

## 微小重力下における磁場に制御された化学波動伝播

お茶大 佐々木亜紀子、木村梨香、森 義仁、神奈川工大 本田数博

## Magnetic-Field-Controlled Chemical Wave Traveling under Micro-gravity

Akiko Sasaki, Rika Kiumura and Yoshihito Mori

Ochanomizu University, Tokyo 112-8610

Kazuhiro Honda

Kanagawa Institute of Technology, Atsugi, Kanagawa 243-0292

E-Mail: [mori.yoshihito@ocha.ac.jp](mailto:mori.yoshihito@ocha.ac.jp)

Abstract: Magnetic-field-controlled chemical wave traveling of Co(II) complex-hydrogen peroxide system was examined under micro-gravity. The wave traveling depended on the gradient of the magnetic flux density. The undisturbed wave front was observed to quantitatively analyze the magnetic-field-dependence of the traveling. **Keywords;** Chemical Wave, Magnetic field-controlled

【序論】 $X + A \rightarrow 2A$ の反応式で表現される反応は、生成物が再度反応物となる正のフィードバック型反応であり、他に生成物質が触媒となるような反応も含めて、自己触媒反応群に分類される。このような反応では、反応開始直後は、その進行に伴い反応速度は大きくなるが、反応速度が最大となった後は、速度が減少し、反応物質が全て消費され停止する。自触媒反応の進行に伴う、生成物質濃度の時間変化はS字型曲線となる。攪拌されていない溶液中では、自己触媒反応と物質拡散が共役することで、濃度変化の波が生じることが知られている。これが化学波動 (chemical wave) である。化学波動は時間経過とともに、波の先端が空間を伝播していく場合 (Figure 1)、濃度の空間分布 (濃度の高低変化) は一定に保たれ、伝播速度は常に一定であるという特徴を持つ、非線形現象の1つである。

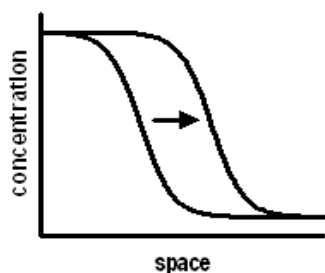
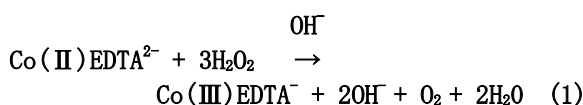


Figure 1 Chemical wave traveling

1994年のHeらの論文 (Inorg. Chem. 33, 2077) において、以下の式(1)の反応による化学波動への磁場の影響が報告された。



この反応は、生成物質であるOH<sup>-</sup>に触媒される、Co(II)EDTA<sup>2-</sup>の自己触媒的な酸化反応であり、ここでの自己触媒種はOH<sup>-</sup>である。反応物質Co(II)EDTA<sup>2-</sup>

は薄いピンク色、生成物質Co(III)EDTA<sup>-</sup>は紫色を示し、波動伝播が容易に観測できる。

一般に、化学波動面では化学組成の急激な空間変化または反応熱により密度勾配が発生する。そのために、対流により波動面が乱される。本研究では、微小重力下において、この対流を抑止し、明瞭な波動面を観察することにより、より定量的な解析を行った。

【実験】Figure 2に装置概略図を示した。左図は、側面図、右図は上部図である。内径12 mm、外径16 mm、長さ70 mmの亚克力管を反応槽とし、その管の両端に、溶液注入及び排出のためにコネクタを取り付けた。反応槽は、0.4 Tのネオジウムマグネットの間に固定した。反応槽を、反応混合溶液 (10 mM Co(II)EDTA<sup>2-</sup>、30 mM H<sub>2</sub>O<sub>2</sub>) で満たし、微小重力状態に到達確認後、反応槽側面中央部に作成した直径2 mmの穴を通じて、10-20 mgの1 M NaOH水溶液をバルク中に注入することにより、反応を促進した。NaOH添加前の反応混合溶液は酸性であり、酸性下では、反応速度は著しく低い。本研究では、パラボリックフライトによる微小重力状態を利用し、温度は20度とした。

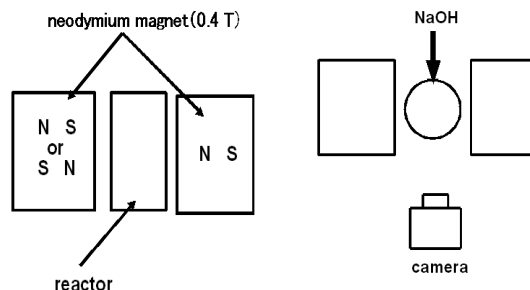


Figure 2 Experimental setup sketch

The side view (left) and the top view (right).

【結果・考察】Figure 3にN-S磁石間における化学波動伝播の時間経過を示した (左図から右図)。左図の濃い黒い部分はNaOH注入口であり、その周辺

の薄い黒い部分が反応生成物の高濃度部分である。時間の経過とともに、その生成物の高濃度部分が拡大して行く様子が観察できる。20秒間の微小重力下で記録した画像をもとに、各スナップショットの画像から、画像長軸方向に沿った、NaOH注入口を通過する、一元情報を取り出し、時間空間ダイアグラムを作成した。

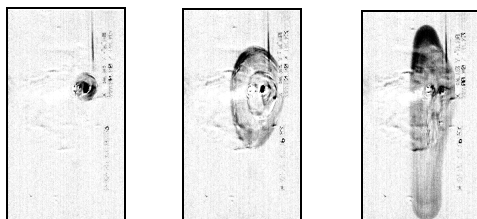


Figure 3 Snapshots of wave traveling (N-S)

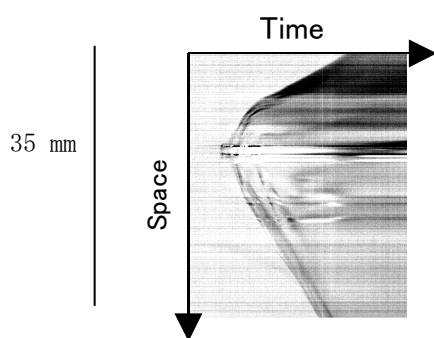


Figure 4 Space-time diagram (N-S)

Wave traveling between the N-S magnets

Figure 4は、N-S磁石間における化学波動伝播の時間空間ダイアグラムである。このダイアグラムより、波動面は、一定の速度で、磁束密度の低い方向に伝播していることが分かる。

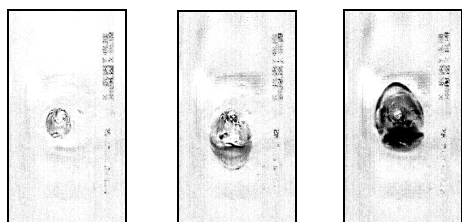


Figure 5 Snapshots of wave traveling (N-N)

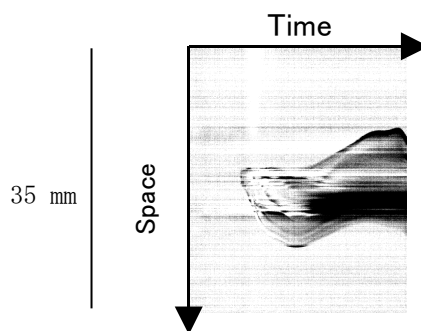


Figure 6 Space-time diagram (N-N)

Wave traveling between the N-N magnets

Figure 5に、N-N磁石間における化学波動伝播の時間経過を示した(左図から右図)。時間が経過しても、その生成物の高濃度部分が拡大速度が、N-S間の結果(Fig. 3)と比較して、著しく遅くなっていることが分かる。

Figure 6は、N-N磁石間における化学波動伝播の時間空間ダイアグラムである。NaOH注入直後は、ある程度、生成物高濃度領域が拡大するが、その後、その拡大が抑制されていることが分かる。また、途中で、高濃度領域が、図長軸方向に、上下しているが、これは、何らかの理由で航行が不安となり、航空機床を基準とした加速度が変動したためであり、記録されたその加速後変動と一致する。これを考慮すれば、N-N磁石間における化学波動伝播は、磁場により抑制されていると理解することができる。N-N磁石配置において、反応槽中央部は低磁束密度領域に相当する。

N-S磁石間及びN-N磁石間の磁束密度を考えると、Co(II)EDTA<sup>2-</sup>とH<sub>2</sub>O<sub>2</sub>の反応による化学波動伝播は、磁束密度の低い領域に向かい進行すると結論できる。Heらが言及しているように、本研究対象の反応の生成物の構成元素であるCo(III)が反磁性であることが、今回の実験結果と関係していることは否定できない。しかしながら、実験温度が20度であり、また溶液中での反応であること考えると、熱揺らぎを考慮に入れた説明が要請されるであろう。空間的に均一なCo(III)EDTA<sup>2-</sup>溶液を、磁場中に置いても、Co(III)錯体が空間的に分離しないことを地上実験で確認している。これは磁場による効果より、熱揺らぎの効果の方が、大きいものとすれば理解できる。それではなぜ、化学波動伝播は、その進行最中だけ、磁場の影響を受けるのかという問題が出てくるが、本論文では、この問題について言及するだけのデータがなく、今後の展開に期待したい。

加えて、先行研究と本研究の実験条件の違いについて書きたい。先行研究であるHeらの実験は、Co(II)EDTA<sup>2-</sup>とH<sub>2</sub>O<sub>2</sub>の混合溶液を反応ペトリ皿に入れ、そこへ、NaOH水溶液滴を加える実験であった。このような実験ではペトリ皿底表面や溶液の気水界面の問題も考慮が必要であろう。しかし、本実験では、混合溶液で満たした密閉容器中で、反応促進剤であるNaOHを、その混合溶液バルク中に注入するために、表面や界面の問題を避けることができる。

【結語】Co(II)EDTA<sup>2-</sup>とH<sub>2</sub>O<sub>2</sub>の反応による化学波動伝播は、磁場中にあるときには、磁束密度の低い領域に向かい伝播することを、N-N磁石間及びN-S磁石間において確認した。微小重力下で実験を行うことにより、対流に乱されることなく、その波動面の明瞭な伝播過程を記録することができ、それらは伝播過程の定量的な解析に使用することができる。

最後に、本研究で使用した磁石を提供して下さった湘南工科大学の佐藤昭教授に感謝を申し上げたい。