

氷結晶の振動成長—Ice Crystal 2 実験

古川義純（北大），長嶋剣（北大），中坪俊一（北大），田丸晴香（JAXA），吉崎泉（JAXA），島岡太郎（JSF），曾根武彦（JAMSS），横山悦郎（学習院大）

Oscillatory growth of ice crystal-Ice Crystal 2 Experiment

Yoshinori Furukawa*, Ken Nagashima, Shun-ichi Nakatsubo, Haruka Tamaru, Izumi Yoshizaki, Taro Shimaoka, Takehiko Sone, Etsuro Yokoyama

*Hokkaido Univ., Sapporo 060-0819

E-Mail: frkw@lowtem.hokudai.ac.jp

Abstract: Second experiment for ice crystal growth was carried out in KIBO of ISS in the period from December 2013 to June 2014. In this experiment, growth rates of ice basal faces during the growth in the supercooled water including a small amount of antifreeze glycoprotein (AFGP). The growth rate of the basal face was strongly enhanced by the effect of AFGP molecules. This effect is completely different from the previously known impurity effect for the crystal growth. Furthermore, the growth rate of basal face periodically oscillated. This oscillation is promoted by the interaction between the AFGP adsorption and the diffusion of latent heat released by the ice growth.

Key words; Space experiment, International space station, Ice crystal, Impurity effect, Protein

1. はじめに

国際宇宙ステーション「きぼう」において、氷の結晶成長の実験を行った。この実験は、2008-2009年に実施した一次の氷結晶成長実験(Ice Crystal プロジェクト)¹⁾に引き続くもの(Ice Crystal2 プロジェクト)で、2013年12月から2014年6月までの期間に実施した。本報告では、実験の概要について述べる。

「きぼう」における氷結晶の成長実験では、バルクの過冷却水中での氷結晶の自由成長を行う。最初の実験では、純水中での氷結晶のパターン形成機構の解明を目指すもので、無対流での結晶成長速度やパターン発展の詳細な測定を行った。これに対し、今回の実験では不純物を含む過冷却水中での氷結晶の自由成長実験を行い、氷の結晶成長に対する不純物効果の解明を目指した。

本実験での不純物としては、氷の結晶成長機構を制御することでよく知られた不凍糖タンパク質(Antifreeze Glycoprotein, AFGP)を用いた。このタンパク質は、極地の海氷で覆われた海に住む魚類の血液に含まれ、生体の温度が血液の凍結温度(-0.9℃)以下の過冷却状態になっても、生体の凍結を防ぐ役割を果たしている。AFGP分子は、氷と水の界面に吸着することで、氷結晶の成長カイネティクスに影響を与え、結晶成長速度や結晶のモルフィロジーを大きく変化させることが知られている^{2,3)}。本宇宙実験では、自由成長する氷結晶の成長速度を精密の測定し、成長速度が時間とともにどのような変動をするのかを明らかにし、AFGPに制御された結晶成長機構のメカニズムの解明を目指す。

2. 宇宙実験装置の開発

本宇宙実験を実施するために、「きぼう」に設置されている溶液結晶化観察装置(SCOF)に取り付け可能な新たな実験装置(Ice Cell 2)を開発した。この装置は、氷結晶成長装置部分、および位相差顕微鏡とマイケルソン型干渉顕微鏡とを同軸で組合わせた新しい観察系部分により構成されている。Fig.1は、前者のイラストを示す。直径40mmの球形の成長セルにガラス毛细管を挿入した構造を持つ。ガラス毛细管は、中心軸の周りに±45°の範囲で回転すること

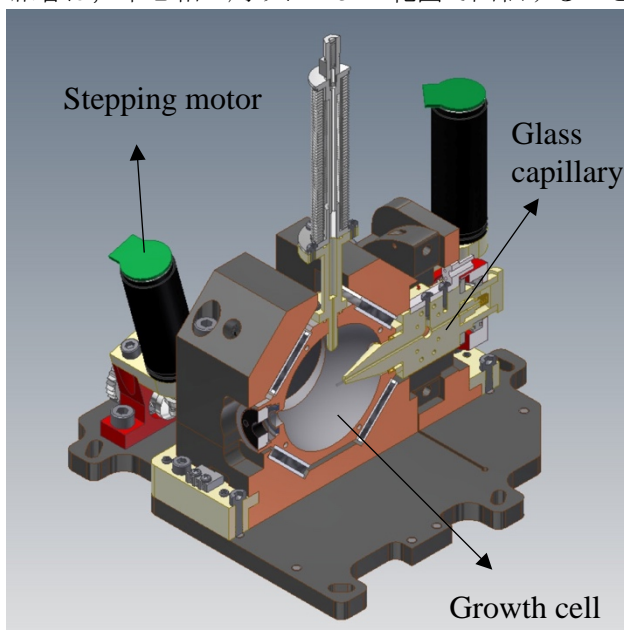


Fig.1 Cross section of an ice growth cell.

ができる。後者は、極めて小さい光反射係数(0.00014)氷/水界面からの微弱な反射光により、十分なコントラストの干渉縞の観察が可能である。また、毛細管を回転することで、そこに先端で成長する氷結晶の界面反射光が入射光と完全に重なるように、結晶の方位を調整することが可能になる。

3. 宇宙実験の方法

今回の宇宙実験では、濃度が 0.07mg/mL の濃度の AFGP 水溶液を試料として使用した。水溶液は、装置の打ち上げ前に成長セルに充填され、打上げ後は交換することはできない。従って、宇宙実験では、AFGP 濃度は固定したままで、氷結晶成長時の過冷却温度のみが可変である。

実験は、地上からコマンドで制御される。最初に、成長セルを冷却し、水溶液を一樣な過冷却状態に保つ。ガラス毛細管の外側の端を急冷することで氷結晶を核生成させると、氷結晶は毛細管内部で成長を開始する。氷結晶が毛細管の端に達すると成長セル内で氷結晶の自由成長が開始する。AFGP の効果により、氷のベーサル面、プリズム面、およびピラミッド面がファセットとして現れる。本実験では、ベーサル面の成長速度を精密測定した。

4. 宇宙実験の成果の概要

実験は、試料水の過冷却度を 0.2K~0.5K の範囲で設定して、全部で 124 回実施した。氷の結晶成長はすべての実験において観察されたが、このうち 24 回の実験でベーサル面上に干渉縞が出現した。実験成功率は約 20%であったが、氷結晶成長方位の制御としては十分に高い確率であったと言える。しかしながら、装置の打上げ後に電源系の不具合が発生し、観察系のうち位相差顕微鏡による観察が困難となり、干渉縞画像のみが取得可能であった。

Fig.2 は、観察された干渉縞の運動を示す動画から

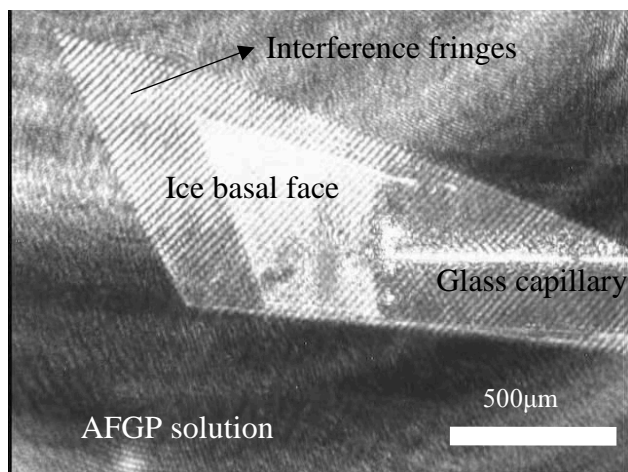


Fig.2 Interference fringes observed on a basal face of ice observed in ISS. Supercooling of AFGP solution was 0.3K. Scale bar indicates 500µm.

切り出したスナップショットである。例である。ベーサル面の上に等間隔の干渉縞が観察され、干渉縞の平行移動が観察された。この動画を解析した結果、氷ベーサル面成長速度が周期的に変動することを見出した。さらに、成長速度の変動幅は極めて大きく、例えば 0.3K の場合に最低速度は 0.18µm/s、最高速度は 0.56µm/s であった。さらに、ベーサル面の最大成長速度は、AFGP の存在しない純水中での成長速度 (0.2 µm/s) の 3 倍程度の大きさとなる。すなわち、不純物として添加した AFGP が氷ベーサル面の成長促進を促していると結論される。

成長速度の促進は、従来から知られている結晶成長の対する不純物効果、すなわち成長速度の抑制効果に全く反するものである。また、結晶の成長速度は、自然対流などの擾乱の効果により変動するものであるため、地上実験では成長速度の周期変動を示す直接的な測定例はこれまで報告されていない。本実験で得られた結晶の振動成長は完全に外的擾乱の排除された環境で観察されたものであり、宇宙実験ならではの成果ともいえよう。

5. まとめ

本宇宙実験似寄り得られた成果は、これまで知られていた結晶成長に対する不純物効果とは、大きく異なる結果であった。この効果は、不純物分子が巨大な分子であるタンパク質であったことが重要な役割を果たしていることは疑いないが、その詳細なメカニズムの解明は今後に残された課題である。

謝辞

本研究は、科学研究費（課題番号 26287095 25600081）によりサポートされた。

参考文献

- 1) Yokoyama, E. *et al.* Measurements of growth rates of an ice crystal from supercooled heavy water under microgravity conditions: basal face growth rate and tip velocity of a dendrite. *J. Phys. Chem. B* **115**, 8739-8745, doi:10.1021/jp110634t (2011)
- 2) Zepeda, S., Yokoyama, E., Uda, Y., Katagiri, C. & Furukawa, Y. In Situ Observation of Antifreeze Glycoprotein Kinetics at the Ice Interface Reveals a Two-Step Reversible Adsorption Mechanism. *Cryst. Growth Des.* **8**, 3666-3672, doi:10.1021/cg800269w (2008).
- 3) Knight, C. A. & DeVries, A. L. Ice growth in supercooled solutions of a biological "antifreeze", AFGP 1-5: an explanation in terms of adsorption rate for the concentration dependence of the freezing point. *PCCP* **11**, 5749-5761, doi:10.1039/B821256B (2009).