

# 宇宙ダスト生成過程の解明に向けた気相からの均質核形成のその場観察実験

木村勇氣<sup>1)</sup>、田中今日子<sup>2)</sup>、三浦均<sup>1)</sup>、塚本勝男<sup>1)</sup>、稲富裕光<sup>3)</sup>

<sup>1)</sup>東北大学、<sup>2)</sup>北海道大学、<sup>3)</sup>JAXA

## In-situ observation of dust formation via homogeneous nucleation in vapor phase

Yuki Kimura<sup>1</sup>, Kyoko Tanaka<sup>2</sup>, Hitoshi Miura<sup>1</sup>, Katsuo Tsukamoto<sup>1</sup>, Yuko Inatomi<sup>3</sup>

<sup>1</sup>Tohoku University, <sup>2</sup>Hokkaido University, <sup>3</sup>JAXA

E-mail: ykimura@m.tohoku.ac.jp

Abstract: To know the formation process of cosmic dust particles, we attempted for the first time interferometric observation to a condensation experiment in vapor phase, the gas evaporation method. Homogeneous nucleation is a fundamental process of dust formation in universe. For the first step, temperature distribution around evaporation source was measured with respect to the source temperature in the gas evaporation method for the first time in a quarter century. We visualized a condensation of the smoke particles in gas phase and temperature history including a cooling rate of produced particles after nucleation was recognized. Homogeneously condensed WO<sub>3</sub> nuclei initially maintain their temperature for ~5 ms and then cool down with a rate of ~5×10<sup>4</sup> K/s. The degree of supersaturation during the nucleation was at least as high as 10<sup>7</sup>.

### 1. はじめに

地球上でみられる結晶は、筆者の知る限り例外なく不均質核形成によって生成する。一方、晩期星の放出ガスが冷えて凝縮することで作られる（少なくとも最初に生成する）宇宙ダストは、均質核形成によって作られなければならない。また、原始太陽系星雲内においても、衝撃波加熱によって生じた蒸発ガス中では均質核形成による微粒子生成が起こっていたと考えられ、惑星間塵や隕石中のマトリックスに見られるサブミクロン以下の微粒子の生成、変成過程を理解する上で均質核形成は重要なプロセスであるといえる。

これまで、地球上の鉱物生成や実験によって得られた知見を宇宙鉱物に適用してきた従来の研究に対して、我々は宇宙での結晶成長の理解が必須であるとの視点から実験を行っている。ここでは、将来の微小重力環境での実験を見据えて地上で行った実験について述べる。

気相から固体微粒子が形成する宇宙ダストの生成過程を理解するために、再現実験として煙の実験を行ってきた<sup>1-3)</sup>。煙の実験では、宇宙ダストと同程度の数 nm からサブミクロンサイズの微粒子を比較的容易に生成できる。ガス中での蒸発物質を加熱蒸発させると、その蒸気が冷える過程で過飽和度が上がり、均質核形成による凝縮を経て微粒子

が形成する。それゆえ、核形成は平衡からかけ離れた非平衡環境で起こることが予想されるが、その程度は全く未知である。溶液相からの均質核形成実験に関する報告がいくつもなされているのに対して<sup>4)</sup>、気相中での均質核形成実験に関する報告は数えられる程度であり、揮発性元素がほとんどである<sup>5,6)</sup>。今回、我々は、干渉計を用いた非接触の“その場”観察法をガス中蒸発法に初めて導入し、酸化タングステン煙が生成するまでの、蒸発源近傍から核形成領域までの温度場と濃度場を求めた。その結果、気相からの核形成には、大きな過冷却が必要で、平衡から大きく離れた非常に大きな過飽和度の元で核形成が起こっていることを明らかにした。

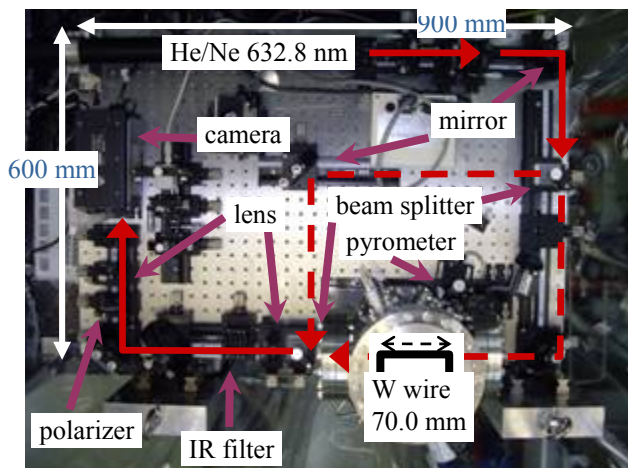
### 2. 実験方法

気相の温度場と濃度場をリアルタイムで捉えるために、マッハツェンダー型干渉計と宇宙ダスト類似物生成装置を新たに作製した。内径 16 cm、高さ 24 cm のメインチェンバーは二つの ICF152 のビューポートと八つの ICF70 ポートを備えており、下方にターボ分子ポンプ(210 L/s)が設置されている。蒸発源として太さ 0.3 mmφのタングステン線(純度 99.95%)をビューポートの中心に、レーザーに対して平行に設置し、10<sup>-4</sup> Pa 以下の真空に引いた後にアルゴンガス(99.999% in purity)や酸素ガス

(99.999 % in purity)を全圧  $1.0 \times 10^4$  Pa まで導入する。圧力はキャパシタンスマンメーター (ULVAC CCMT-1000D) と pirani/cold cathode combination gauge (Pfeiffer PKR 251)によってモニタした。蒸発源の温度は放射温度計 ( $\lambda = 0.8 - 1.6 \mu\text{m}$ , FTZ2, Japan Sensor Co.)と直径 0.1 mm の Pt-PtRh 13% 又は chromel-alumel 熱電対を用いて測定した。これらの値はデータロガーで記録した。

波長 632.8 nm の偏光 He-Ne レーザー (50 mW)を用いたマッハツェンダー干渉計は、厚さ 30 mm のアルミ製のボード上に配置され、クリーンブース内(class 20)に設置されている。アルミボードが 1 mm/s の速度でゆっくりと上下に可動することで、煙の数 cm 上方まで観察可能である。図 1 に上方から見た光学系の写真と光路を示す。

ガスの屈折率は非常に小さく、ガス中蒸発法によって微粒子を生成する際の典型的な圧力 ( $1.0 \times 10^4$  Pa)下では、632.8 nm の波長に対して、わずかに  $(n-1)_{\text{Ar}} = 2.599 \times 10^{-5} \pm 0.008 \times 10^{-5}$  (293.15 K の時)である<sup>7)</sup>。その為、煙の柱密度を稼ぐ必要があり、光路に対してできるだけ長く蒸発源を設置した。今回は、タングステン線を 70 mm、光路に平行に設置した。この条件で、 $1 \times 10^{-6}$  以下の屈折率変化を捉えられる。これは、 $1 \times 10^4$  Pa のアルゴンガスの温度が、298 K から 302 K に上昇する際の屈折率変化に対応している。干渉像は HD-TV カメラ (SONY HDC-X300)と HD レコーダー (Panasonic AG-HPG20)を用いて記録した。また、蒸発源からの熱輻射による光は赤外カットフィルター (>50% at 330-680 nm) にて取り除いた。

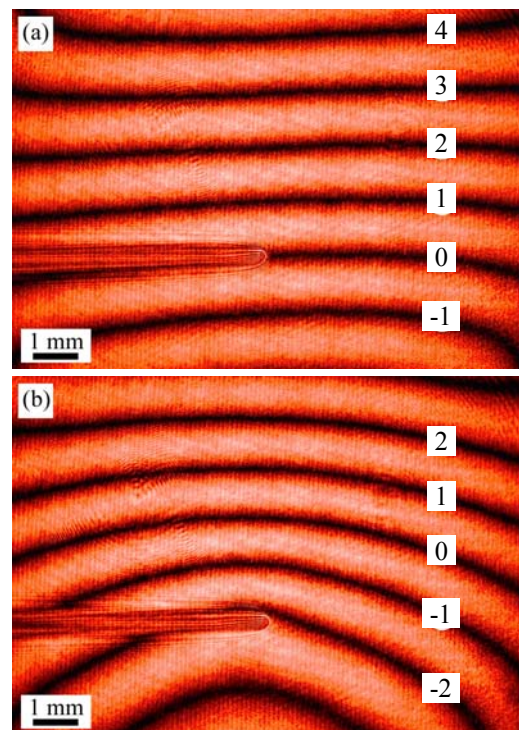


**Fig. 1** Optical set up of a Mach-Zehnder type interferometer. Tungsten (W) wire, which was prepared in the smoke generator, is an evaporation source certainly parallel to the optical path. Polarized He/Ne laser with 50 mW at 632.8 nm were used. Source temperature was measured using a pyrometer and occasionally thermocouple and recorded using a data logger. IR filter is to cut the radiation from the evaporation source. Interferogram was captured using a HD-TV camera and recorded by a HD recorder.

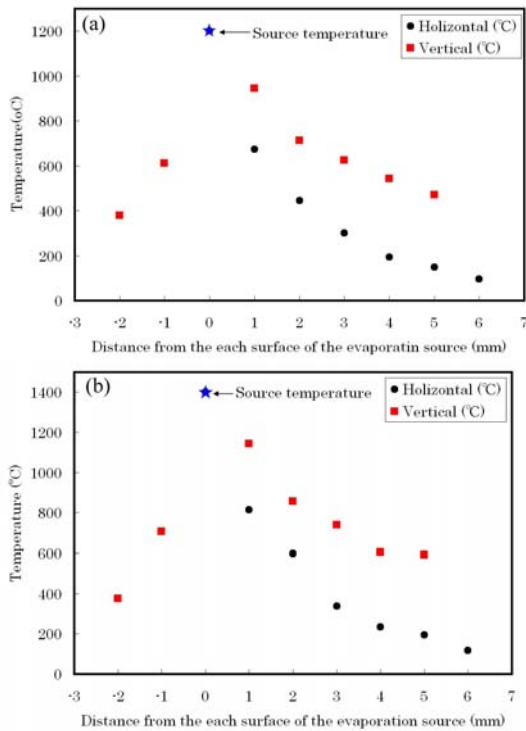
### 3. 温度場の測定

タングステン線をアルゴンガス ( $1 \times 10^4$  Pa) 中で抵抗加熱により昇温させると、周囲のガスが暖まることによって、光路長が変化する。酸素のない場合、タングステンの蒸気圧は非常に小さく ( $10^{-5}$  Pa at 2235°C)、無視できる。そのため、光路長の変化はアルゴンガスの温度によってのみ変化しているとみなせ、蒸発源近傍の温度分布が得られる。図 2 に蒸発源温度が (a) 24°C と (b) 1200°C の場合の干渉像を示す。縞の変化を追う為に、蒸発源と平行の縞を 0 として、図に示すようにナンバリングした。加熱により、蒸発源近傍では縞が 2 本上方に移動したことが分かる。

図 3 に蒸発源温度が (a) 1200°C と (b) 1400°C の場合のアルゴンガスの温度分布を示す。1200°C の時、蒸発源から 1 mm はなれた領域での温度勾配は、上方、下方、水平方向でそれぞれ、 $\sim 250$  K/mm、 $\sim 580$  K/mm、 $\sim 520$  K/mm であった。蒸発源温度 1400°C の場合の同様の温度勾配は、それぞれ  $\sim 250$  K/mm、 $\sim 690$  K/mm、 $580$  K/mm であった。蒸発源によって暖められたアルゴンガスは熱対流によって下方から上方への流れが生じる。その結果、蒸発源を中心に卵形の温度プロファイルとなる。熱対流の速度を測定した結果が圧力と蒸発源温度の関係として報告されている<sup>8)</sup>。今回の実験条件を当てはめると、その速度は  $\sim 100 \text{ cm s}^{-1}$  となる。ここで、核形成



**Fig. 2** Typical interferograms around the evaporation source at (a) room temperature and (b) 1200°C, respectively, in Ar gas of  $1.0 \times 10^4$  Pa. The numbers in each figure have been corresponded.



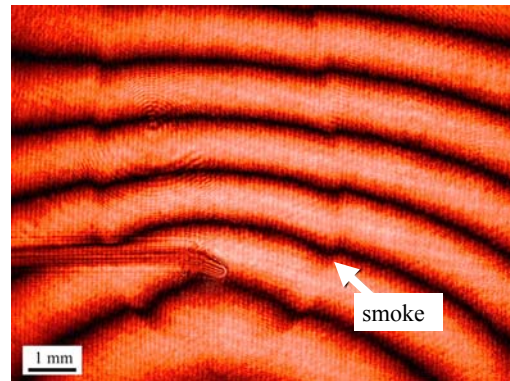
**Fig. 3** Temperature gradients around the evaporation source heated at (a) 1200°C and (b) 1400°C, respectively, in Ar gas of  $1.0 \times 10^4$  Pa.

と成長が起こっている蒸発源から 5 mm 以内の冷却速度を大雑把に見積ると、1200°C と 1400°C でそれぞれ  $\sim 1.4 \times 10^5$  K/s と  $1.6 \times 10^5$  K/s という大きな値になり、微粒子の成長が急激な冷却過程で起こっていることが再認識された。

#### 4. 濃度分布

3 章と同様のセットアップで、アルゴンガスの 10% を酸素に置き換えて加熱実験を行った。すると、タングステン線は酸素と反応して蒸発する。この時、蒸発源から均等に蒸発すると仮定すると、過飽和度は温度の低い下方で最も大きくなる。また、上方に蒸発した分子は対流に乗って運ばれるのに対して、下方に蒸発した分子は流れに逆らうために、濃集する傾向になる。すなわち、温度場と同様に、下方で最も過飽和度が大きくなるセンスである。それゆえに、均質核形成は蒸発源の下方で最初に起こっていると言える。これは、最近“その場”観察によっても捉えた<sup>9)</sup>。

酸化タングステン ( $\text{WO}_3$ ) 煙は蒸発源温度がおおよそ 1300°C の時に現れた。図 4 にアルゴン  $9.0 \times 10^3$  Pa と酸素  $1.0 \times 10^3$  Pa の混合ガス中で見られた煙の干渉像を示す。アルゴンと酸素の屈折率差は非常に小さい ( $\sim 10^7$ ) のために、3 章で求めた温度場による光路長変化を差し引くことで、濃度場を得られる。生成した粒子は加速電圧 200 kV の Hitachi H-



**Fig. 4** A typical interferogram of a  $\text{WO}_3$  smoke, which produced by an electrical heating of a tungsten wire in a mixture gas of Ar  $9.0 \times 10^3$  Pa and  $\text{O}_2$   $1.0 \times 10^3$  Pa.

8100 透過型電子顕微鏡を用いて観察したところ、20-200 nm の粒径を持った三斜晶系の  $\text{WO}_3$  結晶であった。

均質核形成は最も過飽和度の大きい領域で起こる。今回の実験では、蒸発源から 1 mm 下方の 600-700°C の領域が核形成サイトである。その際の  $\text{WO}_3$  の平衡蒸気圧は  $\sim 10^{-7}$  Pa である。一方、蒸発源温度 1300°C の際の平衡蒸気圧は  $10^2$  Pa オーダーである。蒸発源から  $\text{WO}_3$  分子が 1 mm 均等に拡散したとすると、過飽和度は  $10^7$  にもなる。

蒸発源下方で生成した核は、対流に乗って上方に運ばれ、煙として目に見えるようになる。核形成サイトから煙のプロファイルに沿って 5 mm 程度進む間は、そのプロファイルは 600-700°C の等温度分布線に重なる。すなわち、潜熱を無視すれば、生成した核の温度は少なくとも 5 mm 進む間は保たれる。その後、成長した核は  $\sim 5 \times 10^4$  K/s の速度で冷却される。従来は、煙中で生成する粒子は単純に  $10^4$ - $10^5$  K/s 速度で急冷されると考えられてきたが、我々の本実験から、煙中の粒子が核形成の後に 5 ms 間保温されるという温度履歴の新しい結果が得られた。これは、核形成時の潜熱解放の影響かも知れない。

我々は同様の実験を微小重力環境下で行うことを目指している。微小重力では対流が抑えられることから、生成した核はその場に留まったまま成長していくと考えられる。静的な環境での実験により、核形成の待ち時間や煙粒子の潜熱も含めた温度履歴が明らかにできるであろう。さらに、核の数密度を古典的核形成理論で求めた値と比較することで、宇宙ダストの生成過程の解明につなげていく。

#### 5. まとめ

ガス中蒸発法に干渉法を初めて適用して蒸発源近傍の温度場を測定した。蒸発源周囲で煙が発生す

る際には不均質核形成サイトは存在しないことから、微粒子は均質核形成によって生成する。温度分布とガスの流れから、核形成は蒸発源の下方で起こり、対流に乗って上昇する間に成長する。その際、煙の軌道は等温度線に重なり、生成した直後の~5 ms間は温度が保たれ、その後 $\sim 5 \times 10^4$  K/sの速度で冷却したと結論付けられる。均質核形成が起こる際の過飽和度はすくなくとも $10^7$ という非常に大きな値であることが分かった。

#### 謝辞

本研究は科研費、若手研究(A)(22684024)、東北大学GCOEプログラムおよび、同学際科学国際高等研究センタープログラム研究の助成を受けたものである。チャンバーおよび光学ボードは東北大学理学部機器開発研修室によって作製された。

#### 参考文献

- 1) Y. Kimura and J. A. Nuth III: The Astrophysical Journal Letters, **697** (2009) L10.
- 2) Y. Kimura, S. Sasaki, H. Suzuki, A. Kumamoto, M. Saito and C. Kaito: The Astrophysical Journal, **684** (2008) 1496.
- 3) Y. Kimura, J. A. Nuth III and F. T. Ferguson: Meteoritics & Planetary Science, **41** (2006) 673.
- 4) X. Y. Liu, K. Tsukamoto and M. Sorai, Langmuir, **16** (2000) 5499.
- 5) J. L. Schmitt, G. W. Adams and R. A. Zalabsky: J. Chem. Phys., **77** (1982) 2089.
- 6) G. W. Adams, J. L. Schmitt and R. A. Zalabsky: J. Chem. Phys., **81** (1984) 5074.
- 7) Y. Clergent, C. Durou and M. Laurens: J. Chem. Eng. Data, **44** (1999) 197.
- 8) S. Yatsuya, A. Yanagida, K. Yamauchi and K. Mihama: Journal of Crystal Growth, **70** (1984) 536.
- 9) Y. Kimura H. Miura, K. Tsukamoto, C. Li, T. Maki: Journal of Crystal Growth, in press.