

微小重力環境下でのコロイド相分離～きぼう実験に向けた予備的検討～

仙波稔己¹⁾、塚本勝男¹⁾、石川正道²⁾

¹⁾東北大学大学院 理学研究科、²⁾理化学研究所

Colloidal Phase Separation under Microgravity: Preliminary experiment toward kibo experiment

Toshiki Senba¹, Katsuo Tsukamoto¹, Masamichi Ishikawa²

¹Graduate school of science, Tohoku University, ²RIKEN

Email: B1SM6022@s.tohoku.ac.jp

Abstract: Colloidal crystals are considered in the application to photonic crystals. The gravitational sedimentation method attracts great attention because of simplicity. Recently it was found that, under gravity, void structure or gas-liquid phase separation occur during colloidal accumulations. These facts suggested the existence of a long-range attractive interaction between particles in spite of their repulsive pair potential. In this research, under micro gravity, we found a sign of the long range attractive interaction by observing Brownian motion of the colloidal particles in the conditions of low particle concentration and low ionic strength.

Key words: Colloidal crystal, Void structure, Phase separation, Micro gravity, Brownian motion

はじめに

コロイド粒子の結晶化はフォトニック結晶への応用が期待される方法であり、特に重力を利用した沈降法はその簡便性から大きな注目を集めている。コロイド結晶の結晶化は斥力相互作用による Kirkwood-Alder 転移によるものであると考えられている。しかしながら、低イオン強度下にあるコロイド分散系に、ボイド構造の生成¹⁾、結晶の格子定数が理論値より小さい²⁾、気液相分離現象³⁾が起こるなど、コロイド粒子間の斥力相互作用のみでは説明がつかない結果が近年報告されている。このような実験事実は、コロイド粒子間に実質的な引力相互作用が働くことを意味しているため、特に重要視され、その事実性について検証がなされている。

重力沈降過程に生じるコロイド相分離現象⁴⁾が報告されている。これは、荷電コロイド粒子がガラスセルに沈降後、平衡状態に達した後に、コロイド粒子が固層、液相、気相に相分離を起こすというものである。気液相分離現象が生じるためには、コロイド粒子間に引力相互作用が働く事が必要となる。

しかしながら、この実験では、荷電コロイドの相分離において重力効果により粒子が常にガラス基板に近接しており、重力が粒子-粒子間あるいは粒子-基板間との間に働く相互作用に影響を及ぼしている可能性を否定できない。そこで、このような影響を排除するため、国際宇宙ステーション“きぼう”を用いたコロイド宇宙実験が計画されている。重力による堆積効果が働かない宇宙環境

での実験により、コロイド粒子間の相互作用がより顕在化する事が期待される。電荷相互作用の有無を明らかにする上で大きな意義がある。

本研究では、コロイド宇宙実験への準備として、コロイド集積のセルの形状依存性（地上実験）および航空機を用いた微小重力環境中でのコロイド集積体の挙動確認から、コロイド粒子間に働く相互作用について検討する。

実験

用いた粒子は、3 μm 直径のポリスチレン粒子（Duke 社製）、密度 1.05 g/cm³ である。Bio-Rad 社製イオン交換樹脂を用いて脱塩したコロイド粒子および未処理の試料を用い、比較した。地上にて、角セル（10 mm×10 mm×47 mm）に 0.015 vol % のコロイド分散液を封入し、24 h 放置した。24 h 放置後の角セルを航空機に設置し、20 s 程度の微小重力環境中で、角セル内のコロイド集積体を垂直方向および水平方向から観察した。観察装置の写真を図 1 に示す。

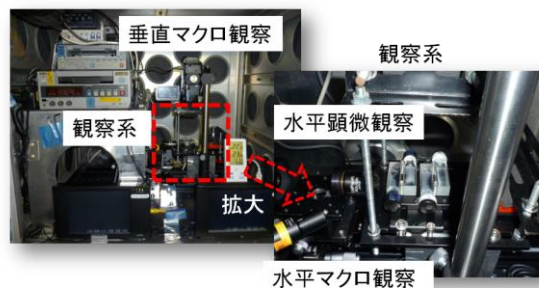


図 1 コロイド集積体観察装置

結果と考察

まず、通常重力化での実験結果について述べる。角セル内に充填された粒子は、底面に沈降したのち 24 時間放置後に集積現象が確認された。脱塩した試料では、集積体に void 構造やシャープな界面が見られた。これらの現象は、未処理試料には見られなかった (図 2)。

次に、微小重力実験の結果を述べる。コロイド集積体は、航空機実験程度の重力変動では集積体が流れるなどの目に見える形状変化をしない事が明らかとなった。水平マクロ観察より、底面に沈降したコロイド粒子の層厚が微小重力中でどのように変化するかを調べた (図 3)。その結果、脱塩試料と未処理試料で層厚の変化に違いがみられた。未処理の試料では一様に粒子が分散した。しかし、脱塩試料では、集積体の中央部が膨張し、左端と右端は収縮した。脱塩および未処理試料で粒子間の相互作用が異なる可能性が見出された。

そこで、脱塩および未処理試料の集積体を水平方向から顕微鏡観察し、微小重力中での個別粒子の重力方向の変位を測定した (図 4)。脱塩、未処理試料の粒子の位置変位の差異はブラウン運動を反映していると思われる。

ブラウン運動の違いを見るために、それぞれの試料について粒子の拡散係数を求めた。粒子の 2 乗平均と一次元の拡散係数は次式で表わされる。

$$\langle r_z(t)^2 \rangle = \langle Z(t)^2 - Z(0)^2 \rangle = 2D_z t \dots (1)$$

ここで、 D_z は一次元の拡散係数、 t は時間変化、 $Z(0)$ は粒子の初期位置、 $Z(t)$ は時間変化後の粒子位置を表わす。

また、ストークス則から求められる自由粒子の拡散係数は次式で表わされる。

$$D_{st} = \frac{kT}{6\pi\eta r} \dots (2)$$

D_{st} はストークス則から求まる拡散係数であり、 k はボルツマン定数、 T は絶対温度、 η は分散媒の粘性係数、 r は粒子の半径である。

(1) 式をグラフに表したものを図 5 に示す。脱塩試料の拡散係数は $0.082 \pm 0.009 (\mu\text{m}^2/\text{s})$ となり、未処理試料は $0.137 \pm 0.012 (\mu\text{m}^2/\text{s})$ となった。一方、

(2) 式から得られる拡散係数はの予測値は $0.14 (\mu\text{m}^2/\text{s})$ である。未処理試料は、ストークス則から得られる拡散係数と良く一致した。脱塩試料と未処理試料の値を比較すると、脱塩試料の方が拡散係数の値が小さい。これは、脱塩試料に引力的な相互作用の存在が見られる事を示唆している。

これは、極めて興味深い結果である。

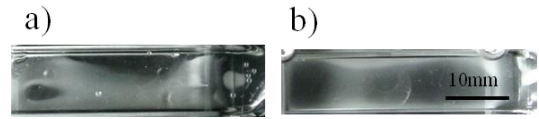


図 2 24h 放置後のコロイド集積体
a)脱塩試料 b)未処理試料
白色部がコロイド集積体。脱塩試料に Void 構造やシャープな界面が存在する。

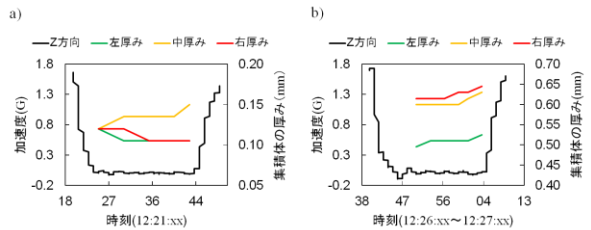


図 3 微小重力中の集積体の厚み変化
a)脱塩試料 b)未処理試料

脱塩試料では、集積体の中央部が膨張し、左端と右端は収縮した。未処理試料は、粒子が一様に分散した。

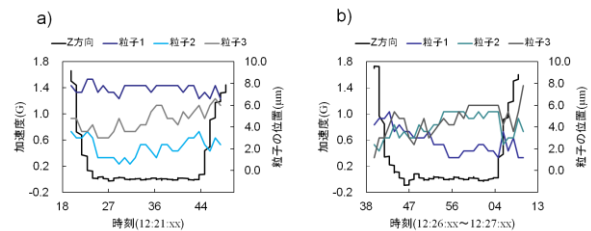


図 4 重力方向の個別粒子の位置変化
a)脱塩試料 b)未処理試料

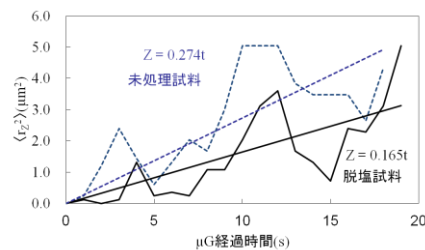


図 5 2 乗平均の時間依存性

参考文献

- 1) K.Ito et al., Science, **263**, 66(1994).
- 2) N.Ise, Proc. Acad., Ser.B **83**, 192(2007).
- 3) B.V.R. Tata and S.S. Jena, Solid State Comm.**139**, 562(2006).
- 4) M. Ishikawa and R. Kitano, Space Utiliz. Res., **25**, 309 (2009).