

化学反応系のアナログ回路化手法

---ブリュセレータの回路化---

西宮優作 浅井哲也 雨宮好仁

北海道大学 工学部

〒060-8628 札幌市北区北13条西8丁目

TEL: 011-706-7147

FAX: 011-707-6585

E-mail: ynishi@sapiens-ei.eng.hokudai.ac.jp

あらまし

本稿では、反応拡散チップの開発に向けて、反応拡散系のダイナミクスを模倣するアナログ電子回路の設計手法を提案した。化学反応の多くは、乗算器を組合せたアナログ回路によって相似できる。拡散現象も同様である。具体例として、ブリュセレータの反応キネティクスを模倣する反応回路、および拡散現象を模倣する拡散回路を設計した。さらにこれらの回路の動作をシミュレーション上で確認した。

キーワード： 反応拡散系、反応拡散チップ、アナログ回路、集積回路

Analog Integrated Circuits

Implementing Chemical Reaction-Diffusion Systems

NISHIMIYA Yusaku, ASAI Tetsuya, and AMEMIYA Yoshihito

Department of Electrical Engineering, Hokkaido University

Kita 13, Nishi 8, Sapporo 060-8628, Japan

TEL: 011-706-7147

FAX: 011-707-6585

E-mail: ynishi@sapiens-ei.eng.hokudai.ac.jp

Abstract

We developed a method of constructing CMOS circuits that implement or imitate the behavior of chemical reaction-diffusion systems. Most chemical reactions and diffusion phenomena can be implemented on a CMOS circuit by using analog multipliers. As an example, we designed a circuit that implement the Brusselator model. We confirmed by computer simulation that the designed circuit successfully imitates the dynamics of the model.

Keywords: reaction diffusion system, reaction diffusion chip, analog circuit, LSI

1. はじめに

非平衡状態において化学反応と拡散現象が混在したシステムを反応拡散系という。物質やエネルギーの流れをともなう非平衡-開放状態では、反応の非線形性が著しく強調されて、平衡系からは予想もつかない動的（ダイナミック）で多様性に富む世界が出現する。自然界に生じる秩序やリズム、および分子集合体にみられる自己組織化などは反応拡散系が生み出す現象の典型例である。反応拡散系は生命現象の特質を理解しようとする立場からみて重要な研究対象であるとともに、情報処理やインテリジェントセンサなど工学的な応用可能性も期待される（末尾文献）。

本稿では、工学応用を念頭において、反応拡散系をシリコンLSIで模倣することを考える。このようなシリコンLSIを「反応拡散チップ」と呼ぶ。化学反応系の挙動は非線形の微分方程式-反応拡散方程式で表現できることが多い。反応拡散チップの開発に向けて、これら非線形方程式のダイナミクスを模倣するようなアナログ電子回路の設計手法を提案する。具体例として、非平衡反応の代表モデルであるブリュセレータを模倣する電子回路を設計し、その動作をシミュレーション上で確認する。

2. 反応拡散方程式と反応拡散チップ

2.1 反応拡散方程式

化学反応と拡散現象が混在した系の挙動は次のような反応拡散方程式で表現される。すなわち、反応系に関与する化学物質を n 種類とし、 i 番目の化学物質の濃度を x_i 、拡散定数を D_i とおけば、系の挙動は次の連立偏微分方程式で表される。

$$\frac{\partial x_i}{\partial t} = f_i(x_1, x_2, \dots, x_n) + D_i \nabla^2 x_i$$
$$(i = 1, 2, \dots, n)$$

ここで $f_i(x_1, x_2, \dots, x_n)$ は i 番目の化学物質の濃度変化を決める非線形の反応項である。素反応を考え、かつ反応熱の影響を無視すれば、反応項は物質濃度の積和関数で表される。

多様な秩序（パターンやリズム）を生む化学反応系は自己触媒の過程をもつ。そのような反応を記述する代表モデルとしてブリュセレータがある。これは図1(a)に示すような化学反応モデルをいう。初期物質 (A, B) から中間生成物 (X, Y) を経て最終生成物 (D, E) を生じる。自己触媒の過程は $2X + Y \rightarrow 3X$ の部分である。いま系全体が均一と仮定するならば、中間生成物 (X, Y) の濃度 (X, Y) は図1(b)の微分方程式に従う。式中の A と B は初期物質の濃度を示す。この式は一般性を失うことなく図1(c)のように無次元化・簡略化できる。式中の x と y は中間生成物の濃度 (X, Y) に比例する変数である。式中の a と b は初期物質の濃度に比例する量であり、その濃度が一定に保たれているならば定数である。

ブリュセレータには自己触媒の過程が含まれているので、パラメータの値（物質濃度や反応速度）に応じて系の挙動に自励振動や分岐現象が現れる（図2）。このような反応キネティクスに拡散効果が加わると、自発的な空間パターンの形成や時間的な振動・リズムなどが現れる（図3）。

反応拡散系には多様な種類がある。ブリュセレータとは別種の反応拡散モデルとして、図4にグレイ・スコットモデルを挙げる。このモデルでは細胞分裂に似た自己複製の時空間パターンが発生する。一例を図5に示す。

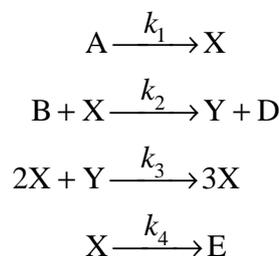


図1(a)

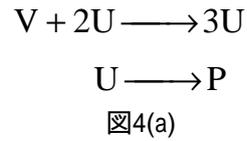
$$\begin{cases} \frac{dX}{dt} = k_1 A - k_2 B X + k_3 X^2 Y - k_4 X \\ \frac{dY}{dt} = k_2 B X - k_3 X^2 Y \end{cases}$$

図1(b)

$$\begin{cases} \frac{dx}{dt} = a - (b+1)x + x^2y \\ \frac{dy}{dt} = bx - x^2y \end{cases}$$

図 1 (c)

図 1 ブリュセレータとその微分方程式
 (a) 反応モデル
 (b) 反応キネティクスを表す微分方程式
 (c) 無次元化・簡略化した微分方程式



$$\begin{cases} \frac{dV}{dt} = U^2V + F(1-V) \\ \frac{dU}{dt} = -U^2V - (F+\kappa)U \end{cases}$$

図4(b)

図 4 グレイ・スコットモデルとその微分方程式
 (a) 反応モデル
 (b) 反応キネティクスを表す微分方程式

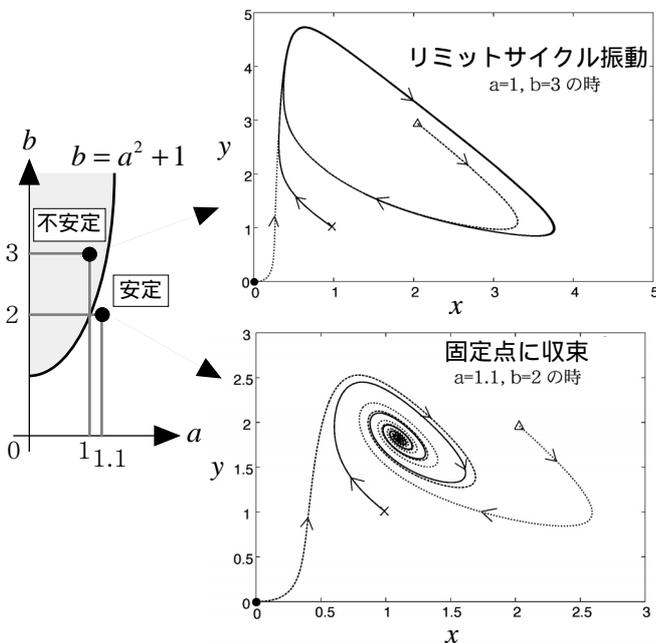


図 2 相平面上的ブリュセレータ動作
 (リミットサイクル、および固定点への収束)

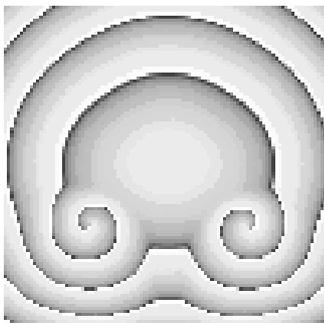


図 3 ブリュセレータが生み出す空間パターン
 (例：らせん模様)

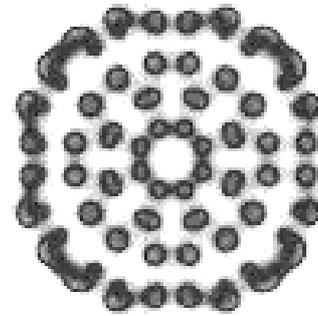


図 5 グレイ・スコットモデルが生み出す空間パターン
 (例：自己複製 - 分裂と増殖)

2.2 反応拡散チップ

いま二次元の反応拡散系を対象として、そのダイナミクスをシリコンLSIで模倣することを考える。そのようなシリコンLSI-反応拡散チップの概念図を図6に示す。いま反応拡散系を多数のセルに分けて考え、各セル内では化学物質の濃度を均一とみなす。これをシリコンLSIで模倣する。すなわちLSIチップを多数のセルに分割し、セルごとに反応キネティクスを模倣する電子回路(反応回路)を一つおく。化学物質の濃度は電圧信号で表す。このセルをチップ上に多数配列する。セルとセルの間は化学物質の拡散を模倣する電子回路(拡散回路)で接続する。本稿では、反応回路と拡散回路ともにアナログ電子回路で構成する。アナログ回路を用いることで、強非線形とフィー

ドバックが混在した反応拡散系のダイナミクスを電子回路上にコンパクトに具現化できる。この反応拡散チップは「反応拡散方程式をリアルタイムで解く集積アナログコンピュータ」と言い換えてもよい。次章では反応回路と拡散回路の構成方法を説明する。

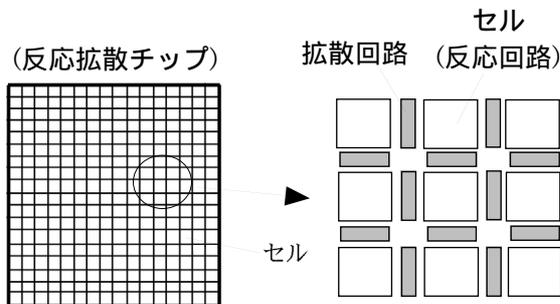


図6 反応拡散チップの構成概念

3. アナログ回路による反応拡散の模倣

3.1 反応キネティクスの模倣（反応回路）

反応キネティクスを模擬する反応回路は次のように構成する。ここではプリセレータの反応キネティクス（図1(c)）を例として、反応回路の構成方法を説明する（図7）。

今の場合は二つの変数、すなわち中間生成物の規格化濃度 (x , y) を考えればよい。そこで図7(a) のように一つのセルあたり2個のキャパシタ C を用意し、各キャパシタに蓄積されている電荷を濃度に対応させる。あるいは図示のように、電荷に比例する量 - キャパシタ電圧を濃度 (x , y) に対応させる。

次に図7(b) のようなアナログ乗算器 M を用意する（その回路構成は次章）。この乗算器は電流 I_{in} と電圧 V_{in} を入力として、これらの積 $V_{in} \times I_{in}$ に対応する電圧を出力する（吐き出し出力と吸い込み出力を発生）。このアナログ乗算器 M を図7(a) のように組合せて図1(b) 式の右辺に相当する電流をつくり、その電流でキャパシタ C を充放電する。この電流が物質濃度の変化量に対応し、キャパシタの電圧が中間生成物の濃度 (x , y) に対応する。バイアス電流（図7(a)の a , b , 1 ）によって初期物質の濃度を表す。（実際の回路では単位の問題があるので後述のスケールアップ操作が必要。）

以上の構成法によって、任意の化学反応系に対応する反応回路を構成することができる。プリセレータとは別の例として、グレイ・スコットモデルの反応キネティクスを発生する反応回路を図8に示した。

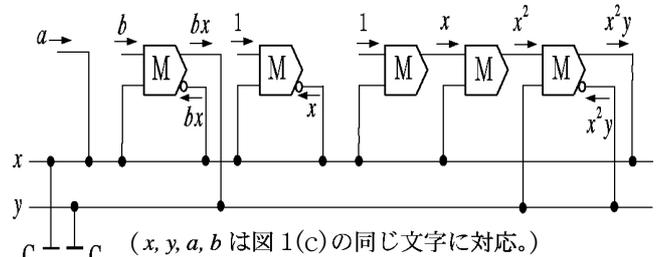


図7(a) (x, y, a, b は図1(c)の同じ文字に対応。)

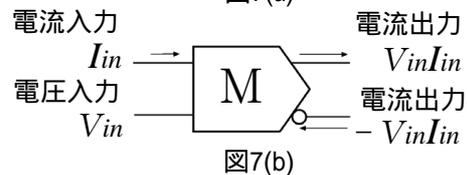


図7(b)

図7 反応回路の構成方法

- (a) プリセレータ回路の構成
- (b) アナログ乗算器の動作

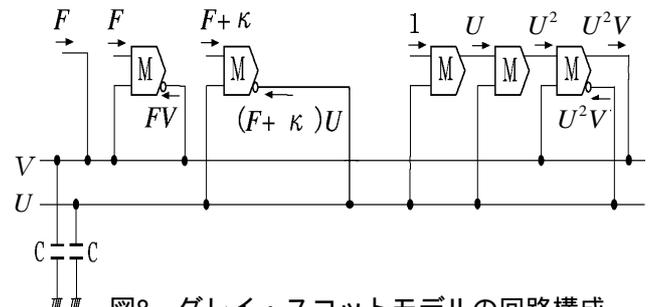


図8 グレイ・スコットモデルの回路構成

3.2 拡散現象の模擬（拡散回路）

同じアナログ乗算器を用いて、化学物質の拡散を模擬する回路をつくることことができる。この拡散回路は図9のように構成する。すなわち各セルの反応回路にあるキャパシタの電圧（物質濃度に対応）に比例する電流をそのキャパシタから吸い出して隣接する四つのセルのキャパシタに流し込む。それによって隣接セル間の電圧差（物質濃度の差）に比例する正味電流（物質の流れ）を発生させて拡散効果を模倣する。反応拡散系のセル間の距離（セル周期）を単位長さとして拡散方程式を差分化したことに相当する。セルのバイアス電流（図中の I_d ）によって拡散定数の大きさを定める（正しくは 物質の拡散定数 / セル周期の2乗が I_d に相当）。

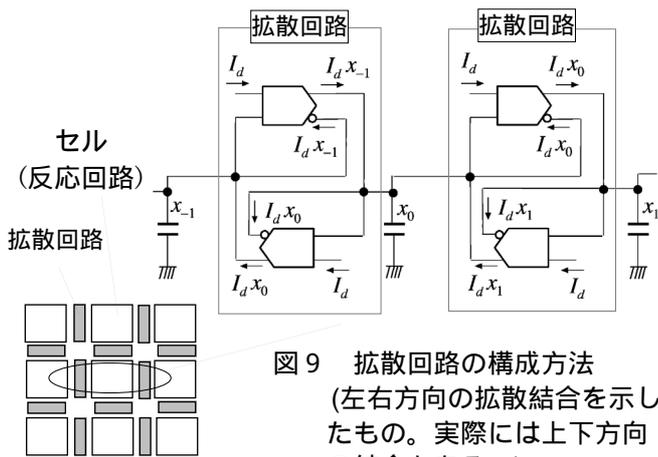


図9 拡散回路の構成方法
(左右方向の拡散結合を示した
もの。実際には上下方向
の結合もある。)

4. 乗算器の回路構成

前章で述べたように、アナログ形の反応拡散チップは乗算器だけで全体を構成できる。ただし多くの乗算器を必要とする。たとえばブリュセレータでは、セルあたり反応回路に5個、拡散回路に8個の乗算器が必要となる。そこでコンパクトかつ低電力の乗算器の設計が不可欠である。

ここでは図10(a)に示す乗算器を提案する。コンパクトな回路構成を第一目標においた。この乗算器は乗算ブロックと出力ブロックからなる。乗算ブロックは入力電流 I_{in} を受け、電流ミラー回路 (M1, M2) で同値の電流を発生して差動回路 (M3, M4) の駆動電流とする。差動回路で入力電圧 V_{in} に比例する電流出力を発生する。すなわち差動負荷M5とM6の電流 I_5 と I_6 の差 ($I_5 - I_6$) が V_{in} に比例する。この差動電流を電流ミラー (M5とM7, およびM6とM8) で取り出して負荷 (M9, M10) に与える。負荷も電流ミラー回路なので、差動電流 ($I_5 - I_6$) に等しい出力電流 I_{out} を吐き出す。この出力電流は I_{in} と V_{in} の積に比例する (V_{in} が小さい範囲で)。

乗算ブロックのあとに出力ブロックを接続する。出力ブロックも電流ミラー回路であり、乗算ブロックが吐き出した電流 I_{out} と同値の電流を吐き出すとともに、同じ値の電流を吸い込む動作も行う。したがって入力電圧 V_{in} に比例する吐き出し電流出力と吸い込み電流出力を同時に発生できる。この乗算器の動作は一象限形であり、入力電圧 V_{in} が負のときには出力電流はゼロとなる。

乗算器が正しい乗算特性を示すためには、差動回路の電流 ($I_5 - I_6$) が入力電圧 V_{in} に比例している必要がある。そのための条件は $V_{in} < (I_{in} / \beta) / 2$ であり (β はMOSトランジスタの利得定数)、 $I_{in} = 1 \sim 10 \mu A$ のとき V_{in} の入力ダイナミックレンジは $50 \sim 150 mV$ になる。

この乗算器には電流ミラーを多く使用する。MOSトランジスタのチャネル長変調効果が大きいときには、図10(b)のようにカスコード接続のミラー回路を用いて特性を改善する。

乗算器の出力特性をシミュレーションして図10(c)に示す。計算には $0.6 \mu m$ -CMOSデバイスパラメータを用いた。電流ミラーにはカスコード接続の回路を使用した。この例では、入力電圧のダイナミックレンジはおよそ $100 mV$ である。厳密な乗算特性とはいえないが、回路構成の単純化を旨とした設計なのでやむを得ない。なお拡散回路を構成するとき、乗算器の差動トランジスタ (M3, M4) にそれぞれ左右セル (上下セル) からの入力を与えて二象限形の動作にすることもできる。多少の付加回路が必要となるが、拡散回路の乗算器を半分の個数に減らすことができる (ここでは説明を省略)。

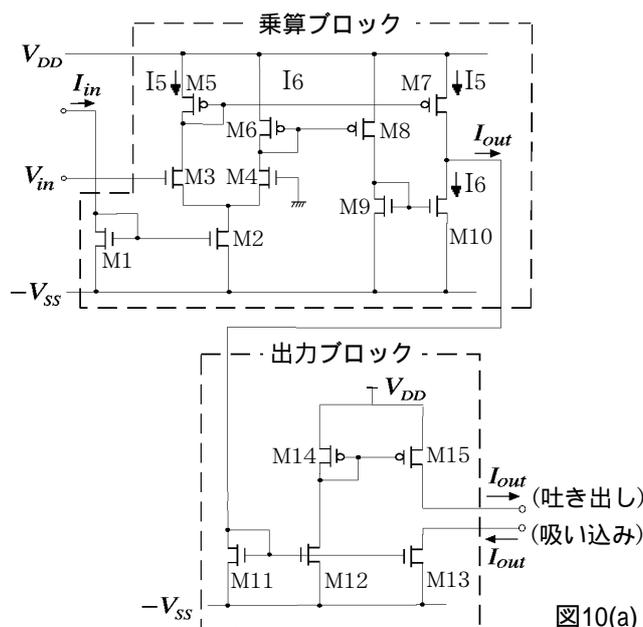


図10(a)

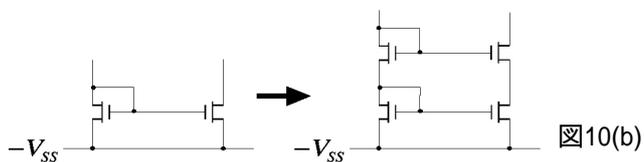


図10(b)

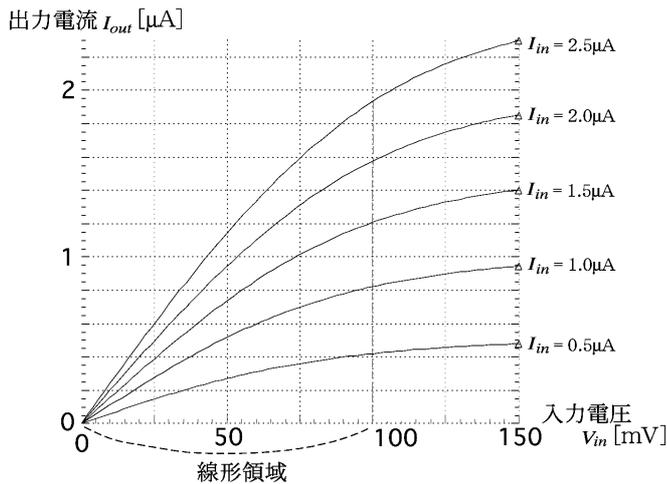


図10(c)

図10 アナログ乗算器

(a) 回路の構成

(b) 電流ミラーのカスコード化 (pチャネル MOSミラー回路の場合も同様)

(c) 乗算特性 (シミュレーション)

5. ブリュセレータ回路の設計

5.1 スケーリング

上記の乗算器を用いてブリュセレータの反応キネティクス (図1(c)) を回路化する。そのとき次の2点に注意する必要がある。

(1) 物質濃度などの変数を電圧や電流で表すので、反応キネティクスの微分方程式を相似するためには単位量の変換が必要となる。

(2) 乗算器に入力される電圧信号の変動範囲を乗算器の入力ダイナミックレンジに収める必要がある。

以上の2点を満たすために各変数のスケール変換を行う。この操作をスケーリングと呼び、物理現象を電子回路で相似するときに必要な。以下において、ブリュセレータ回路を設計するときのスケーリングを説明する。

いま乗算器の入力電圧ダイナミックレンジを V_0 とおき、入力電圧を $x_1 \times V_0$ で表す (図11(a))。 x_1 は無次元の変数であり、正しい乗算特性は $x_1 < 1$ の範囲で得られる。入力電流を I_{in} として、出力電流は $k \times x_1 \times I_{in}$ で与えられるとする (図11(b))。この k は無次元の乗算係数であり、図10(a)の中の電流ミラー回路

(M1, M2) のミラー比で決まる。トランジスタ M2 のゲート幅を M1 のゲート幅よりも大きくとれば k の値が大きくなる。

上の表現法にもとづいて図7(a)のブリュセレータ回路の変数を書き直して図12に示す。図中の x_1 と y_1 は電圧の大きさを表す無次元の変数である (電圧 $x_1 V_0$ と $y_1 V_0$ は中間生成物の濃度に対応)。 I_0 は単位電流、 a_1 と b_1 は電流の大きさを表す無次元のパラメータである (電流 $a_1 I_0$ と $b_1 I_0$ は初期物質の濃度に対応)。

ブリュセレータの回路化におけるスケーリング操作を図13に示す。はじめにブリュセレータの反応キネティクス (図13の式(1)) における変数 x と y および時間 t を次のように新しい変数 x_1 と y_1 に置き換える。

$$x = \alpha x_1, y = \alpha y_1, t = \tau t_1$$

このとき x_1 と y_1 の変化範囲が $x_1 < 1, y_1 < 1$ となるように係数 α の値を設定する。この x_1 と y_1 を使って書き直した反応キネティクス (図13の式(2)) と回路動作 (図13の式(3)) とが同一となるように各種パラメータを決める。すなわち図13の式(4)のように a_1, b_1, k を設定すればよい。このとき同時に時間もスケーリングされる。

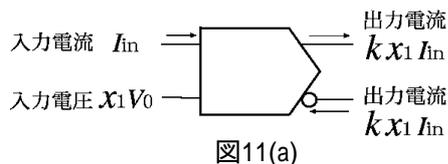


図11(a)

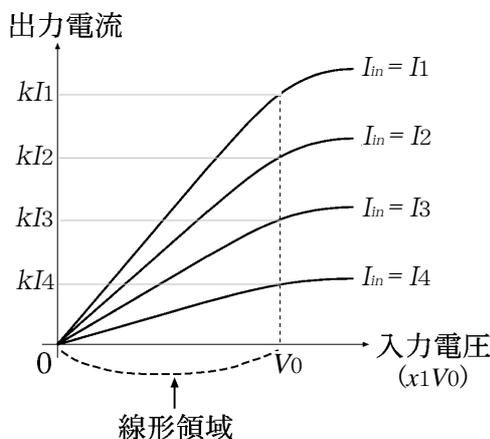


図11(b)

図11 乗算器の入出力関係

(a) 入出力変数の表現

(b) 入力電圧と出力電流の関係

(I_{in} をパラメータとしたもの)

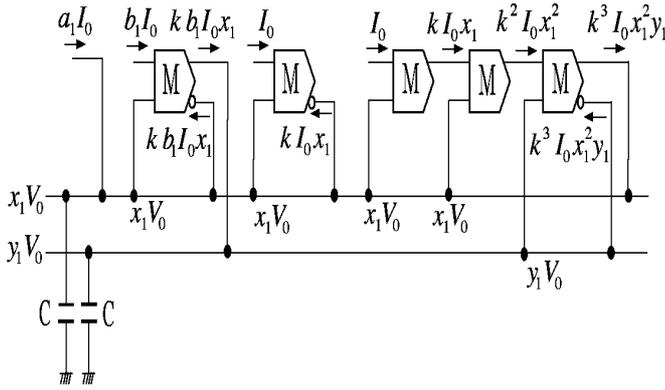


図 1 2 ブリュセレータ回路における変数の表現

ブリュセレータの反応キネティクス

$$\left. \begin{aligned} \frac{dx}{dt} &= a - (b+1)x + x^2 y \\ \frac{dy}{dt} &= bx - x^2 y \end{aligned} \right\} (1)$$

↓
 $x = \alpha x_1, y = \alpha y_1, t = \tau t_1$ とおく。
 は無次元、 τ は時間の逆数の単位をもつ。
 $x_1 < 1, y_1 < 1$ となるように α を定める。

$$\left. \begin{aligned} \frac{\alpha dx_1}{\tau dt_1} &= a - (b+1)\alpha x_1 + \alpha^3 x_1^2 y_1 \\ \frac{\alpha dy_1}{\tau dt_1} &= b\alpha x_1 - \alpha^3 x_1^2 y_1 \end{aligned} \right\} (2)$$

式(2)と式(3)を等しくするためには

$$\left. \begin{aligned} a_1 &= a \\ b_1 &= b \\ k &= \alpha \\ \tau &= \frac{kI_0}{CV_0} \end{aligned} \right\} (4)$$

ブリュセレータ回路(図12)の動作方程式

$$\left. \begin{aligned} CV_0 \frac{dx_1}{dt_1} &= I_0 [a_1 - k(b_1 + 1)x_1 + k^3 x_1^2 y_1] \\ CV_0 \frac{dy_1}{dt_1} &= I_0 [kb_1 x_1 - k^3 x_1^2 y_1] \end{aligned} \right\} (3)$$

図 1 3 ブリュセレータ回路のスケーリング操作

5.2 反応回路の動作

設計したブリュセレータ回路の動作をシミュレーション上で確認した。初期物質の濃度に対応するバイアス電流を変えると、リミットサイクルと減衰振動とが入り替わる分岐現象が生じる。なお、前記のように乗算器の特性が完全ではないので、実際の回路では変数の1次項の乗算器と3次項の乗算器との間で基準電流を変える必要があった。

リミットサイクルが生じる条件での動作例を相平面(中間生成物の濃度に対応する電圧 $x_1 V_0$ と電圧 $y_1 V_0$ の平面)に記述して図 1 4 に示す(3次項の乗算器の基準電流を I_0' と記す)。初期値にかかわらず同一のリミットサイクルに巻き込まれる様子が示されている。

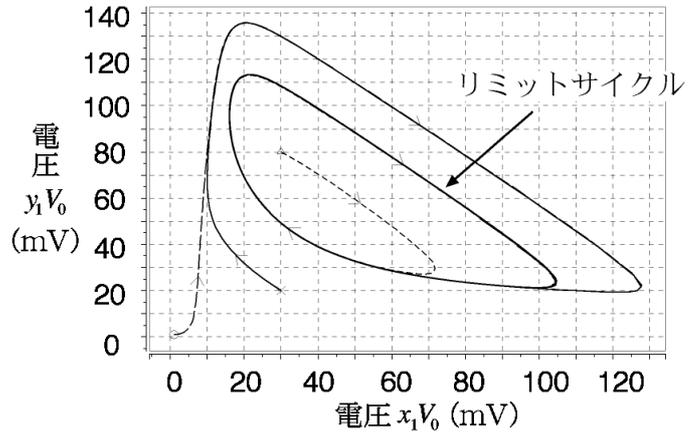


図 1 4 リミットサイクルの動作 (シミュレーション)
 $(a_1 = 1.8 \times 10^{-1}, b_1 = 3.0, I_0 = 2.7 \times 10^1 \text{ nA}, I_0' = 1.7 \mu\text{A}, k = 9.0 \times 10^{-1})$

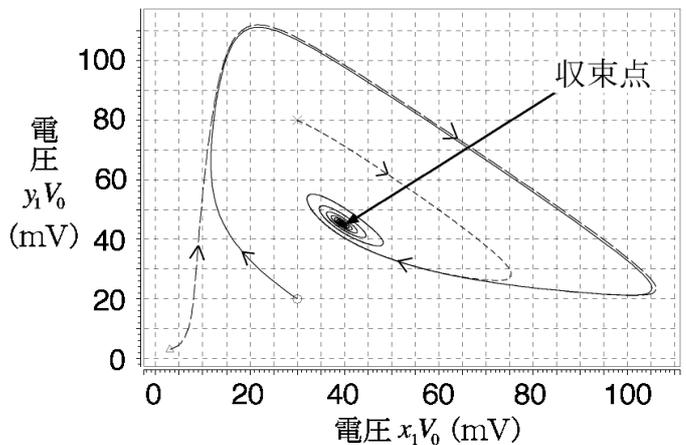


図 1 5 減衰振動と固定点への収束 (シミュレーション)
 $(a_1 = 2.0 \times 10^{-1}, b_1 = 3.0, I_0 = 2.7 \times 10^1 \text{ nA}, I_0' = 1.7 \mu\text{A}, k = 9.0 \times 10^{-1})$

減衰振動が生じる条件での動作例を図 1 5 に記す。任意の初期状態から始めて、時間経過とともに回路状態が相平面上の固定点に収束していく。

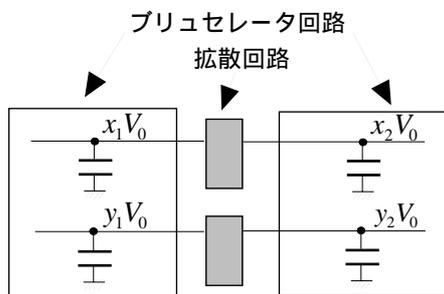


図 1 6 設計した結合ブリュセレータ系

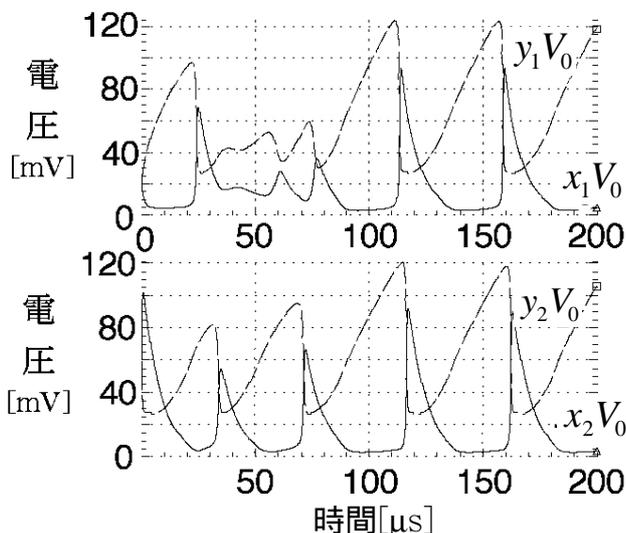


図 1 7 結合ブリュセレータ系の引き込み現象
($a_1 = 4.0 \times 10^{-1}$, $b_1 = 7.0$, $I_0 = 1.0 \times 10^{-1} \mu\text{A}$,
 $I_0^* = 2.0 \mu\text{A}$, $k = 4.2$)

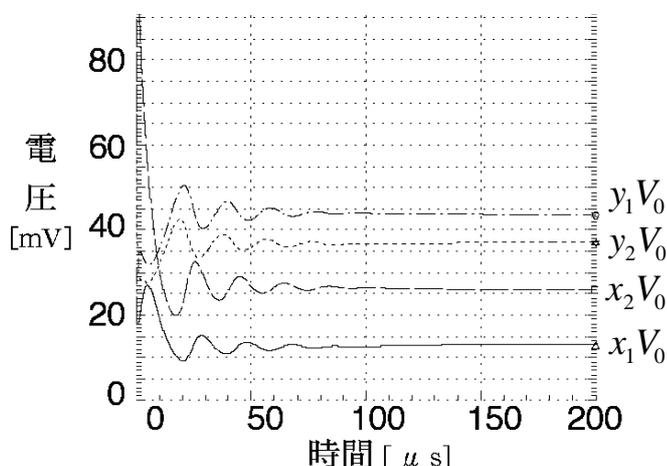


図 1 8 非一様定常状態への収束
($a_1 = 4.0 \times 10^{-1}$, $b_1 = 7.0$, $I_0 = 1.0 \times 10^{-1} \mu\text{A}$,
 $I_0^* = 2.0 \mu\text{A}$, $k = 4.2$)

6.3 拡散回路の動作

拡散回路の動作をみるため、二つのブリュセレータ回路を拡散回路で接続した系を設計した(図 1 6)。この結合系では、回路条件に応じて引き込み現象や非一様定常状態などが発生する。引き込み動作の一例を図 1 7 に示し、非一様定常状態に収束する例を図 1 8 に挙げる。

6. おわりに

本稿では、反応拡散チップの開発に向けて、反応拡散系のダイナミクスを模倣するアナログ電子回路の設計手法を提案した。化学反応の多くは、乗算器を組合せたアナログ回路によって相似できる。拡散現象も同様である。具体例として、ブリュセレータの反応キネティクスを模倣する反応回路、および拡散現象を模倣する拡散回路を設計した。さらにこれらの回路の動作をシミュレーション上で確認した。

アナログ電子回路を用いると、既存の反応拡散系を模倣するだけでなく、自然には存在しないパラメータ数値や、天然には発生できない反応拡散現象を創り出すことが可能である。それによって、機能的な情報処理やインテリジェントセンサなど新しい応用分野を展開させることができると考える。

(文献) 反応拡散系が生み出す現象についての解説書を二三あげる。

(1) G. Nicolis and I. Prigogine, "Self-organization in nonequilibrium systems---from dissipative structures to order through fluctuations," John Wiley & Sons (1977) (訳書「散逸構造---自己秩序形成の物理学的基礎」岩波書店)

(2) H. Haken, "Synergetics---an introduction, nonequilibrium phase transition and self-organization in physics, chemistry and biology," Springer-Verlag (1978) (訳書「協同現象の数理--物理・生物・化学的系における自律形成」東海大学出版)

(3) 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)