報 文

微小重力下における液中微粒子のレーザー光泳動測定法

玉川 美典*, 文珠四郎秀昭*, 渡 會 仁®*

Measurement of laser-photophoresis of a single microparticle dispersed in a liquid under microgravity

Minori TAMAGAWA, Hideaki MONJUSHIRO and Hitoshi WATARAI*

*Department of Chemistry, Graduate School of Science, Osaka University, 1-1, Machikaneyama-machi, Toyonaka-shi, Osaka 560-0043

(Received 30 April 2002, Accepted 6 July 2002)

Laser-photophoresis is a new technique which can be used to characterize and separate microparticles in a liquid or gas. We developed an experimental apparatus to measure the photophoretic velocity of microparticles in a liquid under a microgravity condition. The apparatus was composed of a cw Nd: YAG laser (532 nm), a microscope, a CCD system, and a remote controlled sample stage and was set in a capsule which was used for a free-fall experiment. All of the experimental operations were made externally using a personal computer. The photophoretic behavior of micrometer-sized carbon particles dispersed in water were observed by using the apparatus under microgravity. A precise determination of the photophoretic velocity was achieved under a microgravity experiment because both the density difference between the carbon and water and the natural convection due to heat generation on the laser irradiation disturb a measurement of the photophoretic velocity. The photophoretic efficiency of the carbon microparticle was derived from the observed velocity and compared to those for transparent microparticles. It has been elucidated that the photophoretic efficiency of the carbon microparticle is much greater than those of transparent microparticles, such as polystyrene spheres. Also, the photophoretic behavior of the carbon microparticles under normal gravity was examined and compared to that observed under microgravity. The effect of natural convection on the photophoretic velocity under the normal gravity condition was revealed.

Keywords : radiation pressure; microgravity; photophoresis; continuous wave laser; spherical particle.

1 緒 言

溶液中の微粒子の分離やキャラクタリゼーションは、分析化学、環境化学、生物学等の分野において重要な研究対象となっており、様々な外部場が微粒子の泳動分析法の駆動力として提案されている¹⁾。例えば、重力や遠心力を利用したフィールドフローフラクシオネーション²⁾や遠心分離³⁾、電場勾配を利用した誘電泳動^{4)~6)}、また磁力を利用した磁気泳動^{7)~9)}などがある。

最近著者らは、新しい泳動分析法として、光のふく(輻射圧)による散乱力を駆動力としたレーザー光泳動法を考案した。これまでに溶液中の有機液滴やポリスチレン粒子の光泳動挙動を観測し、新しい泳動分析法の原理として有望であることを確認している¹⁰⁾¹¹⁾。

この方法を泳動分析法として確立するためには、種々の物性を持つ微粒子の正確な光泳動速度を求め、微粒子の物性との相関性を明らかにすることが不可欠である。しかし、目的とする粒子と媒体の密度が大きく異なる場合、通常重力下では粒子に働く重力を無視することができないため、粒子の泳動挙動を観測することが困難である。また、

* 大阪大学大学院理学研究科: 560-0043 大阪府豊中市待兼山町 1-1

レーザー照射に伴う熱の発生による媒体の対流も、泳動挙動に影響すると考えられる。

微小重力環境を利用すると、粒子に働く重力や対流を排除することができるため、正確な泳動挙動を観測することができると考えられる。

そこで本研究では、微小重力環境で実験可能な光泳動観測装置を製作し、これを用いて水中の炭素微粒子の正確な光泳動挙動を観測することを目的とし、実験を行った。また、通常重力下での実験も併せて行い、この結果と微小重力下での実験結果を比較することにより、光泳動挙動に及ぼす重力や対流の影響について検討した。

2 理 論

ガウシアン形レーザー光の中心にある溶液中の球状粒子にレーザーが照射されると、輻射圧による力がレーザーの照射方向と同じ向きにかかる。この力 F_p は次のように表される^{11)~13)}。

$$F_p = \frac{2Pnr^2}{c\omega^2} Q \quad (1)$$

ここで、 P はレーザーの強度、 n は媒体の屈折率、 r は粒子の半径、 c は真空中の光速、 ω は試料位置でのレーザーの半径、 Q は粒子に照射された光の運動量が力に変換される効率を表したもので光泳動効率と呼ばれる。平行光が完全吸収体、又は完全反射体の球状粒子に照射された場合、 Q は 1 に等しくなる。

粒子が輻射圧による力を受けて媒体中を速度 v で泳動すると、逆向きに媒体から粘性抵抗力を受ける。この力 F_R は固体微粒子に働くとき、次のように表される。

$$F_R = 6\pi\eta rv \quad (2)$$

ここで、 η は媒体の粘度である。

本研究の実験系では、セル底面に沈降した粒子又は沈降中の粒子に下方からレーザーを照射して実験を行っているため、重力下で粒子が泳動する場合には、更に重力による力を考える必要がある。重力下で粒子が上方に光泳動するとき、粒子には重力と浮力が働く。粒子の密度を ρ_s 、媒体の密度 ρ_f 、粒子の重量 m とすると、浮力 F_b は次のように表される。

$$F_b = mg \frac{\rho_f}{\rho_s} \quad (3)$$

ここで、 g は重力加速度である。

よって重力下では、次のような力の関係が成り立つ。

$$F_p + F_b = mg + F_R \quad (4)$$

Fig. 1 Experimental setup for the measurement of photophoretic velocity under microgravity

このとき微粒子は次のような光泳動速度で泳動する。

$$v = \frac{nPrQ}{3\pi c\omega^2\eta} + \frac{2r^2(\rho_f - \rho_s)}{9\eta} \quad (5)$$

また、重力の影響がない微小重力下では、重力と浮力が働かないため、輻射圧による力と粘性抵抗力の二つの力のみが釣り合い、定常状態となり、次のように表される光泳動速度で泳動する。

$$v = \frac{nPrQ}{3\pi c\omega^2\eta} \quad (6)$$

3 実 験

微小重力を利用した実験は、岐阜県の日本無重量総合研究所 (MGLAB) で行った。MGLAB は落下型無重力実験施設で、1 回の落下により $10^{-5} g$ の微小重力環境が 4.5 秒間得られる。

Fig. 1 に実験に用いた装置の概略図を示す。実験装置は振動などの影響を抑えるため小型の光学ボードに固定し、装置全体を落下用カプセル内に設置した。Fig. 2 は落下用カプセルに設置後の実験装置の写真である。また、カプセル外部からのコマンド操作による試料の位置合わせ、顕微鏡の焦点合わせ、シャッターの開閉の制御は、自作のコントローラとノート型パーソナルコンピュータ (日本電気, 9821Nr13) を用いて行った。

照射レーザーとして、波長 532 nm、最大出力 200 mW の連続波 Nd:YAG レーザー (昭和オプトロニクス製, JUNO532-100L, TEM₀₀ mode) を用いた。ビーム径を絞るために使用した集光レンズは焦点距離が 2 cm のもので、ビームの集光角は 0.9° である。試料位置でのビーム半径は 60 μm であった。

Fig. 2 Photograph of the experimental setup fabricated in capsule

サンプルとして用いた炭素微粒子は日本カーボン製で、直径 $14\text{ }\mu\text{m}$ であった。炭素微粒子の密度は比重瓶を使用して測定を行った結果、 $\rho_s = 1.3\text{ g cm}^{-3}$ であった。

界面活性剤 (Triton-X100) を 0.01% 含む超純水にサンプルを分散させた溶液を、円筒形石英キャピラリー ($0.5\text{ mm}\phi \times 40\text{ mm}$) に導入し、密封した。粒子の泳動挙動を観測しやすくするため、キャピラリーを蛍光セルに入れ、スペーサーを挿入後、そのすき間に水を充填させ、その後密封した。これを水平に設置し、キャピラリー底面に沈降した微粒子にレーザーを下方から照射し、粒子の上方への泳動挙動を観測した。泳動挙動は CCD カメラ (エルモ製, OV100) 付き顕微鏡 (三豊製, M Plan Apo 10, 対物レンズ 10 倍) で観測し、デジタルビデオカメラ (ソニー製, DCR-TRV20) で録画した。ビデオ画像を動画としてパーソナルコンピュータに取り込み、動画ファイルに変換した。それを 1 コマおき (1/30 秒間隔) の静止画に分割し、画像解析ソフト (Image J ver.1.22)¹⁴⁾ を用いて各微粒子の座標を求め、泳動速度を解析した。

また、微小重力下での泳動挙動と比較するため、通常重力下においても同一実験装置を用いて実験を行った。

4 結果及び考察

微小重力下において、水中に分散させた炭素微粒子がレーザー光の照射方向に泳動する様子が観測できた。

Fig. 3, a に微小重力下における炭素微粒子の泳動挙動を示した。これは炭素微粒子が上方に泳動した様子で、1 秒おきの画像を重ね合わせたものである。Fig. 3, b は通常重力下での炭素微粒子の泳動挙動で、同様に 1 秒おきの画像を重ね合わせたものである。これらの画像を比較すると、微小重力下での泳動速度が通常重力下の泳動速度に比べて大きいことが分かる。

Fig. 4 は、微小重力下及び通常重力下における炭素微粒

Fig. 3 Photophoretic behavior of the carbon micro-particle in water

split movie: 1 pictures per second; (a) under microgravity, (b) under normal gravity; The diameter of the particle is $14\text{ }\mu\text{m}$ and the laser power is 140 mW.

Fig. 4 Dependence of photophoretic velocity upon the particle position for the carbon micro-particle in water

●: under microgravity, ○: under normal gravity; The diameter of the particle is $14\text{ }\mu\text{m}$ and the laser power is 140 mW.

子の、キャピラリー底面からの距離に対する光泳動速度の依存性を表したものである。ここで泳動方向を x 方向とした。光泳動速度は、共にキャピラリー底面と上面付近で減少していた。これはキャピラリー壁による見掛けの粘度の増大による影響¹⁵⁾¹⁶⁾であると考えられる。しかし、本研究では円筒形キャピラリーを使用したため、キャピラリーの中央付近では壁面の影響は無視できると考えられる。

微小重力下では重力や対流の影響を無視することができ、またキャピラリー中央部では壁の影響もないので、等速運動を行っているときの速度は正確な光泳動速度であると言える。Fig. 4 から、微小重力下における直径 $14\text{ }\mu\text{m}$

の炭素微粒子のキャピラリー中央付近での光泳動速度は、 $v = 98 \mu\text{m s}^{-1}$ となった。この値を用いて式(6)より光泳動効率 Q を求めると、 $Q = 0.63$ が得られた。このとき媒体の粘度は $\eta = 0.81 \times 10^{-3} \text{ Pas}$ 、屈折率は $n = 1.33$ とした。この光泳動効率は、これまでに得られている光吸収性のない有機液滴 ($Q = 0.0199 \sim 0.102$) やポリスチレン ($Q = 0.133$) の値と比較して4倍以上大きい¹⁰⁾¹¹⁾。この理由としては、炭素微粒子は有機液滴やポリスチレンに比べて光吸収率が高いため、同じ量の光を受けたとき、輻射圧として得られる力が大きいためと考えられる。

また、Fig. 3 に示した微小重力下での泳動挙動を通常重力下での泳動挙動と比較すると、微小重力下ではキャピラリーの中央付近で泳動速度が一定値になっているのに対し、通常重力下では一定速度とならず、キャピラリー中央部で最大値を持つ挙動を示すことが分かる。このことは、炭素微粒子が光を吸収するため、レーザーの照射により熱を発生し、通常重力下では媒体の温度勾配による対流が生じたことが原因であると考えられる。

実際に微小重力下で実験的に得られた泳動効率の値 ($Q = 0.63$) を式(5)に代入して、通常重力下での泳動速度を予想すると、 $54 \mu\text{m s}^{-1}$ となった。ここで媒体の密度は $\rho_f = 1.0 \text{ g cm}^{-3}$ とした。一方、観測された泳動速度の最大値は $83 \mu\text{m s}^{-1}$ であった。この二つの泳動速度の差の最大値 $29 \mu\text{m s}^{-1}$ が、媒体の対流の影響による速度の増大分であると考えられる。また、これは微粒子の周囲 (半径 $100 \mu\text{m}$) の温度が 3°C 上昇することにより、密度の減少 ($1.1 \times 10^{-3} \text{ g/cm}^{-3}$) が起こり、これにより浮力が生じたとしても説明しうるものである。

本研究で製作した光泳動観測装置を用いることで、微小重力下における光泳動速度の測定が可能となり、重力や対流の影響のない状況での微粒子の光泳動挙動を初めて観測

することができた。このことから、微小重力環境を利用することにより、更に密度差の大きい溶媒と粒子の実験系においても実験が可能であり、様々な実験系での光泳動挙動を観測できる可能性が示された。

本研究は(財)日本宇宙フォーラムが推進している「宇宙環境利用に関する地上研究公募」の一環として行った。また、炭素微粒子は日本カーボン(株)よりご提供いただいたものである。

文 献

- 1) J. C. Giddings: "Unified Separation Science", (1991), (John Wiley & Sons, New York).
- 2) W. S. Kim, D. W. Lee: *Anal. Chem.*, **74**, 848 (2002).
- 3) E. M. Verdurmen, J. G. Albers, A. L. German: *Colloid Polym. Sci.*, **272**, 57 (1994).
- 4) S. Tsukahara, T. Sakamoto, H. Watarai: *Langmuir*, **16**, 3866 (2000).
- 5) H. Watarai, T. Sakamoto, S. Tsukahara: *Langmuir*, **13**, 2417 (1997).
- 6) H. Morgan, M. P. Hughes, N. G. Green: *Biophys. J.*, **77**, 516 (1999).
- 7) M. Suwa, H. Watarai: *Anal. Chem.*, **73**, 5214 (2001).
- 8) V. Tchikov, S. Schutze, M. Kronke: *J. Magn. Magn. Mater.*, **194**, 242 (1999).
- 9) Y. Haik, V. Pai, C. J. Chen: *J. Magn. Magn. Mater.*, **194**, 254 (1999).
- 10) H. Monjushiro, A. Hirai, H. Watarai: *Langmuir*, **16**, 8539 (2000).
- 11) A. Hirai, H. Monjushiro, H. Watarai: *Langmuir*, **12**, 5570 (1996).
- 12) A. Ashkin: *Biophys. J.*, **61**, 569 (1992).
- 13) A. Ashkin: *Phys. Rev. Lett.*, **24**, 156 (1970).
- 14) Image J ver.1.22 is the on-line software. This program is available at the web-site; <http://rsb.info.nih.gov/ij/>
- 15) J. Happel, H. Brenner: "Low Reynolds Number Hydrodynamics", (1983), (Kluwer Academic, Boston).
- 16) K. Svoboda, S. M. Block: *Annu. Rev. Biophys. Biomol. Struct.*, **23**, 247 (1994).

要 旨

レーザー光泳動法は光の輻射圧による散乱力を駆動力とした泳動分析法で、溶液中の微粒子の分離やキャラクタリゼーションに有効である。本研究では、円筒形キャピラリー (内径 $500 \mu\text{m}$) を泳動セルとし、波長 532 nm の連続波 Nd:YAG レーザーを光源とする落下型無重力実験施設においても使用できるレーザー光泳動速度の測定装置を製作した。水中に炭素微粒子を分散させた溶液を、円筒形キャピラリーに導入し、微粒子にレーザーを下方から照射することで、微小重力下における粒子の上方への光泳動挙動を観測することができた。この装置を用いることにより、微小重力下における光泳動速度の測定が可能となり、重力や対流の影響のない光泳動挙動を初めて観測することができた。