BZ 反応場を内包する高分子ゲルのダイナミクスの理論的考察

(旭医大・産総研^A) ○眞山博幸・原雄介^A

BZ 反応場を内包する高分子ゲルの体積変化のダイナミクスの理論的に考察したので報告する。化学振動反応の 1 つである BZ 反応では触媒の価数が周期的に変化するため、BZ 反応場を内包する高分子ゲルの中で良溶媒と貧溶媒の間で環境が変わり、周期的に体積変化が起こる。このゲルの中で溶媒環境が変わることに注目し、BZ 反応条件下での高分子ゲルの体積変化の時間変化を考察した。高分子ゲルの体積変化は自由エネルギーに基づく議論により考察した[1]。高分子ゲルの自由エネルギーは以下のように記述される。

$$F[\alpha]_{gel} \approx N_{tot} \left(\frac{3}{2N_{sub}} (\alpha^2 + \alpha^{-2}) + \frac{1}{N_{sub}} C^* \alpha^{-6} + \frac{\lambda^2}{N_{sub}^{3/2}} \alpha^{-9} - \ln \left[1 - \frac{\lambda}{N_{sub}^{1/2} \alpha^3} \right] \right) \quad (1)$$

ここで、 N_{tot} および N_{sub} はそれぞれゲル全体と部分鎖(架橋点間の高分子鎖)に含まれる Kuhn セグメント数、 α は部分鎖と Gauss 鎖の広がりサイズの比、 λ は Kuhn セグメントの直径と長さの比、 C^* は溶媒の質である。BZ 反応では C^* が変化する。一方、BZ 反応は Oregonator の 2 変数モデルで記述した。

$$\varepsilon \frac{dx}{dt} = x(1-x) - fz \frac{x-q}{x+q} \quad (2)$$

$$\frac{dz}{dt} = x - z \quad (3)$$

ここで x と z はそれぞれ臭素酸と Ce^{4+} の規格化した濃度、臭化マロン酸と Ce^{4+} の化学量論比である。本研究では Ru 触媒が Ru^{3+} (良溶媒) と Ru^{2+} (貧溶媒) の間で変化する状況を考えた。(1) 式中の C^* は z と次の関係がある。

$$-C^* = 1 - z \quad (4)$$

発表では計算結果と実験結果の比較検討を行う。

[1] H. Mayama et al. J. Chem. Phys. 127, 034901 (2007).

Dynamics of Polymer Gel Containing the Belousov-Zhabotinsky Reaction Field

H. Mayama, Y. Hara (Asahikawa Med. Univ., mayama@asahikawa-med.ac.jp)

We report theoretical results on temporal change of volume of polymer gel containing the Belousov-Zhabotinsky reaction field. In the gel, the change in the valence of metal catalysis occurs periodically in the BZ reaction, solvent quality for the gel also changes. To understand the volume change of the gel with the BZ reaction, we tried to describe the phenomena based on a mean-field theory of volume phase transition of gel and Oregonator 2 parameter model in comparison with the experimental results of the BZ reaction polymer gel.