

航空機を用いた微小重力環境下における氷ナノ粒子の核生成実験の速報

木村 勇気 (北大・低), 山崎 智也 (北大・低), 屋嶋 悠河 (北大・低), 中埜 夕希 (北大・低), 森 章一 (北大・低), 稲富 裕光 (JAXA)

Preliminary results of nucleation experiments of ice nanoparticles in microgravity using an aircraft

Yuki Kimura*, Tomoya Yamazaki, Yuga Yashima, Yuki Nakano, Shoichi Mori, Yuko Inatomi

*Hokkaido Univ., Sapporo 060-0819

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

Abstract: We report on the results of research being conducted in the framework of the Special Committee on Space Environment Utilization Frontloading Research for FY2022. In particular, we present a preliminary report on a microgravity experiment using an aircraft scheduled to be conducted from December 12-20, 2022. Ice is heated and sublimated in buffer gas. As the vapor cools, it becomes highly supersaturated and forms nanoparticles via nucleation. At this time, precursors may form prior to the formation of the stable phase of ice. A series of processes are observed in situ by interferometry and infrared spectroscopy to get a closer look at the nucleation process.

Key words; Microgravity experiment, Nucleation, Cosmic dust, Ice

1. はじめに

太陽系に存在する水は、分子雲の冷たい環境 (~10 K) でダスト上に氷として形成する [1-3]。その後、原始太陽系星雲が誕生すると、暖かい領域 (100-300 K) が現れて蒸発、再凝縮する。昇華は熱平衡で起こるのに対し、凝縮は核生成を伴うために非平衡過程で進む。それゆえ、理論予測は難しく、高温を経験したダストが再度氷で覆われるための温度・密度条件 (星雲内での時空間スケール) は自明ではない。氷ナノ粒子の二つの物理量、表面自由エネルギーと付着確率を求めることができれば、再凝縮を理論的に予測することにつながる [4-6]。また、水蒸気から氷ナノ粒子が形成する過程の赤外線スペクトルを測定することで、凝縮相とその後の結晶化過程を知ることができ、核生成過程の解明につながる [7-9]。これにより、原始太陽系星雲内の任意の環境におけるダストの表層鉱物と表面積、および核生成経路を見積もることが可能となる。モデル化に必要な正確なデータを取得するには、均質な環境で核生成実験を行う必要があり、最終的には 10^{-4} G 程度の微小重力環境が得られる観測ロケットを用いた実験を目指している。ここでは、そのための予備実験としてダイヤモンドエアサービス (株) の航空機 MU-300 を用いて微小重力実験を行った結果の速報を報告する。

2. 実験方法

氷の核生成実験を航空機で実施するために、小型の低温用の核生成チャンバーを開発した (図 1)。低温用の核生成チャンバーは、干渉実験用 2 台、赤外線実験用 2 台の計 4 台を搭載した。干渉計用には、

通常のガラス製のビューポートを用いており、赤外線実験用には臭化カリウム、または KRS5 窓を取り付けた ICF70 フランジを用いた。このフランジは $\phi 25$ mm の光学窓を取り付けられるように特注で作製した。

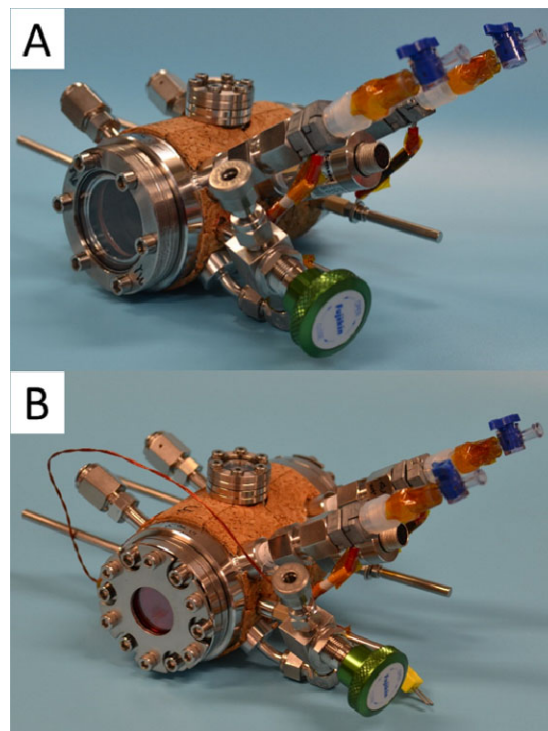


Fig. 1. Nucleation chambers for low temperature experiments (80 mm in diameter and ~180 mm in length) developed for microgravity experiments using an aircraft. A. For interference experiments. B. For infrared experiments.

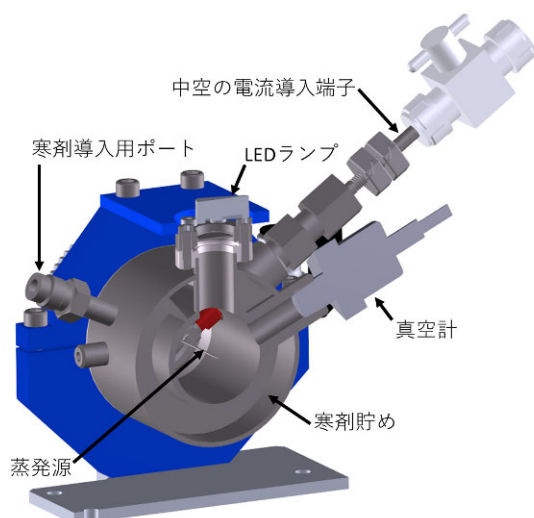


Fig. 2. Cross-sectional view of the low-temperature nucleation chamber. The evaporation source is a SUS tube with 200 μm diameter holes on its four surfaces at 5 mm intervals. Ice prepared in it was heated and evaporated in microgravity obtained by aircraft. The cold reservoir was filled with a refrigerant with a melting point of -51°C to cool the chamber and the evaporation source and argon gas introduced as a buffer gas.

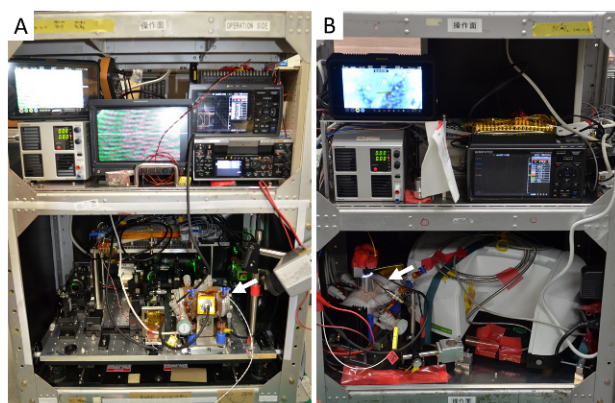


Fig. 3. Experimental equipment installed on the aircraft. A. Double-wavelength Mach-Zehnder type laser interferometer and low-temperature nucleation chamber (white arrow). B. Infrared spectrometer and low-temperature nucleation chamber (white arrow).

低温核生成チェンバーは二重管になっており（図 2）、外側に冷媒として融点 -51°C の保冷剤を入れてチェンバーを冷却し、低温に保った。蒸発源の温度も保冷剤で保たれており、実験開始時にはバッファガスとしてチェンバーに導入したアルゴンガスと熱平衡にある。図 2 に示す電極から電流を流すことで、蒸発源を加熱し、氷を昇華させた。

蒸発源の氷を加熱、昇華させることで発生させた高温の水蒸気は、バッファガスとしてチェンバーに導入しているアルゴンガスによって冷却され、過飽

和になった後に均質核生成を経てナノ粒子を形成する。この過程を二波長マッハツェンダー型レーザー干渉計（図 3A）および、赤外分光高度計（図 3B）を用いてその場観察した。干渉実験では、蒸発してから核生成するまでの温度場と濃度場を定量的に求めることができ、赤外線実験では核生成過程の水・氷粒子の結晶構造の変化を調べることができる。

3. 実験結果と議論

低温核生成チェンバーはクーラーボックスに入れて機内に持ち込んだ。実験空域に到達するまで 1 時間から 1 時間半ほどの時間を要する。そのため、実験開始時のチェンバー内温度は -51°C よりも高温であったが、それでも概ね -35°C 以下を保っていた。図 4 は実験開始時に最も初期温度が高かった、実験 1 日目の最初の二つのパラボリックフライトの実験データである。シートベルト着用サインの消灯後すぐに実験準備を開始したために、実験開始までに時間が空くことになり、温度が上がってしまった。それでも実験終了まで氷点下を十分に下回っていたことが分かる。微小重力になった後に、氷を昇華させるために蒸発源に印可する電圧を徐々に大きくしていった（図 4B）。蒸発源の加熱に伴い、アルゴンガスが加熱されてチェンバー内の全圧は大きくなった。

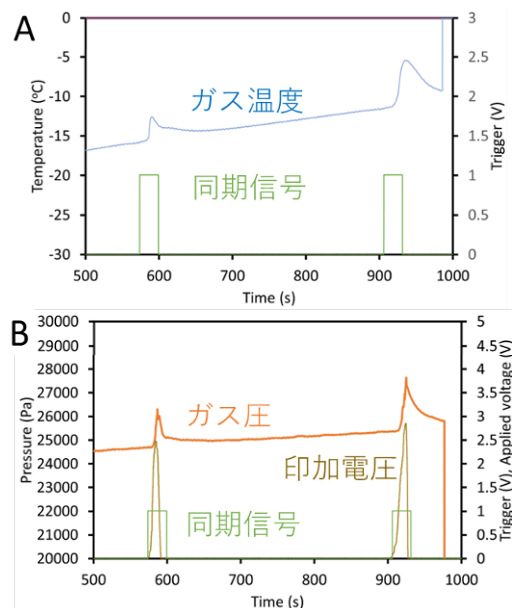


Fig. 4. Example of data obtained from a microgravity experiment using a low-temperature nucleation chamber. A. Temperature of argon gas sealed in the chamber measured using a platinum resistance thermometer (1 mm in diameter and 5 mm in length). 1 V in Trigger indicates the microgravity environment. B. Pressure of argon gas sealed in the chamber and the voltage applied to the evaporation source.

蒸発源に用意した氷を加熱蒸発させて水蒸気を発生させた。水蒸気が冷却して核生成するまでのプロセスを、干渉計を用いて観察した結果を図5に示す。赤と緑の二つのレーザーを用いているため、屈折率の波長依存性の違いを利用することで、簡単な計算の後に空間の温度と水の分圧（過飽和度）を同時に決定することができる。観測ロケット S-520-28 号機を用いた微小重力環境下での鉄の核生成実験ではアルゴンガス圧が 4×10^4 Pa のとき、核生成は蒸発源から 11 mm 離れた箇所で起こった（地上実験では ~ 1 mm）[4]。これに対して、今回の氷の核生成においては、アルゴンガス圧が $\sim 9 \times 10^4$ Pa の時は蒸発源から 3.5 mm 程度離れた領域で起こった（図 5D）。冷却の時間スケールと核生成が確認できる直前の温度と圧力のデータを高精度の核生成理論モデルに入れて解析することで、物理定数を決定できる。航空機実験では、非常に条件の良い時を除いて、微小重力の質が十分ではないので、煙は理想的な同心円状にはならない。今回も、同心円状になるデータは得られなかったもので、物理定数の範囲をできるだけ絞り込む方針で議論を進め、値の決定は当初の計画通り観測ロケットを用いた微小重力実験で行う。今回は観測ロケット実験につながる基礎データが取得できた。

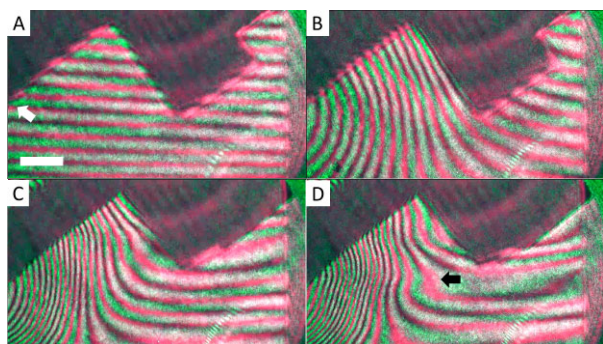


Fig. 5. In-situ observation of the nucleation process of ice nanoparticles from water vapor in a microgravity environment using the interferometer. A. Before heating. White arrows indicate the evaporation source. B. During heating. C. Just before nucleation. D. After nucleation. Black arrow indicates smoke composed of nucleated H_2O particles.

同様に核生成過程を赤外分光高度計でその場計測した結果の1例を図6に示す。図6Aは低温核生成チャンバーの上方に取り付けられた ICF34 ビューポートから可視光で観察した様子を示す。蒸発源に平行に直径 20 mm 程度の赤外線が右から左に向かって透過している。蒸発源から水が発生すると、主に $3000\text{--}3500\text{ cm}^{-1}$ の赤外線を強く吸収する。図6Bは約 -20°C のアルゴンガス中で実験を行った際の赤外線吸収スペクトル強度の時間変化である。20-30 秒の

ところで、強い吸収が見られ、予定通りに水が蒸発したことが分かる。

核生成直後は液体の水に対応する $\sim 3300\text{ cm}^{-1}$ に強い吸収が見られ、約 6 秒後には、氷に対応する $\sim 3150\text{ cm}^{-1}$ の吸収が強くなった。直径 10 nm の水滴の結晶化温度は $-60\sim -40^\circ\text{C}$ 程度であると言われている。これに対して、本実験の核生成温度は約 -15°C である。核生成直後は分子クラスターサイズであるので、10 nm よりも小さく、融点はより低いことが予想される。すなわち、今回の実験では、核生成直後は液滴で、その後の 6 秒間で粒子は成長し、さらに粒子同士の合体成長が起こって大きくなることで融点が上昇し、氷粒子へと変化したと考えられる。これは、水蒸気からの氷粒子の形成は多段階の核生成過程を経ていることを示唆している。地上では密度差対流の影響で、蒸発した暖かい水蒸気は上昇し、下方から蒸発源に向かう冷たいアルゴンガスの対流が生じる。我々の実験条件では、その対流の速度は $10\text{--}20\text{ cm s}^{-1}$ であることが知られている。この対流の為に、地上実験では実験装置を工夫しても生成粒子の赤外線スペクトルを測定出来るのは 1 秒程度が限界である。地上実験では水に起因する $\sim 3300\text{ cm}^{-1}$ の吸収は見られる一方で、氷に起因する吸収は見られなかった。本実験から、少なくとも 10 秒程度は赤外線スペクトルを測定することが望まれ、航空機実験が必須であることが分かる。また、将来的には観測ロケットを用いて、より均質な環境で長時間の観察を行うことで、より詳細に核生成過程に迫れると期待される。

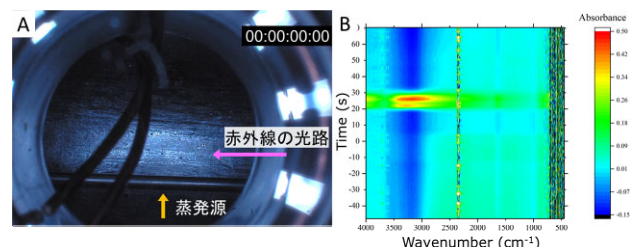


Fig. 6. In-situ measurement experiment using the infrared spectrometer. A. View from the ICF34 viewport above the low-temperature nucleation chamber (90 degrees from the evaporation source). B. Infrared absorption intensity measured in-situ.

4. まとめ

今回の実験で、氷ダストの核生成過程の解明を目的とした観測ロケット実験の提案に向けて必須となる、核生成の起こる空間的広がり、無対流環境で蒸発源に加える電圧と、その温度および温度場の関係、これらのガス圧依存性などの基礎データを取得することができた。これにより、観測ロケット実験を実施するにあたり必要となる、蒸発源の形状、必要な蒸発源温度とその為の電力など、実験条件の選定が

飛躍的に進んだ。これらの実験成果を元に、観測ロケットを用いた微小重力実験を提案し、46 億年前の原始太陽系星雲内で昇華と凝縮を繰り返した氷ダストの状態を予測可能な核生成モデルの構築を目指す。

4. 謝辞

本実験の一部は、住友財団 基礎科学研究助成 (2021 年 10 月 12 日採択)、北大コアファシリティ事業「R&T コラボプロジェクト」 (2021 年 12 月 27 日採択)、宇宙航空研究開発機構宇宙科学研究所 宇宙環境利用専門委員会 フロントローディング研究 (2022 年 6 月 3 日採択) の助成により行われた。

参考文献

- 1) Watanabe, N. and Kouchi, A.; Ice surface reactions: A key to chemical evolution in space, *Progress in Surface Science*, 83 (2008) 439.
- 2) Hama, T. and Watanabe, N.; Surface Processes on Interstellar Amorphous Solid Water: Adsorption, Diffusion, Tunneling Reactions, and Nuclear-Spin Conversion, *Chemical Reviews*, 113 (2013) 8783.
- 3) Kimura, T. *et al.*; Measurements of the activation energies for atomic hydrogen diffusion on pure solid CO, *The Astrophysical Journal Letters*, 858 (2018) L23.
- 4) Kimura, T. *et al.*; Pure iron grains are rare in the universe, *Science Advances*, 3 (2017) e1601992.
- 5) Kimura, Y., Tanaka, K. K., Inatomi, Y., Ferguson, F. T. and Nuth III, J. A.; Inefficient Growth of SiO_x Grains: Implications for Circumstellar Outflows, *The Astrophysical Journal Letters*, 934 (2022) L10.
- 6) Kimura, Y., Tanaka, K. K., Inatomi, Y., Aktas, C. and Blum, J.; Nucleation experiments on a titanium-carbon system imply nonclassical formation of presolar grain, *Science Advances*, 9 (2023) eadd8295.
- 7) Ishizuka, S., Kimura, Y., Sakon, I. Kimura, H., Yamazaki, T., Takeuchi, S. and Inatomi, Y.; Sounding-rocket microgravity experiments on alumina dust, *Nature Communications*, 9 (2018) 3820.
- 8) Ishizuka, S., Kimura, Y., Yokoi, S. Yamazaki, T. Sato, R. and Hama, T.; Self-Assembly of MoO₃ Needles in Gas Current for Cubic Formation Pathway, *Nanoscale*, 9 (2017) 10109.
- 9) Ishizuka, S., Kimura, Y., Yamazaki, T., Hama, T., Watanabe, N. and Kouchi, A.; Two-step Process in Homogeneous Nucleation of Alumina in Supersaturated Vapor, *Chemistry of Materials*, 28 (2016) 8732.