

## リゾチーム結晶成長時の界面ダイマー濃度の重力依存性 “研究ワーキンググループ報告”

塚本勝男、山崎 智也、Pan Weichun、三浦 均(東北大・院・理)、橋 勝(横浜市大)、  
吉崎 泉(JAXA)

### Gravity dependence of dimer concentration during crystal growth of lysozyme

K. Tsukamoto, T. Yamazaki, P. Weichun, H. Miura: Grad. School, Science, Tohoku Univ.  
M. Tachibana: International College of Arts and Sciences, Yokohama City Univ.

I. Yoshizaki: ISS Science Project Office, JAXA

E-nail: ktsuka@m.tains.tohoku.ac.jp

Abstract: Growth rate of lysozyme crystals was measured using the step velocity of the crystal during parabolic flight of an aircraft. The step velocity was continuously measured before, during and after the microgravity condition. The step velocity was unexpectedly increased during the microgravity. This behavior, increase of the growth rate, is the same as obtained in the precious FOTON M3 experiments in 2007. It is more important to state that the growth rate during 1.5G after  $\mu$ G period was increased compared to the growth rate during 1.5G before  $\mu$ G period. This was interpreted due to the reduction of dimer molecules which block the movement of the growth steps, onto the crystal surface. Numerical simulation of flows of monomer and dimers in water was performed.

微小重力環境での結晶の成長速度は、対流や流れが阻止されるために桁違いに遅くなるのが一般的に予想されていた。しかし FOTON M3 回収型衛星を利用したリゾチーム結晶成長実験(塚本ら、2007)では、予想に反して約50%までの成長速度の増加が見られることが分かった。この成長速度の増加が一般的なものを調べるために、航空機の微小重力実験を計画したのが2年前のこと。20秒間の微小重力環境で、 $10^{-2}$ nm/s の僅かな成長速度を測定できるかが最大の問題点であった。

この僅かな結晶面の成長速度をとらえる代わりに、結晶表面に現れる単分子の成長ステップの動きを測定することを計画し、ワーキンググループの活動として2年間にわたって航空機実験をおこなってきた。

解決しなければならない最大の問題点は、重力の変化に耐えながら、いかにナノメートルの精度で

成長速度を測るかという技術的な点であった。

昨年度の実験分子ステップの観察には、位相差顕微鏡を使用し、連続撮影は水平解像度 2800 本の超高画質 TV カメラで約 1 秒ごとに撮影した。解

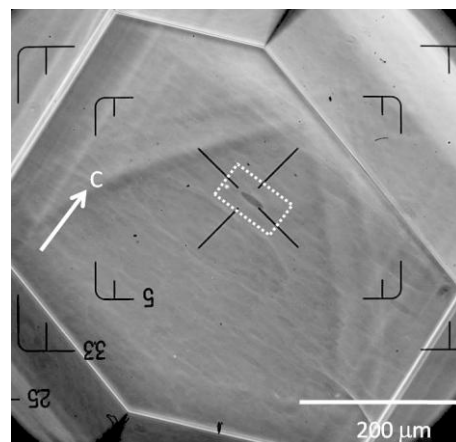
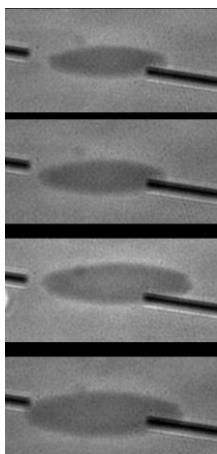


図 1 (a) 微小重力で成長中のリゾチーム結晶表面。枠内は数分子の厚みをもつ 2 次元成長島。

像度は劣る ( ) が、ハイビジョンカメラを利用した撮影も相補的に行った。対物レンズが重力変化で移動しないように、位置をリニアコーダで測定して、変動をピエゾ素子でフィードバック

クさせる高等な技術を使用した。また、顕微鏡のステージは電動アクチュエータで制御した。

リゾチーム結晶(98.5%純度)が微小重力で成長している際の結晶表面を図1(a)に示した。四角く囲った部分の2次元成長島の連続写真を拡大して図1(b)に示す。このようなステップの微小重力での動きが正確にとらえられたのは初めてである。このサイズの時間変化をプ



ロットしたのが図2である。

注目すべき点が2つある。(1)ステップ速度でみた微小重力の成長速度はフォトン実験の場合と同様に速くなった。(2)微小重力を経験した結晶は、微小重力前の速度より速くなった。

2007年のFOTON実験では、不純物として働くダ

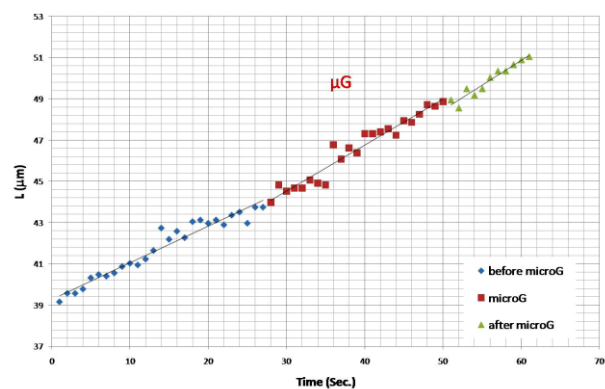


図2 図1の2次元島サイズの時間変化(過飽和度一定)。微小重力でのステップ速度が速いのがわかる。この傾向は一般的。 $\mu G$ 前後は約1.5G。微小重力後の成長速度が速い。

イマーが、微小重力でのフィルター作用によって結晶表面に届きにくくなるため、結晶成長速度が速くなると結論付けた。その考えに基づくと微小重力を経験した結晶表面はクリーンであると考えられる。そこで、どの程度のダイマー濃度の減少があるかを知るために、拡散係数が異なるモノマー、ダイマーの流体的挙動を数値計算した。その結果の一例を図3に示した。

その結果分かったことは、20秒間程度の微小重力では、結晶表面でのダイマー濃度の減少はわずかであり、成長速度の促進には至らないだろう、という点である。

この結論に至った理由は2つ考えられる。一つは、シミュレーション時のメッシュサイズ、特に、ステップ

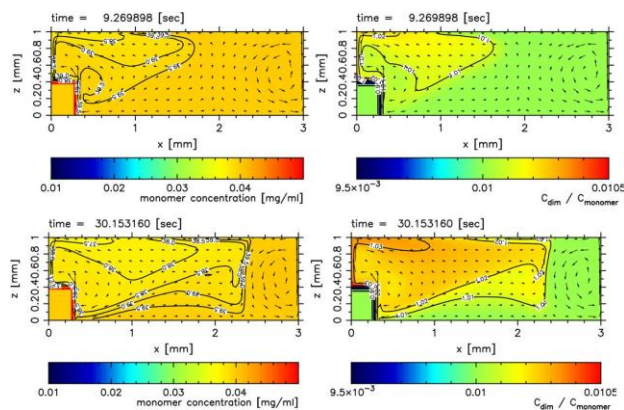


図3 モノマー:左とダイマー:右、濃度分布の発達の一例。各図中の左下に結晶。航空機実験を模擬した重力変化をインプット。

フロント周囲のメッシュサイズが大きすぎるために、濃度が平均化されたという考え、と、まだ考慮していないメカニズムにより、わずかなダイマー濃度の減少でも成長速度が増加するという考えもある。

これらに対して明快な回答を与えるには、ダイマー分子の分配係数を知る必要がある。残念なことに信頼できる実験結果はこれまで2例しか知られておらず、しかも両者の分配係数は1以下と以上に分かれている。つまり、成長にともなって結晶界面近傍での不純物(ダイマー分子)が濃集するのかが減少するのかが現在でも分かっていない。今後、信頼できる分配係数の測定が急務であろう。