

## ベロソフ・ジャボチンスキー反応と光情報処理

雨宮 隆・山口 智彦

ベロソフ・ジャボチンスキー (Belousov-Zhabotinsky: BZ) 反応は、時間的なリズムや空間的なパターンを形成する化学振動反応のひとつであり、その名は2人のロシア人科学者、B.P. ベロソフと A.M. ジャボチンスキーの姓に由来している<sup>1-4)</sup>。BZ 反応は、1950 年代にベロソフによって発見されたが、学界で広く認められるまでにはジャボチンスキーによる発表<sup>4)</sup>までおよそ 20 年を要した<sup>3,5)</sup>。現在 BZ 反応は、プリゴジンらによる非平衡熱力学や非線形動力学の理論<sup>6)</sup>、ハーケンのシナジェティクス概念<sup>7)</sup>、ノイエスらによる反応速度論的な研究<sup>8)</sup>などによって十分に理解が進み、非平衡下、非線形系が示す動的な挙動のモデルとして科学の多くの分野で盛んに研究が行われている。

本稿では、まず BZ 反応の時間的な振動反応と空間的なパターン (化学反応波) との概要を述べ、次に BZ 反応に及ぼす光の効果について記す。続いて BZ 反応の光感受性を利用した光情報処理について、今までの報告例を中心に紹介し、BZ 反応のメカニズムに基づいて現象の説明を行う。さらに BZ 反応系との比較のために、関数フィルターによる画像処理を取り上げる。最後に、網膜の構造や機能を模倣した系における研究例を紹介し、BZ 反応系における光情報処理の特徴を抽出してその展望について述べる。

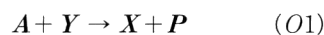
## 1. BZ 反応

標準的な BZ 反応は、硫酸水溶液中、金属触媒 ( $\text{Ce}^{3+/4+}$ ) を介してマロン酸 ( $\text{CH}_2(\text{COOH})_2$ ) が臭素酸 ( $\text{BrO}_3^-$ ) によって酸化される反応である。用いる試薬を多少変更することによって、BZ 反応と類似の系を構成することも可能である<sup>2,3)</sup>。

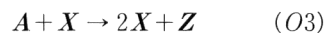
振動反応がみられるのは反応が進行している非平衡状態においてである。ここで、振動するのは反応中間体や触媒の濃度であり、反応の自由エネルギーは振動することなく単調に減少していく。現在のところ、BZ 反応の素過程は 80 以上にもおよぶと考えられているが<sup>9)</sup>、基本的な BZ 反応の化学は FKN メカニズムと呼ばれている 10 個の反応過程に集約されている<sup>1,8)</sup>。さらに、これらの反応過程は再編簡略化され、振動現象を再現するために必要な 5 つの反応過程が抽出された。この化学反応モデルを基に、酸化型触媒と 2 つの反応中間体の濃度を変数とした 3 変数常微分型の数理モデル (オレゴネーター) が考案された<sup>1,10)</sup>。後にオレゴネーターは 2 変数に縮約されたが、この 2 変数モデルは、神経伝達系の興奮性パルスなどを再現する FitzHugh-Nagumo (FHN) モデルと同様の力学系であることもわかっている<sup>11)</sup>。そのほかにも、金属触媒に依存して修正された反応メカニズムや数理モデルがいくつか提出されているが、数理的な構造はいずれも類似している<sup>3,12)</sup>。

BZ 反応の振動現象は、オレゴネーターの基になった以下の化学反応モデルを用いると理解しやすい<sup>1,10)</sup>。

Process A



Process B



Process C



ここで  $X (= \text{HBrO}_2)$  と  $Y (= \text{Br}^-)$  が反応中間体、 $Z (= 2\text{Ce}^{4+})$  が酸化型の触媒を表し、数理モデルの 3 変数となる。また  $A (= \text{BrO}_3^-)$  と硫酸の濃度は一定とみなされ、硫酸濃度は速度定数の中に含まれている。さらに  $P (\text{HOBr})$

物質工学工業技術研究所化学システム部非線形化学グループ (〒305-8565 つくば市東 1-1)  
E-mail: amemiya@nimc.go.jp; tomo@nimc.go.jp

は反応に関与しないと仮定する。化学量論因子  $f$  は、有機物が関与する未解明な反応素過程を簡略化するために導入されたものである。ただし、この化学反応モデルでは、物質収支は成立していない。さて、振動が起こることは、次の3点によって定性的に理解することができる。(i)  $Y$  が  $X$  をつくり (O1),  $X$  が  $Z$  をつくり (O3),  $Z$  が再び  $Y$  をつくる (O5), という循環的なメカニズムが存在する。(ii) 自らの濃度を自己触媒的に増加させる過程が存在する (O3)。自己触媒過程は、熱力学的安定性の理論によれば、安定な定常状態が不安定化するための必要条件である<sup>6)</sup>。(iii)  $Y$  は濃度が高くなると、 $X$  の自己触媒反応を抑制する (O2)。すなわちネガティブフィードバックループが存在する。これは、急激に進行する自己触媒反応を抑制し、振動状態が起こるための必要条件である。

ここで、振動反応は Process A, B, C で表される3状態間を循環するように起こるが、各状態の切り替えに重要な役割を担っているのが臭化物イオン濃度  $Y$  である。すなわち、 $Y$  がある臨界値以下になると Process A から Process B に切り替わり、 $X$  の自己触媒過程が進行する。このときにこの反応に関与する金属触媒が酸化型  $Z$  に変化する。酸化型  $Z$  が増えると Process C が進み、 $Z$  が還元されるとともに  $Y$  が生成される。Process C において  $Y$  は徐々に高くなり、再び Process A に戻る。このように3状態間を循環する振動反応が起こる。振動の様子は、金属触媒の酸化還元反応による色変化や、電極電位の変化、臭化物イオンの濃度変化などによって観測することができる。なお BZ 反応による光情報処理は、光照射によって臭化物イオン濃度や反応中間体の濃度に摂動が加えられ、光照射を受けた部分の振動状態が変化することに起因する。

## 2. 化学反応波

BZ 反応溶液をシャーレの中に薄く展開すると、振動反応が空間的に広がった化学反応波 (chemical wave) が現れる<sup>1-4)</sup>。この化学反応波も BZ 反応による光情報処理に大きな役割を担っている。化学反応波には、位相波、トリガー波、位相拡散波などがある。位相波は、通常の物理系で見られる波のように物質の移動を伴わない。一方、トリガー波は自己触媒反応で生成した分子が拡散することによって伝播する。さらに、2つの異なる位相間を拡散によって伝播する位相拡散波がある<sup>13)</sup>。

化学反応波が広がる反応場には、興奮性媒体と振動性媒体とがある。興奮性媒体は通常は静的な状態にあるが、ある閾値以上の刺激が与えられるとそれらを波として一過的に伝え、その後は元の状態に戻る。また振動性媒体は、一

定の振動数をもつ振動子が空間的に結合した系とみることができ、BZ 反応系では、光照射によって振動性媒体の振動位相をシフトさせたり、振動性媒体を興奮性媒体や化学反応波が全く伝播しない抑制性媒体へと変化させることが可能である<sup>14)</sup>。BZ 反応系における光情報処理は、このように光制御された2次元的な反応場において行われる。

## 3. BZ 反応に及ぼす光の効果

光は BZ 反応の時間的な振動<sup>15-19)</sup> や空間的なパターン<sup>20-23)</sup> に大きな変化をもたらすことが知られている。光の効果は、標準的な BZ 反応の試薬のうち金属触媒や有機物を変更した反応系において観察されるが、ここではルテニウムビスピリジン錯体  $\text{Ru}(\text{bpy})_3^{2+}$  を金属触媒として用いた系について述べる。この光感受性 BZ 反応系は、光情報処理との関連をはじめ<sup>14,24-28)</sup>、単分子膜中のパターン形成<sup>29)</sup>、光ノイズによる振動反応の引き込みや共鳴現象<sup>30,31)</sup> などの観点からも盛んに研究が行われている。

光感受性 BZ 反応系における光化学反応の初期過程は、460 nm 付近の光吸収による  $\text{Ru}(\text{bpy})_3^{2+}$  の光励起である<sup>32)</sup>。この励起分子は溶液中の反応物や反応中間体と化学反応を起こし、BZ 反応に新たな反応経路をもたらす。その反応機構の詳細は未だ明らかにされていないが、2つの基本的な反応経路が提唱されている。1つめは、光励起分子が臭素酸 ( $\text{BrO}_3^-$ ) と反応してアクティベーター ( $\text{HBrO}_2$ ) を生成し、自己触媒反応を促進する反応である<sup>17,18)</sup>。2つめ

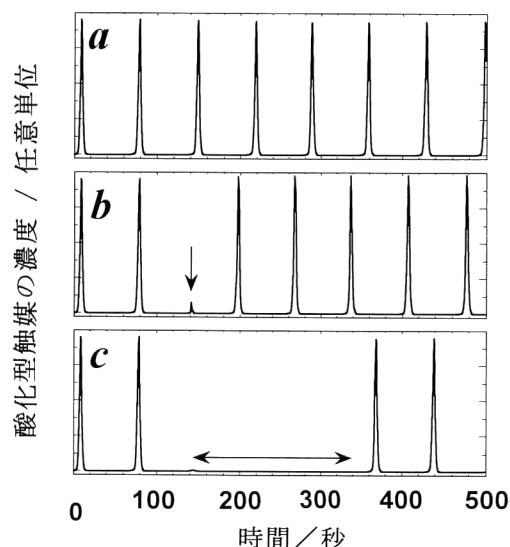


図1 BZ 反応に及ぼす光の効果。a: 光照射なし, b: パルスの光照射を行った場合 (↑で示した時刻において1秒間), c: 連続的な光照射を行った場合 (↔で示した時間)。縦軸は触媒の酸化型  $\text{Ru}(\text{bpy})_3^{3+}$  の濃度に対応する。これらの光応答は、光感受性 BZ 反応の3変数モデル<sup>31)</sup>の数値計算によって得られた。

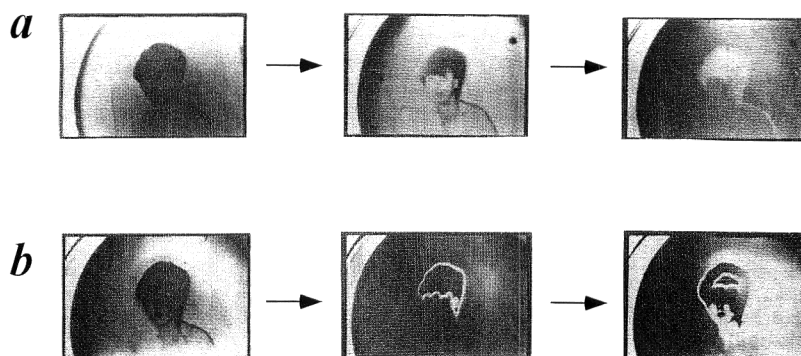


図2 BZ 反応による光情報処理. a: ネガ像とポジ像の反転, b: 輪郭抽出.  
a と b では溶液組成が異なり, a のほうがより振動性の媒体となっている  
(Kuhnert, *et al.*: Nature, 337 (1989) 244 を改変).

は, 光励起分子が反応中間体である臭化マロン酸 ( $\text{BrCH}(\text{COOH})_2$ ) と反応してインヒビター ( $\text{Br}^-$ ) を生成し, 自己触媒反応を抑制する反応である<sup>19)</sup>. 通常これらの相反する2つの反応が同時に起こると考えられるが, 溶液の組成を変えることでどちらかの効果を支配的にすることも可能である<sup>31,33)</sup>. すなわち光は, 強酸性下, 臭素酸濃度が高い場合には自己触媒反応を促進し, 弱酸性下, 臭化マロン酸濃度が高い場合には自己触媒反応を抑制する.

光情報処理に関する研究では, 主に光が抑制的に働くような溶液組成において研究が行われてきた<sup>14,24-28)</sup>. この条件下においては, パルスの光照射によって振動の位相が遅れる場合と, 連続的な光照射によって振動が停止する場合とに大別される(図1). 振動が停止している状態には2つの可能なモードがあって, 光強度が小さいときには興奮性となり, 光強度が大きいときには抑制性となる.

#### 4. BZ 反応による光情報処理

ここでは2次元の振動性の光感受性 BZ 媒体を考える. 反応場は光照射によって振動位相がシフトしたり, 興奮性や抑制性へと変化したりする. それに伴って化学反応波の寄与なども加わり, いくつかの異なる光情報処理過程が観測される.

##### 4.1 画像記録

はじめに反応場全体の位相を, 連続的な可視光照射などによって均一にしておく. 次に写真のネガフィルムのようなマスク像を通して, 反応場に可視光を照射する. パルスの光照射を行った場合には, マスク像の画像情報は光強度の空間分布として反応場に与えられ, BZ 反応の位相の空間分布として反応場に記録される. また連続的な光照射を行っている場合には, 光照射部分が振動性から興奮性, あるいは抑制性へと変化している. BZ 反応の位相変化や系の性質の変化は, 上で述べた振動反応機構と光化学反応

によって引き起こされる. 通常行われている光情報処理の実験では, 光照射部で抑制因子である臭化物イオン ( $\text{Br}^-$ ) が生成していると考えられる.

##### 4.2 ネガ像とポジ像の反転

振動性媒体において, パルスの光照射により記録された位相シフトは, 光照射部と非照射部との振動のずれとして周期的に反応場に現れる. すなわちマスクのネガ像とポジ像とが周期的に出現する. この様子は金属触媒の空間的な色変化によって観察することができる(図2a)<sup>24)</sup>. 図2aにおいては, 黒色部分と白色部分はそれぞれ用いた金属触媒  $\text{Ru}(\text{bpy})_3^{2+}$  の還元型 (+2 価) と酸化型 (+3 価) とに相当している. ここで示した画像処理過程では, 振動性媒体における局所的な位相シフトのみが本質的に重要であり, 拡散を伴う化学反応波は関与していない.

##### 4.3 輪郭抽出

光照射部が興奮性へと変化する条件下においては, 光照射部と非照射部との境界には大きな位相勾配が与えられることになる. すると, この境界から化学反応波 (トリガー波) が発生する. トリガー波は大きな濃度勾配をフロントに有するために, 境界において明瞭な観測光強度の変化が生じる. すなわち化学反応波によって画像の輪郭がひとまわり大きな形で抽出されることになる. この効果を利用した画像処理過程を図2bに示す<sup>24)</sup>. 輪郭を抽出したトリガー波はパルス光照射された興奮性部分へと伝播していき, 衝突後に消滅する.

なお連続的に光照射を行うと, 照射部は興奮性であり続けることも可能となる. 非照射部は振動性であるために, 光照射部と非照射部との境界において周期的にトリガー波が作り出される. その結果, 図3に示すようにトリガー波によって輪郭の抽出が繰り返し行われる<sup>25)</sup>. なお図3では  $\text{Ru}(\text{bpy})_3^{2+}$  の蛍光を利用してパターンを観測しているので, 輪郭を抽出している黒色部分は非蛍光性の酸化型, 白

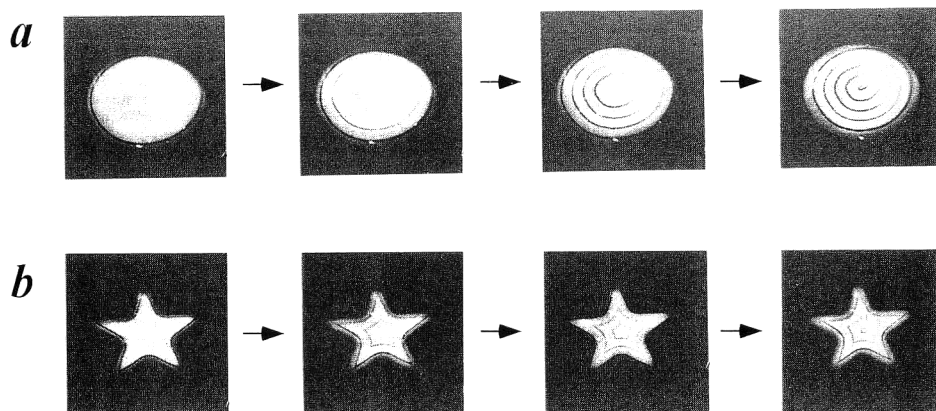


図3 連続的な輪郭抽出現象. 輪郭を抽出したトリガー波(黒色線)が光照射を受けて興奮性となっている領域(白色部分)へ向かうように収束していく. a, bはそれぞれ円形, 星形に切り抜かれたマスクを用いている (Jinguji, *et al.*: J. Phys. Chem., **94** (1990) 1226 を改変).

色部分は蛍光性の還元型に相当する.

輪郭抽出現象は, 4.2 で示したネガ像とポジ像との反転現象とは異なり, 振動反応の位相シフトのみでは起こらない. 振動反応と興奮性媒体中における化学反応波の伝播とが共役することによってはじめて生じるのである.

#### 4.4 輪郭強調

振動性媒体では, 輪郭抽出に加えて輪郭強調という現象も観測される<sup>26-28)</sup>. ここで図4 a に示すように, 振動性媒体の右半分に光照射を行い, 位相が $2\pi$  (1周期) ほど遅れるような条件を設定する. 照射によって照射部と非照射部との境界には大きな位相勾配が形成されるために, 化学反応波が非照射部から興奮性の光照射部へ向かって伝播する. 光照射終了後反応場は振動性に戻っているために, 反応場全体が酸化状態へと振動し, 伝播していた化学反応波は消失する. この後, 振動性媒体に固有の周期で化学反応波が非照射部辺縁から繰り返し発生し, 反応場全体の振動によって消失するという過程が繰り返される. この様子を縦軸に時間, 横軸に空間をとって表示すると図4 b のようになる. ここでグレーレベルは  $\text{Ru}(\text{bpy})_3^{2+}$  触媒の酸化体の透過光強度に対応している.

輪郭強調現象はこのような化学反応波に付随して起こる. 反応場は図4 b に示すように, 光照射によって3つの領域, すなわち光照射部 L, 非照射部 K, 両者の境界部 B に分けられる<sup>3)</sup>. 全体が一様に振動した後のある時刻における空間1次元の濃度分布を考えよう. 初期位相差が $2\pi$  であることから L と K のグレーレベルは常に等しい. この $2\pi$  分の位相差は, 境界部 B を伝播する化学反応波のごく近傍に集約されている. 図4 b に横線で示した時刻における K-B-L の空間1次元の濃度分布を, グレーレベルを縦軸として図5 に示す.

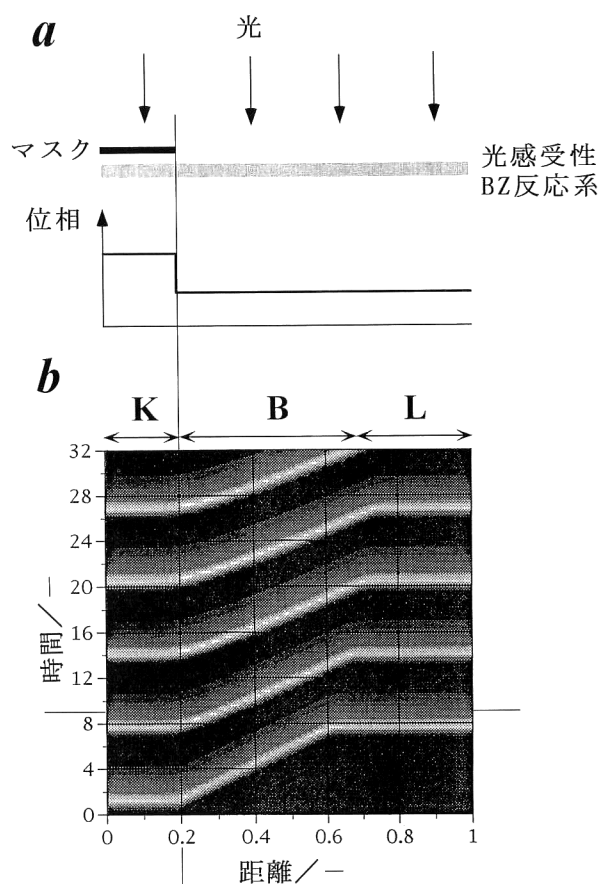


図4 輪郭強調の初期条件 (a) と化学反応波の時間発展 (b). b は光感受性 BZ 反応の反応拡散モデル<sup>28)</sup> を用いた数値シミュレーションより得られたもの. グレーレベルは, 触媒の酸化型  $\text{Ru}(\text{bpy})_3^{3+}$  の濃度を光の透過光強度に換算して表している.

実験的にも, また数理モデルを用いた計算においても, 図に示されたグレーレベルは, 極大値と極小値とが隣り合わせになった特徴的な波形として境界部 B に現れる. この白と黒とで輪郭が縁取られる現象を, BZ 反応系における

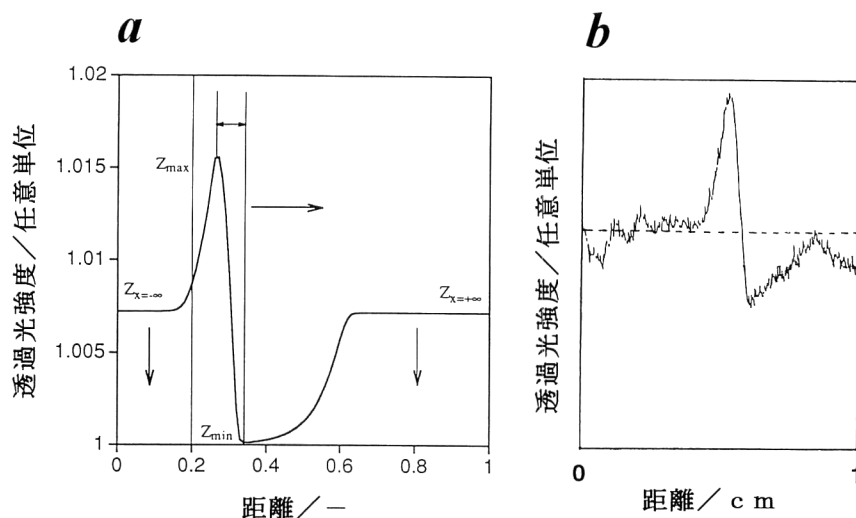


図5 BZ反応による輪郭強調. a: 数値シミュレーション, b: 実験結果. aは図4bの時刻9(無次元)における空間1次元のグレーレベルである. bは酸化型触媒の透過光強度を実測距離に対してプロットしたものの. 照射部と非照射部の境界が位相拡散波によって輪郭強調されている. (中岩ら:平成7年度日本学術振興会プロセスシステム工学第143委員会年次報告, 20(1996)185を改変).

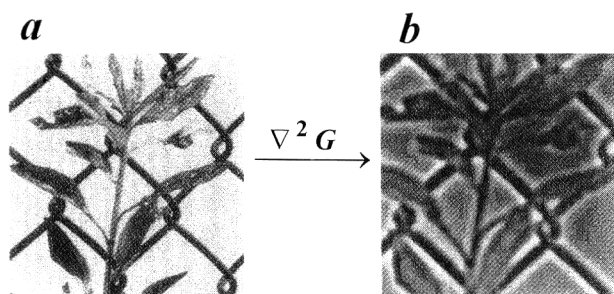


図6 画像フィルタによる輪郭強調. 原画像にガウス関数のラプラシアンフィルタをかけることにより, 輪郭が白と黒で縁取りされて強調される (D. マー:ビジョン(産業図書, 1990)を改変).

輪郭強調という<sup>3,26-28)</sup>. この現象は位相勾配のある振動性媒体間を伝播する位相拡散波が示す特性のひとつである. なお照射部と非照射部との初期位相差が $2\pi$ より小さい場合においても, LとKのグレーレベルは一致しないものの輪郭強調は起こる. なお輪郭強調は4.3で述べた輪郭抽出とは異なり, 興奮性媒体中を伝播する化学反応波によって起こらない. このことは図4bにおいて, 照射部分が興奮性となっている時間帯(無次元化された時間で0~7)においては, 興奮性媒体中を伝播する化学反応波によって輪郭が抽出されているが, 強調はされていないことからわかる.

#### 4.5 画像フィルタによる輪郭強調

BZ反応系で示される輪郭強調の原理は, 通常の写真の輪郭強調とは異なる. コンピュータによる画像処理で

は, 原画像の光学的イメージ  $I(x, y)$  に  $\nabla^2 G$  (2次元ガウス関数のラプラシアン) を演算子とするたたみ込み積分を行い, 輪郭強調画像  $A(x, y)$  を得ている<sup>3,34)</sup>.

$$A(x, y) = \nabla^2 G * I(x, y) \quad (1)$$

この操作によって座標  $(x, y)$  における画像情報を強調し, その周辺部の情報の相当量を差し引くという演算が行われ, 画像の輪郭が隣接する白と黒の2本の線として強調される(図6)<sup>34)</sup>. ここで関数  $\nabla^2 G$  は, 空間定数(標準偏差)の比が1.6である2つのガウス関数の差として得られるDOG (difference of two Gaussians) 関数によっても表現できる. したがって, 原画を適当な2種類のガウスフィルタでぼかしてその差をとっても同様の輪郭強調画像が得られる<sup>34)</sup>.

高等動物では輪郭抽出や輪郭強調などの光情報処理は網膜レベルで行われていることが知られている<sup>34)</sup>. 網膜の生理的な構造を模倣した「シリコン網膜」<sup>35)</sup>や, 網膜の機能のみを工学的に実現した「光マトリックス・ベクトル乗算器」型人工網膜チップ<sup>36)</sup>が, 人間の視覚にきわめて類似していることや, さまざまな画像処理を行えることが報告されている.

一方で, 視物質のロドプシンに類似した感光性タンパク質バクテリオロドプシンを用いた研究も行われている<sup>37,38)</sup>. この研究では「材料レベルで網膜機能が付与された分子素子」を用いることで, 人工網膜で用いられたような複雑な演算回路を取り除いている.

BZ 反応による光情報処理は、コンピューターによる画像処理や、生物の網膜あるいは人工網膜やバイオ素子による光情報処理と比較すると、その形態も機能も大きく異なっていることがわかる。BZ 反応系には網膜のような 3 次元層状構造も、整然と並べられた素子やそれらをつなぐ配線もない。空間的に均一に分散された分子が、反応と拡散とのメカニズムによって画像処理に必要な演算を行っている。構造的に単純な化学反応系が、複雑に構成された系において実現されている光情報処理機能にも匹敵する機能を有することは、注目に値する。

BZ 反応系は基本的には溶液系であり、デバイスとしては扱いにくい。しかし各種ソフトゲル<sup>39,40)</sup>、多孔質ガラス<sup>41)</sup>、膜<sup>42,43)</sup>などをうまく利用すれば、ある程度までは固体素子化できると思われる。

BZ 反応は発見以来、その物理化学的な現象が深く研究され、科学の諸分野に基礎的な側面から貢献してきたといえる。本稿で述べてきた BZ 反応の光情報処理機能は、その中でも応用的な側面を少なからず有し、工学的な研究へと発展できる大きな可能性を秘めているといえよう。

## 文 献

- M. Burger and R. J. Field: *Oscillations and Travelling Waves in Chemical Systems* (Wiley, New York, 1985).
- 吉川研一：非線形化学—分子集合体のリズムとかたち— (学会出版センター, 1992).
- 三池秀敏, 森 義仁, 山口智彦：非平衡の科学 III—反応拡散系のダイナミクス (講談社, 1997).
- A. N. Zaikin and A. M. Zhabotinsky: "Concentration wave propagation in two-dimensional liquid-phase self-oscillating system," *Nature*, **225** (1970) 535-537.
- 吉川研一：“振動反応の創始者 アナトール M. ジャボチンスキー博士”, 現代化学, 6月号 (1991) 30-33.
- G. ニコリス, I. プリゴジン (安孫子誠也, 北原和夫 訳)：複雑性の探求 (みすず書房, 1993).
- H. ハーケン (齊藤信彦, 小森尚志, 長島智正 訳)：シナジェティクスの基礎 (東海大学出版会, 1986).
- R. J. Field, I. Körös and R. M. Noyes: "Oscillations in chemical systems. II. Thorough analysis of temporal oscillations in the bromate-cerium-malonic acid system," *J. Am. Chem. Soc.*, **94** (1972) 8649-8664.
- L. Györgyi, T. Turányi and R. J. Field: "Mechanistic details of the oscillatory Belousov-Zhabotinskii reaction," *J. Phys. Chem.*, **94** (1990) 7162-7170.
- R. J. Field and R. M. Noyes: "Oscillations in chemical systems. IV. Limit cycle behavior in a model of a real chemical reaction," *J. Chem. Phys.*, **60** (1974) 1877-1884.
- 森 肇, 蔵本由紀：散逸構造とカオス (岩波講座 現代の物理学, 1997).
- A. B. Robinsky and A. M. Zhabotinsky: "Mechanism and mathematical model of the oscillating bromate-ferroin-bromomalonic acid reaction," *J. Phys. Chem.*, **88** (1984) 6081-6084.
- R. R. Aliev, T. Yamaguchi and Y. Kuramoto: "On the phase dynamics in the BZ reaction," *J. Phys. Chem. A*, **101** (1997) 7691-7694.
- L. Kuhnert: "A new optical photochemical memory device in a light-sensitive chemical active medium," *Nature*, **319** (1986) 393-394.
- H. -J. Krug, L. Pohlmann and L. Kuhnert: "Analysis of the modified complete Oregonator accounting for oxygen sensitivity and photosensitivity of Belousov-Zhabotinsky systems," *J. Phys. Chem.*, **94** (1990) 4862-4866.
- M. Jinguji, M. Ishihara and T. Nakazawa: "Primary process of illumination effect on the Ru(bpy)<sub>3</sub><sup>2+</sup>-catalyzed Belousov-Zhabotinskii reaction," *J. Phys. Chem.*, **96** (1992) 4279-4281.
- I. Hanazaki, Y. Mori, T. Sekiguchi and G. Rábai: "Photoresponse of chemical oscillators," *Proceeding of Dynamism and Regulation in Nonlinear Chemical Systems*, Tsukuba (1994), *Physica D*, **84** (1995) 228-237.
- A. Kaminaga and I. Hanazaki: "Transient photoresponse of tris(2,2'-bipyridine)ruthenium(II)-catalyzed minimal bromate oscillator," *J. Phys. Chem. A*, **102** (1998) 3307-3314.
- T. Yamaguchi, Y. Shimamoto, T. Amemiya, M. Yoshimoto, T. Ohmori, M. Nakaiwa, T. Akiya, M. Sato and T. Matsumura-Inoue: "Bromomalonic acid as a source of photochemically produced Br<sup>-</sup> ion in the Ru(bpy)<sub>3</sub><sup>2+</sup>-catalyzed Belousov-Zhabotinsky reaction," *Chem. Phys. Lett.*, **259** (1996) 219-224.
- O. Steinbock, V. Zykov and S. C. Müller: "Control of spiral-wave dynamics in active media by periodic modulation of excitability," *Nature*, **366** (1993) 322-324.
- V. Petrov, Q. Ouyang and H. Swinney: "Resonant pattern formation in a chemical system," *Nature*, **388** (1997) 655-657.
- T. Amemiya, S. Kádár, P. Kettunen and K. Showalter: "Spiral wave formation in three-dimensional excitable media," *Phys. Rev. Lett.*, **77** (1996) 3244-3247.
- K. Kurin-Csörgei, A. M. Zhabotinsky, M. Orbán and I. R. Epstein: "Photosensitive, bubble-free, bromate-1,4-cyclohexanedione oscillating reactions. Illumination control of pattern formation," *J. Phys. Chem. A*, **101** (1997) 6827-6829.
- L. Kuhnert, K. I. Agladze and V. I. Krinsky: "Image processing using light-sensitive chemical waves," *Nature*, **337** (1989) 244-247.
- M. Jinguji, M. Ishihara and T. Nakazawa: "Photoinduced formation of spatial patterns in the Belousov-Zhabotinskii reaction," *J. Phys. Chem.*, **94** (1990) 1226-1229.
- T. Yamaguchi, T. Ohmori and T. Matsumura-Inoue: "Artificial retina. Photo-image processing in the Belousov-Zhabotinsky reaction in gels," *Spatio-Temporal Organization in Nonequilibrium Systems* (Projekt Verlag, Dortmund, 1992) pp. 277-280.
- M. Nakaiwa, T. Yamaguchi, T. Ohmori, T. Amemiya, M. Yoshimoto, T. Akiya and M. Kawamura: "Modeling of edge-enhancement phenomena in the photo-sensitive BZ reaction," *International Workshop on Dynamism and Regulation in Nonlinear Chemical Systems* (NIMC-AIST, Tsukuba, 1994) pp. 153-154.
- 中岩 勝, 雨宮 隆, 大森隆夫, 山口智彦：“化学反応場による画像処理過程に関する研究”, 日本学術振興会プロセスシス

- テム工学第 143 委員会年次報告書, **20** (1996) 185-188.
- 29) M. Yoneyama, A. Fujii and S. Maeda: "Wavelength-doubled spiral fragments in photosensitive monolayers," *J. Am. Chem. Soc.*, **117** (1995) 8188-8191.
- 30) 藤井一幸, 猪本 修, 甲斐昌一: "化学振動し結合系における引き込み現象と確率共鳴", 九州大学工学集報, **72** (1998) 1-5.
- 31) T. Amemiya, T. Ohmori, M. Nakaiwa and T. Yamaguchi: "Two-parameter stochastic resonance in a model of the photosensitive Belousov-Zhabotinsky reaction in a flow system," *J. Phys. Chem. A*, **102** (1998) 4537-4542.
- 32) K. Kalyanasundaram: "Photophysics, photochemistry and solar energy conversion with tris (bipyridyl) ruthenium (II) and its analogues," *Coord. Chem. Rev.*, **46** (1982) 159-244.
- 33) S. Kádár, T. Amemiya and K. Showalter: "Reaction mechanism for light sensitivity of the Ru(bpy)<sub>3</sub><sup>2+</sup>-catalyzed Belousov-Zhabotinsky reaction," *J. Phys. Chem. A*, **101** (1997) 8200-8206.
- 34) D. マー (乾 敏郎, 安藤広志 訳): ビジョン (産業図書, 1987).
- 35) M.A. マホワルド, C. ミード (米津宏雄 訳): "人間の眼をもつシリコン網膜", 日経サイエンス, 7月号 (1991) 60-69.
- 36) 久間和生, 田中健一, 太田 淳, 田井修市, 岩附 守: "人工網膜チップの開発と事業化", 応用物理, **67** (1998) 424-430.
- 37) 宮坂 力, 小山行一: "感光性タンパク質バクテリオロドプシンを用いる光電変換とイメージセンシング", 応用物理, **61** (1992) 1053-1057.
- 38) 小山行一, 宮坂 力: "バクテリオロドプシン薄膜を利用した視覚類似センサ", 光技術コンタクト, **30** (1992) 371-380.
- 39) T. Yamaguchi, L. Kuhnert, Zs. Nagy-Ungvarai, S.C. Müller and B. Hess: "Gel systems for the Belousov-Zhabotinsky reaction," *J. Phys. Chem.*, **95** (1991) 5831-5837.
- 40) R. Yoshida, T. Takahashi, T. Yamaguchi and H. Ichijo: "Self-oscillating gel," *J. Am. Chem. Soc.*, **118** (1996) 5134-5135.
- 41) T. Amemiya, M. Nakaiwa, T. Ohmori and T. Yamaguchi: "Chemical waves in mesoporous media," *Proceedings of Dynamism and Regulation in Nonlinear Chemical Systems*, Tsukuba (1994), *Physica D*, **84** (1995) 103-111.
- 42) A. Lázár, Z. Noszticzius, H. -D. Försterling and Zs. Nagy-Ungvarai: "Chemical waves in modified membranes I. Developing the technique," *Proceedings of Dynamism and Regulation in Nonlinear Chemical Systems*, Tsukuba (1994), *Physica D*, **84** (1995) 112-119.
- 43) O. Steinbock, P. Kettunen and K. Showalter: "Anisotropy and spiral organizing centers in patterned excitable media," *Science*, **269** (1995) 1857-1860.

(1999年2月3日受理)