

Title	微小構造化媒質における化学反応波に関する研究
Author(s)	鈴木, 健二
Citation	大阪大学, 2001, 博士論文
Version Type	VoR
URL	https://doi.org/10.11501/3184341
rights	
Note	

Osaka University Knowledge Archive : OUKA

<https://ir.library.osaka-u.ac.jp/>

Osaka University

氏名	鈴 木 健 二
博士の専攻分野の名称	博士(工学)
学位記番号	第 16202 号
学位授与年月日	平成13年3月23日
学位授与の要件	学位規則第4条第1項該当 工学研究科応用物理学専攻
学位論文名	微小構造化媒質における化学反応波に関する研究
論文審査委員	(主査) 教授 岩崎 裕 (副査) 教授 増原 宏 教授 八木 厚志 教授 豊田 順一 助教授 中村 收 講師 吉信 達夫

論文内容の要旨

本論文は、振動反応系における時間・空間パターン形成に関する知見を得ることを目的として、イオン交換膜表面に Belousov-Zhabotinsky (BZ) 反応触媒を固定して微小な空間構造を持つ反応媒質を作製し、微小構造化媒質における化学反応波に関する研究をまとめたもので、全7章から構成されている。

第1章では、本研究の背景と目的および意義について述べている。

第2章では、BZ反応とその2変数モデルである Rovinsky-Zhabotinsky (RZ) モデルについて概説している。さらに、このモデルを中心に化学反応波、振動性、興奮性、不応期などの BZ 反応系の示すダイナミクスを理解する上で必要となる概念について述べている。

第3章では、フォトリソグラフィ技術を応用し、イオン交換膜表面にBZ反応触媒からなる数十～数百マイクロメートルの微細パターンを作製するプロセスを開発している。この方法を用いて作製したドット反応場アレイ上では、ドット反応場の直径やドット反応場間の距離を変えることで、等方的な波、異方性を持った波、無定形の波が現れることを明らかにしている。これらの結果から化学反応波の伝播特性が媒質の持つ形状とサイズの両方に依存して臨界的に変化する事を確認している。

第4章では、触媒の存在しない50～150 μm のギャップを介して隣接する反応場間における化学反応波の伝播を研究し、化学反応波が物質拡散を介してギャップを伝播していることを明らかにしている。複数の化学反応波列が周期的にギャップを伝播する場合には、化学反応波列の分周現象が起り、ギャップ幅が増大するにつれてギャップを伝播した化学反応波列の周期が元の周期の1倍、2倍、3倍、4倍と規則的に変化することを明らかにしている。このような化学反応波の分周現象がBZ媒質の持つ相対不応期特性から説明できることを示している。

第5章では、触媒の存在しないギャップを介して隣接する厚さの異なる反応場間での化学反応波の伝播を研究している。実施した実験条件の範囲ではギャップ幅を60～120 μm に設定すると、化学反応波は厚さの薄い反応場から厚い反応場へは伝播できるが、その反対方向には伝播できないことを明らかにしている。さらに、RZモデルに基づいて化学反応波の一方伝播メカニズムについて考察している。

第6章では、触媒固定層の厚さが異なる領域の境界での化学反応波の伝播を研究している。化学反応波が厚い反応場から薄い反応場に入射する場合、化学反応波の周期は、元の周期の1倍、2倍、4倍と周期倍分岐を繰り返して増大することを明らかにしている。RZモデルを用いて化学反応波の周期倍分岐が再現できることを示している。

第7章では、本研究で得られた研究成果をまとめ、今後の展望について述べている。

論文審査の結果の要旨

本論文は、微小な空間構造を持つ Belousov-Zhabotinsky 反応媒質の作製方法と微小な空間構造を持つ反応媒質での化学反応波の伝播特性に関する研究をまとめたものであり、ミクロンスケールにおける非線形化学反応系の挙動を明らかにしている。その主な成果を要約すると次の通りである。

- (1) フォトリソグラフィ技術を応用して、典型的な振動反応である Belousov-Zhabotinsky 反応の触媒 $[\text{Fe}(\text{phen})_3]^{2+}$ 、 $[\text{Ru}(\text{bpy})_3]^{2+}$ を陽イオン交換膜上に微細パターンとして固定することに成功している。また、この方法を用いて作製された触媒パターンの固定された陽イオン交換膜を、触媒を含まない BZ 反応溶液に浸漬すると、触媒固定領域（反応場）で BZ 反応をマイクロメートルスケールで空間的に制御することが可能なことを実証している。
- (2) 数百マイクロメートルの直径を持つドット反応場を正方格子状あるいは三角格子状に集積した反応場アレイ上では、ドット反応場間の距離を増加させると、それに応じて等方的な波、格子の異方性を反映した波、無定形の波が現れる事を発見している。
- (3) 数十～数百マイクロメートルの距離で隣接する反応場間で化学反応波が伝播する場合には、化学反応波が物質拡散を介して伝播していることを初めて示している。また、複数の化学反応波が周期的に反応場間を伝播する場合には、反応場間の間隔や化学反応波の周期に依存した化学反応波の分周現象が起こることを見出し、この現象が BZ 反応の持つ相対不応期特性によって理解できることを実験結果に基づいて示している。
- (4) 触媒固定層の厚さが異なる反応場間では、反応場間の距離を適切に設定すると化学反応波が厚さの薄い反応場から厚い反応場への一方向のみに伝播することを発見している。また、この化学反応波の一方向伝播現象が反応場間での興奮性の違いから理解できることを、実験結果と RZ モデルに基づいた数値計算結果との両面から示している。
- (5) 触媒固定層の厚さが急峻に変化している境界での化学反応波の分周現象について調べ、化学反応波が周期倍分岐的に分周される現象を初めて見出している。また、RZ モデルに基づいた数値計算により本現象の機構を明らかにしている。

以上のように、本論文は微小な触媒パターンを作製するための微細加工方法を開発しており、さらに微小構造を持つ反応媒質での化学反応波の伝播現象を系統的に研究し、反応媒質の持つ空間構造と化学反応波の伝播特性との関係を明らかにしており、応用物理学、特に非線形化学反応論に寄与するところが大きい。よって本論文は博士論文として価値あるものと認める。