-1}$	比率 (μg 下 / 1 g 下)	データ数
上向き	1.0	6.51 ± 0.24	6.33 ± 0.45	0.97	4
下向き	1.0	6.59 ± 0.45	6.30 ± 0.37	0.96	22

上向き	2.0	5.19 ± 0.31	5.31 ± 0.25	1.02	27
下向き	2.0	5.40 ± 0.57	5.29 ± 0.49	0.98	11

水ガラスのゲルの中では、水溶液系と同じく各化学波によって伝播の速さは異なり、反応が行われる溝の幅によっても異なることがわかる。しかし、水溶液系と同様に、同じ化学波の1 g 下における速度に対して μg 下における速度の比率は、実験誤差の範囲ではほぼ一定とみなすことができ、1.0 に近い値であった。このことは、重力相関がみられなかったことを表わしている。

その後、マロン酸の Aging により二酸化炭素が生成し、この気体放出がターゲットパターンを破壊することが避けられないだろうかという問題を解決するため、気体を発生しない化学反応系に変更し、反応容器を図2のように変更し、さらに画像データをデジタル化して解析を行ったところ、1つの化学波の落下前、落下中、制動下、落下後の時間経過に応じた進行挙動を追うことができた。NIH Image を使って、1次元情報を時間経過順に並べて2次元出力を図7のように得た [12]。図の黒色部分はフェロインの赤色、白色部分はフェリインの青色を示す。また、縦軸は秒単位の時間、横軸は cm 単位の長さを表わしている。時間とともに移動しない化学波であれば、白色-黒色の境界線は傾きをもたず、移動が速ければ速いほど傾きは大きくなる。落下前と自由落下中の化学波の伝播速度は、表3に示したものと独立の実験であるが、大変よい一致がみられた。さらに、制動による大きい g が加えられたときには、対応する伝播速度の値が得られた。これらの結果は前述の予想を完全に裏付けるものである。

7. その他の実験例

JAMIC を利用した研究の中で、燃焼のグループが大きな成果をあげているが、これは化学反応が直接関係する事例である。化学反応そのものが本質的に関わる内容の研究は、残念ながらまだあまり見られない。高分子化学を扱う事例として、三重大学の川口正美によるフィンガリングの研究、アメリカの南ミシシッピ大学における John A. Pojman らのグループがある [13]。Pojman らはフライト実験で g の値が大きくなったり、小さくなったりすることによる重合度への影響などを精力的に調べている。非線形化学に中心をおくドイツのマグデブルグ大学における Stephan C. Mueller のグループ、古くから知られるリーゼガングリングの成因と g の効果について Mueller と九州大学の甲斐昌一らの共同研究がある [14]。

8. おわりに

国際宇宙ステーション推進の話題がテレビや新聞、雑誌などで日常的に目に入るようになった今、若い世代の人達も宇宙や惑星関連分野に夢を描き、この方面の学部や学科への進学希望者が多くなったことを実感する。積み重ねが勝利をもたらす基礎的研究と夢物語が実現できる応用面からの両輪によって、この分野の時空を越えた発展を期待してやまない。

9. 謝辞

JAMIC における実験的研究ではかなり高額の落下経費や研究費が不可欠である。これらに対しては、JSUP

(宇宙環境利用推進センター)による民間との共同研究をはじめ、各種の経済的援助を受けたことによって本稿記載のほとんどの研究が実現可能になった。この機会に心から謝意を表したい。

引用文献

1. 吉川研一、「非線形科学--分子集合体のリズムとかたち」、学会出版センター(1992)。
2. D. K. Kondepudi and I. Prigogine, Sensitivity of nonequilibrium systems, *Physica A*, **107**, 1 (1981)。
3. G. Nicolis and I. Prigogine, Introduction, in *Self-organization in Nonequilibrium Systems --- From Dissipative Structures to Order through Fluctuations*, John Wiley & Sons, Inc., New York (1977)。日本語訳 小畠陽之助、相沢洋二、「散逸構造--自己秩序形成の物理学的基礎」、岩波書店(1980)。
4. 西原克成、「生物は重力が進化させた--実験で検証された新しい進化の法則」、講談社(1997)。
5. S. Fujieda, Y. Mogami, W. Zhang and T. Arais, Experimental system assembled for studying the chemical oscillation behavior of Belousov-Zhabotinskii reactions in the microgravity, *Anal. Sci.*, **12**, 815 (1996)。
6. S. Fujieda, Y. Mogami, A. Furuya, W. Zhang and T. Arais, Effect of microgravity on the spatial oscillation behavior of Belousov-Zhabotinsky reactions catalyzed by ferroin, *J. Phys. Chem. A*, **101**, 7926 (1997)。
7. S. Fujieda, Y. Mogami, W. Zhang, H. Shinohara and S. Handa, Automated experimental assembly for studying the reaction-diffusion behavior of Belousov-Zhabotinsky reactions under microgravity, *Anal. Sci.*, **15**, 159 (1999)。
8. R. J. Field, Experimental and mechanistic characterization of bromate-ion-driven chemical oscillations and traveling waves in closed systems, in *Oscillations and Traveling Waves in Chemical Systems*, edited by R. J. Field and M. Burger, John Wiley & Sons, Inc., New York (1985)。
9. K. Kurin-Csorger, A. M. Zhabotinsky, M. Orban and I. R. Epstein, Bromate-1,4-cyclohexanedione-ferroin gas-free oscillating reaction. Basic features and crossing wave patterns in a reaction-diffusion system without gel, *J. Phys. Chem.*, **100**, 5393 (1996)。
10. Japan Microgravity Center (JAMIC), *User's Guide*, 新版(1995)。
11. S. Fujieda, Y. Mogami, K. Moriyasu and Y. Mori, Nonequilibrium / nonlinear chemical oscillation

in the virtual

absence of gravity, *Adv. Space Res.*, **23**, 2057 (1999).

12. S. Fujieda, Y. Mori, A. Nakazawa and Y. Mogami, Effect of gravity field on the nonequilibrium / nonlinear chemical

oscillation reactions, *Adv. Space Res.*, in press.

13. J. A. Pojman and I. R. Epstein, Convective effects on chemical waves. Mechanisms and stability criteria, *J. Phys.*

Chem., **94**, 4966 (1990).

14. Fundamental Physics and Chemistry under Microgravity, Proceedings, NASDA Conference Publication (2000).

図の説明

図 1 ガラス製平面型反応容器（セル）

図 2 コックを付けたガラス製 1 次元反応容器（セル）

図 3 自動化した溶液調製・導入システム

図 4 リレー動作のシーケンスを実行する電気回路（Top View）

図 5 リレー動作のシーケンスを実行するタイミングチャート

図 6 反応セルと CCD カメラの接続図

図 7 Belousov-Zhabotinsky 反応の反応-拡散系化学波の NIH Image (Ver.1.52) による解析結果