

## 煙液滴の光逆泳動速度の光強度依存性

京都大学理学研究科

渡邊俊、吉川研一

岡山量子研究所

岩城貴史

中央大学理工学部物理学科

小平将裕

名古屋文理大学短期大学部食物栄養学科

馬籠信之

### Light intensity dependence of negative photophoretic velocity on smoke droplets

*Shun N. Watanabe and Kenichi Yoshikawa*

Department of Physics, Graduated School of Science, Kyoto University.

Kitashirakawa-Oiwake-cho, Sakyo-ku, Kyoto, 606-8502, Japan

E-Mail: watanabe@chem.scphys.kyoto-u.ac.jp

*Takafumi Iwaki*

Okayama Institute for Quantum Physics, 1-9-1 Kyoyama, Okayama City, 700-0015, Japan

*Masahiro I. Kohira*

Department of Physics, Science and technology Chuo University,

Kasuga, Bunkyo-ku, Tokyo, 112-8551, Japan

*Nobuyuki Magome*

Department of Food and Nutrition, Nagoya Bunri College,

Sasazuka-cho, Nishi-ku, Nagoya, 451-0077, Japan

**Abstract:** Photophoresis, which is a light action to a particle, has been experimented under a parallel beam. Under a convergent beam, another light action “optical trap” is well known. Photophoretic force field under a convergent beam is very important information for making photophoretic trap, but have never been studied. In present study, we observed photophoresis of liquid smoke particles both on a small convergent laser beam and on a parallel beam, under the micro-gravity condition in order to avoid the convectational flow due to buoyancy. Experimental results indicate that photophoretic velocity scales as 0.43 about 1/2 power of the radiation intensity. That are new results for photophoretic experiments. In addition, we give a theoretical treatment to derive the power to be 1/2, by taking into account of the effect of a Marangoni convection.

**Key words:** Negative Photophoresis, Convergent Beam, Aerosol, Marangoni convection

ミクروسケールの世界では、太陽光やレーザー光などの強い光が粒子に作用し、粒子を動かす現象がある。良く知られている現象として光トラップ<sup>1)</sup>と光泳動<sup>2)</sup>がある。

光トラップは集光ビームの焦点付近に捕らえられる現象で、光の波長以上の時には放射圧で、以下の時は誘電体ポテンシャルで、という大きさによるメカニズムの違いはあるものの、光の電磁場としての直接的な相互作用で、そのトラップ力がよく説明できることが知られている。<sup>3)</sup>

一方で光泳動とは、光の進行方向に粒子が動く現象であるが、光トラップと同様の説明はされない。光泳動には、光の進行正方向(光源から遠ざかる向き)に粒子が動く光順泳動(positive photophoresis)の他に、負方向(光源に向かう向き)に粒子が動く光逆泳動(negative photophoresis)があるからだ。光逆泳動は、光の直接的な相互作用で

は消して説明できない。光が粒子の形状や光学特性により、粒子の光源から見て背面付近で屈折・干渉などして強め合う条件があった場合に、背面が前面より周辺の気体分子をよく温めるため、その反作用により、粒子自体は光源に向かうと説明される。これは一般にラジオメーター力<sup>4)</sup>と呼ばれるものである。一般にMie散乱域と言われる光の波長0.5から2倍程度の径の粒子では、背面のほうが強く温められることが、波動光学の数値計算により求められた<sup>5)</sup>。また周辺気体分子が関与することは、Orr<sup>6)</sup>ら、Tong<sup>7)</sup>、Lin<sup>8)</sup>の周辺気体の圧力を下げると、光泳動力が小さくなる実験から示しめされた。またLinの実験では高真空にすると、光の吸収による光の放射圧により順泳動することが確認されているが、それは1気圧の時の逆泳動力に比べると微弱である。このように光逆泳動は、光による局所加熱を介した間接的な作用力が支配

的な現象と考えられ、光の直接的な作用は無視できるとされてきた。

光トラップは集光光線を用い、光泳動は平行光線を用いて実験され、それに対応する理論が展開されてきたので、まったく独立した研究として発展してきた。しかし、近年では対面2方向から集光レーザーではさみ、光泳動で粒子トラップ力場を作る試みが報告されている<sup>9)</sup>が、集光ビーム中での光泳動力の光強度依存性は、平行ビームのそれと同じであるという、その仮定は正しいのだろうか。この研究は、集光角の小さいレーザービーム中の、煙粒子の泳動速度分布を測定し、粒子にかかる泳動力とその場の光強度の関係を求める。その結果を平行ビームのそれと比べて、光泳動力と光強度依存性の関係を議論する物である。

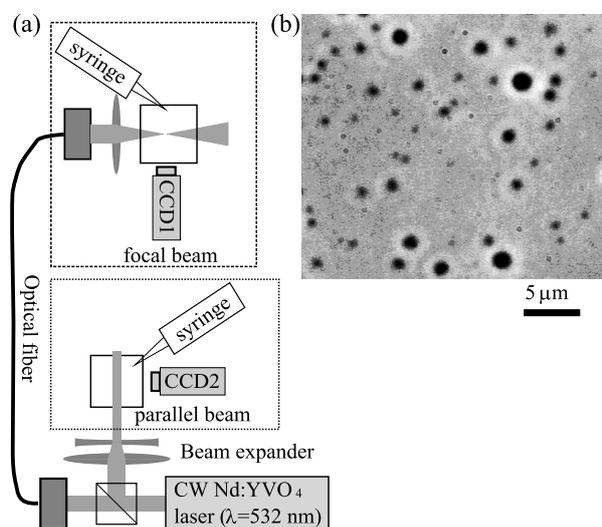


Fig. 1 (a) experiment setup (b) Microscope images of smoke droplets. Diameters of droplet are distributed around  $0.78 \pm 0.20 \mu\text{m}$ .

実験に使用した装置の概略はFig. 1の通りである。この実験は注入するレーザービームにより光学セル内に温度差が生じ、セル内に空気の熱対流が発生しやすい。これは泳動速度測定にとって邪魔であるので、実験は航空機を利用した微小重力環境下で行い、これを防いだ。航空機内の環境は室温 $20 \pm 3$ 度、0.9気圧に制御されている。レーザー光源はNd:YVO<sub>4</sub>レーザーの連続2倍高調波(波長532 nm, Millennia, Spectra-Physics)を使用した。発振モードはTEM<sub>00</sub>ガウシアンビームである。ビームはハーフミラーで分け、一方で平行ビーム系(ビーム幅0.46 mm)の実験を行い、もう一方で小集光ビーム系(集光角6.9度、最小ビーム幅0.032 mm)の実験を行った。煙は白檀線香(亀山ローソク製、商品名: はなふぜい)を燃やして発生したものを注射機に詰めて、光学セルに注入した。この煙の光学顕微鏡像はFig. 1 (b)である。この煙

は、水を主成分とする液滴で、油性の液体や不溶固体を含まないことがわかっている。また動的光散乱を用いた測定で、この液滴は $0.78 \pm 0.20 \mu\text{m}$ に分布していることもわかっている。ビーム中の粒子は、粒子自身の散乱光のみでCCDカメラに受けて撮影し、その映像をビデオテープに記録し、後にPCで解析した。

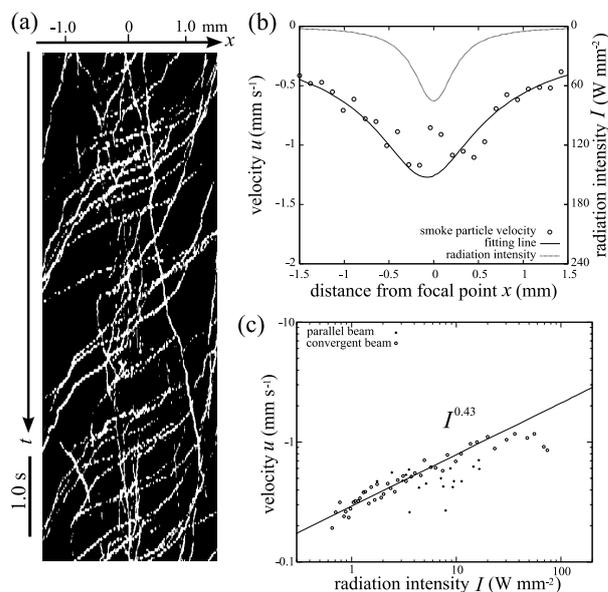


Fig. 2 (a) Spatiotemporal image of smoke particles in the convergent beam around the focal aim. The horizontal axis  $x$  is taken as the distance from the focal point in the focal aim, where negative values mean the near-side to the light source. The white trace, going down toward the bottom left, in the image indicate the position of the smoke particles affecting the photophoresis. (b) Photophoretic velocity of particles around the focal aim under the convergent beam. Open circle correspond to photophoretic velocity of smoke particles. Horizontal axis is the same as  $x$  of (a). The dashed line means radiation intensity  $I$  on the focal aim. Solid line means fitting line of the open circle, as same as solid line of (c). (c) Log-log plot of negative photophoretic velocity versus radiation intensity  $I$ . Cross point correspond to photophoretic velocity of smoke particles in parallel laser beam. And open circle are the same as (b). The solid line represents the fitting line of open circles, which scale as  $I^{0.43}$ .

得られた実験結果はFig. 2である。Fig. 2(a)は集光ビームの光軸上の像を、個々の時間で切り取り、上から時間順に並べて作った、時空間プロットである。この図中の白い軌跡の傾きが、速度となる。この傾き分布をとった物がFig. 2(b)の丸である。光の強度分布 $I(h,x)$ はTEM<sub>00</sub>モードの場合、

xを焦点を0とする光軸上の座標とし、hを光軸に垂直な座標とすると

$$I(h, x) = \frac{P}{\pi\sigma^2(x)} \exp\left(\frac{-h^2}{\pi\sigma^2(x)}\right)$$

$$\sigma(x) = \sqrt{W_0^2 + \{\tan(\theta)x\}^2}$$

のように表される。今回は光軸付近のみの結果なのでこれにh=0を代入したI(x)=P/πσ<sup>2</sup>(x)の光強度分布であると考え、Fig. 2(b)に同時にプロットしている。この図からも明らかに光強度に泳動速度が比例していないことが分かる。Fig 2(c)は平行ビームの結果とともに、横軸に光強度、縦軸に泳動速度を採ったグラフである。どちらのビームの結果からも泳動速度が光強度の約 0.43 乗に比例するとの結果が得られた。

今回測定した煙液滴の大きさでは、粘性抵抗が慣性を大きく上回るので、泳動力は泳動速度に比例すると考えられる。過去のLin結果では、硫酸アンモニウム結晶の光逆泳動力は光強度に比例するといった結果となっており、今回の我々の結果である約 1/2乗とは異なる。しかし、煙は液滴であるため、光泳動を引き起こすほど表面に温度差がある場合、同時にMarangoni 対流を引き起こしていると考えられる。その対流が固体の場合と表面の温度分布の相違を生んでいると考え、それをYalamov<sup>10)</sup>が考案した数式に加えてみることにする。ここで粒子中心の極座標(粒子の半径をr=1と規格化する)での粒子内の光の強度分布を全強度分布で標準化したものをB(r,θ)=Σ<sub>k</sub>β<sub>k</sub>(r)P(cos θ), 温度分布を

T(r, θ)=Σ<sub>k</sub>τ<sub>k</sub>(r)P(cos θ)とする。Yalamovは最終的に光泳動速度u<sub>ph</sub>が

$$u_{ph} = -\frac{2\tau_1(1)(v_e \xi_T / \bar{T}_s + D_{12}(\partial c / \partial \bar{T}_s))[(m_i / m_e) + K_{sl}]}{3R[1 + 2nm_i L^* D_{12}(\partial c / \partial \bar{T}_s) / K_i]}$$

のようにかけることを示した。ここでRは泳動粒子の半径、v<sub>e</sub>は大気の動粘性係数、ξ<sub>T</sub>は熱滑り係数、T<sub>s</sub>は平均表面温度、K<sub>i</sub>は熱輸送係数である。cは液体の表面からの蒸発する分子数を表しているが、水の場合光強度が100 W/mm<sup>2</sup>を上回らなければ、無視しても構わない。この式は光泳動速度が表面の前後の温度差τ<sub>1</sub>(1)に比例することを示しているが、その温度差は次のように決まる。

$$(v \cdot \nabla)T_i(r, \theta) - K_i \nabla^2 T_i(r, \theta) = 2\alpha B(r, \theta)$$

ここでvは粒子内の速度分布で、αは吸光係数である。固体の場合はv=0であるので、この方程式は線形となり容易に、u<sub>ph</sub> ∝ τ<sub>1</sub> ∝ Iβ<sub>1</sub>の関係を導かれる。ここからv(r,θ)を求めていく。Marangoni 効果は境界条件として

$$f_\theta = \frac{2}{R} \frac{d\sigma}{dT} \left. \frac{\partial T}{\partial \theta} \right|_{r=R}, \quad \frac{v}{R} \left. \frac{\partial v_\theta}{\partial r} + 2v_\theta \right|_{r=R} = \frac{f_\theta}{\rho_i},$$

をあたえて、内部に還流 v(r,θ)=a<sub>r</sub>(r)cosθr + a<sub>θ</sub>(r)sinθr が起こることを想定して、非圧縮流体のNavie-Stokes方程式を解く。ここで、σは表面張力であり、ρ<sub>i</sub>は内部流体の密度である。細かい導出は付録<sup>11)</sup>に記述して、ここではその概要を述べる。その解を先の熱輸送方程式に代入すると、r < √(1-δ<sup>2</sup>)の内核側は移流項が支配的であり、外殻は拡散項が支配的であることが分かる。そこで、内外を分け、滑らかな補間を行う近似を考える。そこで、内核の解を導出する。内外の境界を決める無次元量δはおそらく小さい上、外側は拡散支配で温度分布の違方性には関与しないであろうことから、内核側の温度分布τ<sub>1</sub>を用いて、

$$\tau_1(1) \approx \tau_1(\sqrt{1-\delta^2}) = -\frac{6R^2}{K_i} \sqrt{\frac{\alpha \rho_i v_i R I \int_0^1 r'^2 \beta_0(r') dr'}{2\partial \sigma / \partial T}}$$

とする。これを先のYalamovの光泳動速度の式に代入すると最終的にu<sub>ph</sub> ∝ I<sup>1/2</sup>が導かれた。

結論として、まず小集光ビームと平行ビームでの光泳動力の光強度依存は、ほとんど変わらないと考えられる。また小集光角のレーザービームを用いた煙液滴の光泳動速度測定により得られた、多くのサンプルデータから泳動速度が高強度の1/2乗に比例するという新規な現象を見つけた。そのような現象は微小液滴内でのMarangoni 対流を考慮に入れることで説明することに成功した。この研究は光泳動トラップ等のマニピレーション分野に対する応用だけでなく、雲中の水滴などが太陽光に泳動される<sup>12)</sup>などの、気象分野においても重要な結果となるであろう。

#### 参考文献

- 1) A. Ashkin, *Nature*, **330**, 769 (1987)
- 2) F. Ehrenhaft, *Z. Phys.*, **18**, 352 (1917)
- 3) W. H. Wright, G. J. Sonek and M. W. Berns, *Appl. Phys. Lett.*, **63**, 715 (1993)
- 4) A. Rubinowicz, *Ann. Phys.*, **62**, 691 (1920)
- 5) M. Sitariski and M. Kerker, *J. Atoms. Sci.*, **41**, 2250 (1984)
- 6) C. Orr and E. Y. H. Keng, *J. Atoms. Sci.*, **21**, 475 (1964)
- 7) N. T. Tong, *J. Colloid Interface Sci.*, **51**, 143 (1975)
- 8) H. B. Lin, *Opt. Lett.*, **10**, 68 (1985).
- 9) J. Steinbach, J. Blum, and M. Krause, *Eur. Phys. E*, **15**, 287 (2004)
- 10) Y. I. Yalamov, V. B. Kutukov, and E. R.

- Shchukin, *J. Colloid Interface Sci.*, **57**, 564 (1976)
- 11) 計算に関する付録などは  
<http://www.chem.scphys.kyoto-u.ac.jp/nonnonWWW/watanabe/studies/photopho>
- [resis/](#) をより入手可能である。
- 12) Warren and Wiscombe, *J. Atmos. Sci.*, **37**, 2734 (1980)