

欧州の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装置の作製と結果の速報

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

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

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

*Hokkaido Univ., Sapporo 060-0819

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

Abstract: We report on the results of the research being carried out in the framework of the Space Environment Utilization Expert Committee Frontloading Research for the year 2023. In particular, microgravity experiments using aircraft conducted during the 41st Deutsches Zentrum für Luft- und Raumfahrt (DLR) Parabolic Flight Campaign in Bordeaux in September 2023 will be described. We performed in situ interferometric and infrared spectroscopic observations during the formation of nanoparticles from highly supersaturated water vapor via nucleation. Since there were significant differences between the Japanese and European aircraft experiments in terms of resources, preparation work, and flight details, we will introduce the experimental methods and results, as well as the preparation of the experimental apparatus.

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

1. はじめに

ダストは惑星系の材料として重要なだけでなく、その表面は分子形成の場として使われたり、星間空間ではエネルギー収支を担ったりするなど、重要な役割を果たしている¹⁻⁵⁾。138 億年に渡る物質進化の過程を理解するための一歩として、ダストがガスから生成するメカニズムを素過程から明らかにしようというのが我々の目的である。

これまでに、日本で航空機 (G-II, MU-300, ダイヤモンドエアサービス社) を用いて得られる微小重力環境下で金属や酸化物、炭化物といった難揮発性物質のナノ粒子の核生成実験を行ってきた^{6,7)}。その後、得られた結果を元に微小重力の質がより高い観測ロケットを用いた微小重力実験を行うことで、精度の高いナノ粒子の物理量 (付着確率と表面自由エネルギー) と核生成経路を決定し、宇宙の塵 (ダスト) の形成過程に迫ってきた⁸⁻¹¹⁾。

次のターゲットとして我々は、宇宙ダストに最も重要な粒子サイズ (数十 nm)、かつ、過飽和環境下で氷の宇宙ダスト (氷ナノ粒子) の核生成実験を微小重力環境下で行うことで、核生成理論によるダスト生成の予測に必須の氷ナノ粒子の物理量と核生成経路を決定し、氷の宇宙ダストの生成過程を解明することを目指している¹²⁾。

地上では高温の蒸気を発生させた際に生じる密度差対流は、微小重力環境下では抑制でき、生成した粒子の散逸も抑えることができる。そのため、核生成は均質な環境で起こり、生成粒子の赤外線スペクトルを長時間測定することができる⁶⁾。

微小重力環境下での氷ナノ粒子の核生成実験は、これまでに、日本の航空機を用いて 2021 年度と 2022 年度に行った¹²⁾。実験は計画通りに上手くいったが、液体窒素やドライアイスを搭載することができなかったために、 -51°C の保冷剤を用いた冷却温度に甘んじる実験となり、限定的な温度範囲の実験データの取得に留まった。そこで、より低温側で実験を行うために、欧州の航空機を用いた微小重力実験を 2023 年 9 月に実施した。本稿では、実験の実施に必須となった実験装置の改良やフランス、ボルドーの実験場における作業などについて主に報告する。

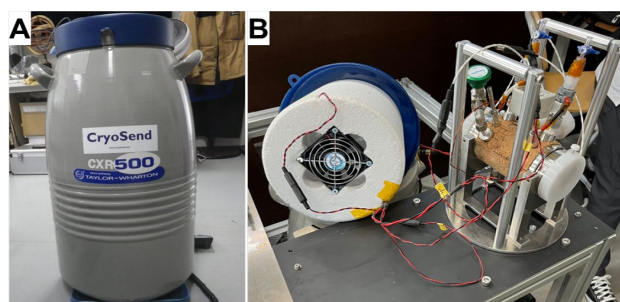


Fig. 1. Equipment for cooling the low-temperature chamber. A. Dry Shipper (CXR500, MiTeGen), a container for transporting frozen samples to cool the low-temperature chamber. **B.** The lid of the dry shipper (left) with a fan attached to the underside to improve cooling efficiency, and the jig for fixing the chamber with a low-temperature chamber (right).

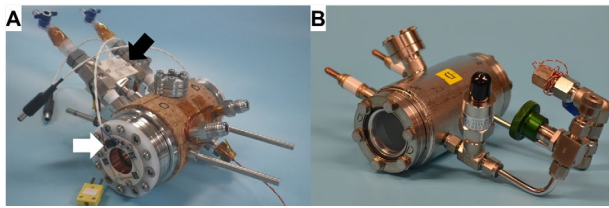


Fig. 2. Nucleation chambers used in the aircraft experiments. **A.** Low-temperature chamber. Black and white arrows are heaters for the pressure gauge and for the viewports, respectively. The black part at the tip of the white arrow is a thermostat with four resistors per heater. **B.** Ordinary (high-temperature) chamber.



Fig. 3. The ground vacuum system with four high-pressure gas cylinders.

2. 低温核生成チェンバー、および周辺環境の準備

欧州の航空機を用いて微小重力実験を行うことにした最大の理由は、氷の核生成実験を液体窒素を用いた冷却条件下で実施するためであった。今回の実験では、ゼオライトのような吸着剤に液体窒素を吸着させることで、液体窒素温度に保ったまま試料を航空機で輸送できるドライシッパー (Dry Shipper, CXR500, MiTeGen) と呼ばれる凍結試料搬送容器 (Fig. 1A) を用いて低温核生成チェンバーを実験直前まで冷却した。低温核生成チェンバーは、全部で 4 台搭載したことから、残りの 3 台はなるべく低温で実験を行うために、離陸から実験までの間は、融点 -51°C の保冷剤の入った保冷バックに入れて予備冷却を行った。すなわち、離陸時には、4 台の低温核生成チェンバーのうち 1 台はドライシッパーに、残りの 3 台は 3 つの保冷バックにそれぞれ入れた。

低温核生成チェンバーをドライシッパーから出し入れしやすくするために、専用の治具を作製した (Fig. 1B)。これにより、チェンバー取り出し時に手を深く入れる必要がなくなり、振動でチェンバーの端子などがドライシッパーの壁に衝突して破損するリスクも低減できた。

低温チェンバーには小型の真空計が取り付けられている。その内部にはオイルが使われていることから、ドライシッパー内でそのオイルが固化することを防ぐために専用のヒーターを用意した (Fig. 2A, black arrow)。また、低温にした後に実験装置に搭載するまでの間にビューポ

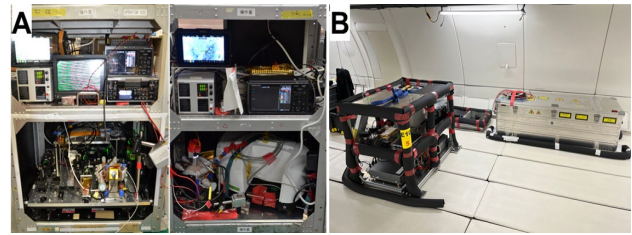


Fig. 4. Comparison of our onboard experimental equipment in Japan and Europe. **A.** Our experimental equipment on board the MU-300 aircraft used for microgravity experiments in Japan. On the left is an interferometer and on the right is an infrared spectrometer. **B.** Our experimental equipment on board the Airbus A310 aircraft used for this experiment. Both the interferometer and the infrared spectrometer are installed in the silver box (Zarges box) on the right.

ートが結露するのを防ぐため、ビューポートと一体型の専用のヒーターを作製して、その表面温度を上げるようにした (Fig. 2A, white arrow)。これらのヒーターは 10°C を下回ると約 1A の電流 (10W) で発熱する仕様である。

チェンバー内に準備した蒸発源を加熱することで生じる高温の気体から核生成を経てナノ粒子を形成するためには、蒸発気体の平均自由行程を小さくする必要がある。そのため、チェンバーにはアルゴンや窒素などを導入する。また、酸化物を作る際には酸素を導入したり、宇宙におけるダストの生成過程を知るには水素を混ぜたりする。今回は、アルゴンと窒素の高純度ガスに加えて、Novespace 社の規則に従って酸素や水素を用いるために、混合ガス (アルゴン -20% 酸素、アルゴン -2% 水素) を準備した。

真空装置は高真空に対するリークが無いことが必須であり、通常 1 気圧以上の圧力になることは想定していないが、Novespace 社の規則に従って真空装置 (Fig. 3) に核生成チェンバー (Fig. 2) をつなぎ、2.25 気圧までガスを入れることで装置の安全性を確かめる耐圧試験を実施した。

3. その場計測装置の準備

日本で行う航空機実験では、実験装置は既存のラックに搭載され開放系になっている (Fig. 4A)。そのため、核生成チェンバーの交換やアライメント作業をパラボリック飛行の前後の水平飛行時に容易に行うことができる。これに対して Novespace 社では、レーザーの光は散乱光を含めて目に入る (見える) ことのないように要求されたため、干渉計装置と赤外線スペクトル測定装置は共に、安全審査をクリアしているアルミ製のケース (Zarges box) に収めた (Figs. 4B and 5)。これにより、微小重力前後の水平飛行時に核生成チェンバーを交換したり、アライメントを行ったりすることが難しくなった。

干渉計は振動に対して非常に敏感なため、地上では

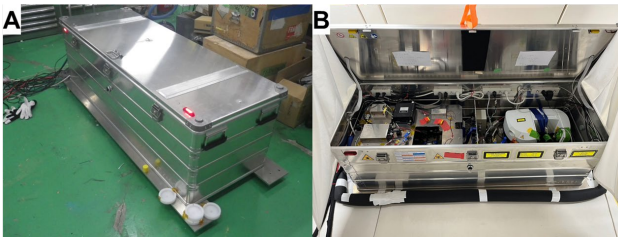


Fig. 5. Zarges box, an aluminum case that has passed safety inspections of Novespace. A. With the lid closed. The red lamps on the top and front plates indicate laser irradiation. **B.** Inside the Zarges box. The interferometer is on the left, the infrared spectrometer is on the right, and the vertical plate containing torque wrenches is in the center.

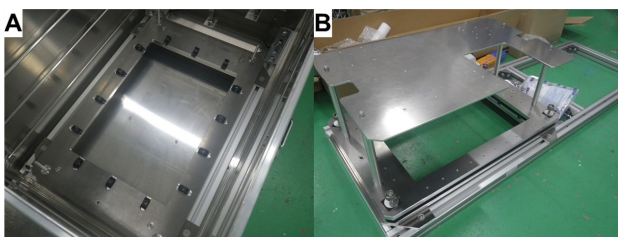


Fig. 6. Vibration suppression device for the interferometer developed for this aircraft experiment. A. Bottom plate of the vibration suppression device. The black dampers for placing the base plate are in slits in the bottom plate. When the interferometer assembled on the base plate is fixed to the bottom plate, the dampers are collapsed to allow torque tightening. **B.** The middle plate on which the interferometer is placed and the top plate on which the control unit and other devices are placed.

空気ばね式の光学防振台の上に組んで実験を行っている。微小重力実験では、微小重力中に干渉計を浮かせることで振動を低減させる。低温科学研究所の技術部の協力で Novespace 社の安全要求を満たした制振装置を作製した (Fig. 6)。ここで、微小重力中の重力加速度はあらゆる方向に変化することから、浮いている際にどこかに飛んでいくことのないように、移動範囲を制限する必要がある。そこで、干渉計を載せる中間プレートの四隅に直径 25 mm の孔を用意し、ベースプレートから M8 ボルトを立てて上部に特製の大きなナットを付けることで、干渉計 (中間プレート) がベースプレートから大きく外れないように移動範囲を制限した (Fig. 6B)。微小重力中は干渉計はこの孔の範囲内で自由に浮遊することができる。地上では、特製の大きなナットで締め付けることで、中間プレートをベースプレートに固定した。

加えて、微小重力終了後には下向きに 2 G 近くの重力加速度が掛かることから、実験装置は下に叩きつけられることになる。この衝撃を緩和するために、衝撃吸収用のダンパーをぐるりと 1 周配置した (Fig. 6A)。

Novespace 社の安全要求では、航空機の離着陸の際

には機首方向に 9 G (加えて 50% のマージン) の重力加速度が加わっても耐えられることと、上空で緊急事態が発生した際に 1 分以内に着陸態勢に入れるよう機器を固定できるようにすることが求められた。これらの条件を満たすために、M8 ボルト 2 本で中間プレートの左右両端からベースプレートに固定できるようにした。これにより、ネジを締めて干渉計をベースプレートに固定する作業を 2 人で 1 分以内に完了できるようになった。

4. 実験手順

フライト前日に、8 台の高温用核生成チェンバーを順に真空引きして、アルゴンガスや前述の混合ガスを 20000 または 40000 Pa 入れた。保冷剤と蒸発源に水を入れた低温用核生成チェンバーをドライアイスと冷凍庫 (-20°C) でそれぞれ冷却した。

フライト当日は、4 台の低温用核生成チェンバーの真空引きを順に行い、窒素ガスを 40000 または 80000 Pa 導入した。そのうちの 1 台をドライシッパーに入れて、残りの 3 台を保冷バッグに入れて航空機に搭載した。

Novespace 社の航空機実験では、1 回のフライトで 22 秒程度の微小重力環境が 31 回得られる。我々は低温チェンバー (Fig. 2A) 4 台と高温チェンバー (Fig. 2B) 8 台を搭載して、干渉計装置と赤外線スペクトル測定装置を用いた実験をそれぞれ 6 台ずつ用いて行った。

微小重力実験では 5 回のパラボリック飛行ごとに 5 分間の水平飛行があり、その間に実験条件の変更や装置の調整などを行う。我々はその 5 分の間に核生成チェンバーの交換作業を行った。干渉計の実験においては、核生成チェンバーを交換した後に、必ずアライメントが必要になる。そのため、5 回のパラボリック飛行ごとに設けられる 5 分間の水平飛行時に、Zarges box 全体を暗幕で覆い、実験者 1 名がその中で保護メガネを付けたうえで蓋を開け、電磁スイッチを解除してシャッターを開け、レーザー光を射出した。モニタは制御・記録計ラックに搭載されているので、カーテンから顔だけ出しながらアライメント作業を行うことにした。

離陸時は後方の座席に座り、シートベルト着用サインが消えたらすぐに実験準備に取りかかった。まず実験装置の電源をすべて入れて健全性を確認するとともに、トロリーに収納していた高温核生成チェンバーの入った Pelican ケース (Figs. 7A and B) をラックの上に固定した (Fig. 7C)。続いて、高温核生成チェンバーを 1 ケ取り出して干渉計に設置し、アライメントを行った。最後に低温核生成チェンバーをドライシッパーから取り出して赤外線スペクトル測定装置にセットし、同時に次の実験に用いる低温核生成チェンバーを -51°C の保冷バックから取り出して、液体窒素温度に冷却されているドライシッパーに入れた。

全ての計測機器の記録をスタートして実験開始を待った。実験装置の前には床にベルトが取り付けられており、パラボリック飛行中はこのベルトを使って姿勢を保ちなが

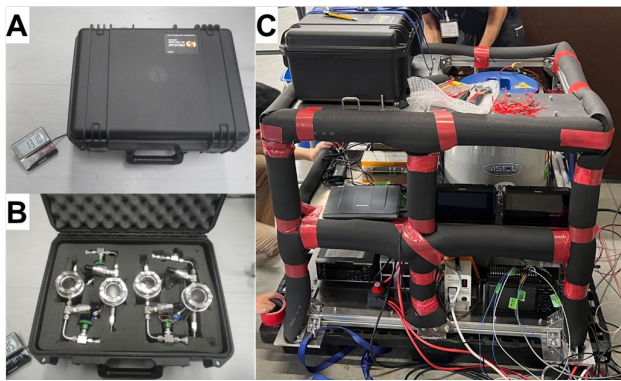


Fig. 7. Mounting arrangement for high-temperature nucleation chambers. A and B. Exterior and interior view of the Pelican case (The Pelican™ Storm Case™, iM2450, Pelican Products, Inc.) containing the high-temperature nucleation chambers, respectively. C. Rack with control and recording

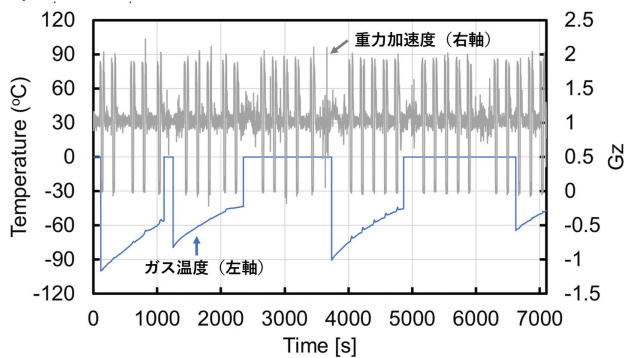


Fig. 8. Gravity acceleration and gas temperature in the low-temperature nucleation chamber from the first to the 30th parabolic flight.

ら実験を行った。

実験後地上に戻ってからは、低温チェンバーの真空排気を行い、保冷剤と共にドライアイスで翌朝まで冷やした。高温チェンバーは、地上で圧力を測定した後に試料の載った透過電子顕微鏡 (TEM) 観察用のグリッドを取り出し、蒸発源 (主に炭素、炭化シリコン、炭化チタン) を交換して、新しいグリッドを入れ、真空引きを行って、翌日の実験に備えてガスを導入した。並行して、実験データを保存し、所定のデータが取得できていることを確認した。

5. 実験結果と議論

Fig. 8 に実験 1 日目の低温チェンバー内のガス温度と重力加速度のデータを示す。一回目のパラボリック飛行 (PF) はテストとして考えられており、PF#0 が割り当てられている。Fig. 8 には PF#1 から #30 までのデータを載せた。5 回の PF を一塊として 6 個の塊があることが分かる。これは、5 回の PF ごとに実験準備のために約 5 分 (3 回目は 8 分) の水平飛行の

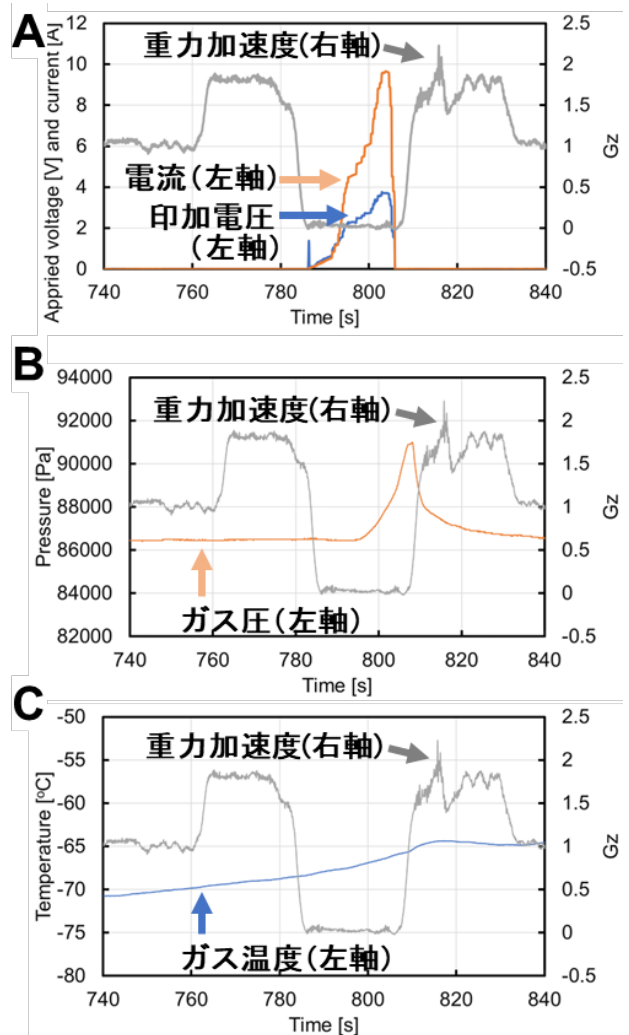


Fig. 9. Examples of measured data from the first day of the experiment, PF #4, H₂O nucleation experiment using a low-temperature nucleation chamber. A. Applied voltage and current to the evaporation source. B. Total pressure in the chamber. C. Temperature of nitrogen gas in the chamber.

時間が設けられているためである。核生成チェンバーの交換はこの水平飛行の間に行った。3 日間に渡ってすべてのチェンバー交換を予定通りに行うことができた。

低温核生成チェンバーを用いた実験は、PF#1-5, #6-10, #16-20, #26-30 の 4 回実施した。温度記録用のデータロガーは常にデータ収集をしている状態であり、チェンバーの測温用端子を接続していないときは 0°C と表示される。PF#26 と #27 の温度データが欠落しているのは、端子の接続を忘れていたためである。最初の PF#1-5 のガス温度が一番低いのは、低温核生成チェンバーを地上でドライシッパーに入れてから実験直前まで十分な時間冷やすことができたからである。大雑把に 100 秒ごとに 5°C 程度の温度上昇がみられ、5 回の PF の間に、-100°C 以下から -50°C 程度までの幅広い温度範囲で実験できることが分か

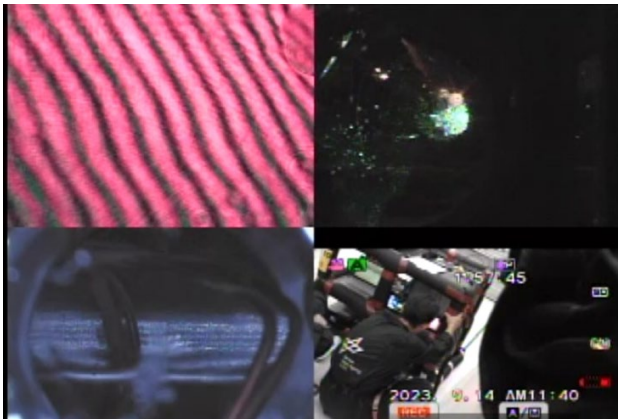


Fig. 10. The synchronization and saving of experimental data by integrating four camera data into one data set using a four-screen combiner. Clockwise from top left: interference image, their real images, a view of the cabin, and a side view inside the low-temperature nucleation chamber in the infrared spectroscopy experiment.

る。

水の核生成は、微小重力下でチェンバー内に水蒸気を導入することで生じさせる。水蒸気の導入はチェンバー内の蒸発源にあらかじめ水を保持し、そこに電流を流して加熱することで行った。そのため、微小重力になった後に、印加電圧を徐々に大きくしていった (Fig. 9A)。蒸発源の加熱に伴い、バッファガスとして入れている窒素ガスが加熱されることで、チェンバー内の全圧は大きくなる (Fig. 9B)。加熱をやめても、蒸発源の持つ熱容量のためにガスの加熱はしばらく続き、また水蒸気の発生も続くことから、全圧のピーク位置は印加電圧のピーク位置に比べて時間の遅れがあることが分かる。窒素ガスの最高温度も、高温に加熱されてから窒素ガスの温度が上昇するまでに時間差があることから、印加電圧を遮断した後に最高温度を記録している (Fig. 9C)。

上記のアナログデータに加えて、画像データも取得した。干渉計の実験では、干渉縞と対応する実像を同時に撮影し、赤外線スペクトル測定実験では、チェンバー内の様子を横から実像として撮影した。これら 3 つのデータに加えて、オペレーターの実験の様子もハンディカムで撮影した。さらに、同期を取るために、これら 4 つの画像データは 4 画面合成器で一つの動画として記録した (Fig. 10)。

発生させた水蒸気が冷却して核生成する過程を、干渉計を用いて観察した結果を Fig. 11 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。昨年度、日本の航空機を用いて行った氷の核生成実験では、アルゴンガス圧 $\sim 9 \times 10^4$ Pa、温度 -15°C で、核生成は蒸発源から 3.5 mm 程

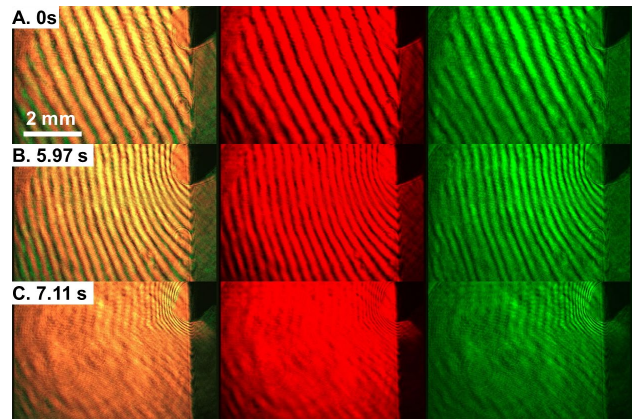


Fig. 11. Interference images of the moment of nucleation of H_2O particles. From left to right: raw data, interference fringes by red laser, and interference fringes by green laser. **A.** Before heating. **B.** Just before nucleation. **C.** During nucleation. When nucleation occurs and nanoparticles are formed, the laser light is scattered and the interference fringes are disappeared.

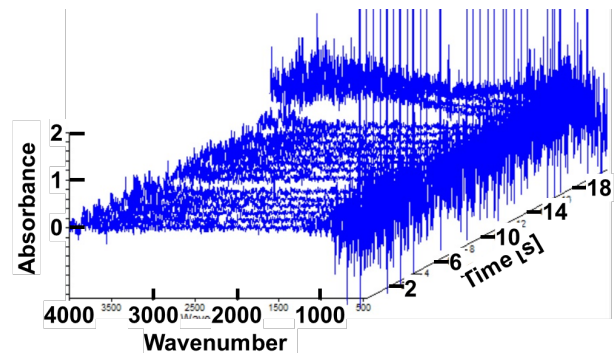


Fig. 12. An example of in-situ observation of the nucleation process using an infrared spectrometer. As time passes, the gas evaporates, nucleation occurs, and nanoparticles are formed, resulting in absorption in the $3 \mu\text{m}$ band (around 3000 cm^{-1}).

度離れた領域で起こった。これに対して Fig. 11 の例では、 -47°C で、核生成は蒸発源から 2 mm 程度離れた場所で起こった。このように、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データが得られた。同様に核生成の過程を赤外線スペクトルでその場計測することにも成功している (Fig. 12)。時間の経過に伴って蒸発源からガスが発生、核生成を経てナノ粒子が形成したことで、 $3 \mu\text{m}$ 帯 (3000 cm^{-1} 付近) に吸収が見られるようになったことが分かる。

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ため、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。

6. まとめ

日独の国際協力研究として、第41回ドイツ航空宇宙センター(DLR)パラボリックフライトキャンペーンに参加し、Novespace社(仏)の航空機(エアバスA310)を用いて微小重力実験を行った。その結果、昨年度までの日本の航空機を用いた実験の最低温度 -35°C に対して $\sim -100^{\circ}\text{C}$ と70 K近く低い温度で実験することができ、当初の目的は達成された。

独自に開発した低温核生成チェンバー内で水蒸気を発生させ、均質核生成を経て氷ナノ粒子が形成する過程を二波長レーザー干渉計と赤外線スペクトル測定装置を用いてその場観察した。その結果、高過飽和水蒸気から氷ナノ粒子が形成する瞬間の環境場(温度と水蒸気圧)を記録した干渉像を捉えることに成功した。本成果は、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につながる。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、基礎データを低温領域で取得することができた。これにより、蒸発源の形状、必要な蒸発源温度とその為の電力など、観測ロケットを用いた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。

謝辞

本実験は宇宙航空研究開発機構宇宙科学研究所の宇宙環境利用専門委員会のフロントローディング研究とDLRの協力を受けた。Novespace社の技術者Thomas Villatte氏には、通常はサポートされないフランスでの物品の発注、業者とのやり取りまで担って頂いた。Niklas König氏から現地で購入できなかったエタノールの提供を受けた。北海道大学低温科学研究所の技術部には実験装置の多くを作製して頂いた。本研究はJSPS科研費学術変革研究(A)「次世代アストロケミストリー」公募研究23H03981の助成を受けた。

参考文献

- 1) W. A. Schutte, A. G. G. M. Tielens, Theoretical studies of the infrared emission from circumstellar dust shells: The infrared characteristics of circumstellar silicates and the mass loss rate of oxygen-rich late-type giants. *Astrophys. J.* 343 (1989) 369–392.
- 2) T. T. Takeuchi, V. Buat, D. Burgarella, The evolution

of the ultraviolet and infrared luminosity densities in the Universe at $0 < z < 1$. *Astron. Astrophys.* 440 (2005) L17–L20.

- 3) A. J. Weinberger, Planetary science: Construction-site inspection. *Nature* 433 (2005) 114–115.
- 4) J. A. Nuth III, N. M. Johnson, Complex protostellar chemistry. *Science* 336 (2012) 424–425.
- 5) T. Hama, N. Watanabe, Surface processes on interstellar amorphous solid water: Adsorption, diffusion, tunneling reactions, and nuclear-spin conversion. *Chem. Rev.* 113 (2013) 8783–8839.
- 6) 木村勇氣、石塚紳之介、Sašo Šturm、田中今日子、山崎智也、齋藤史明、佐藤陽亮、稲富裕光、「航空機を用いた微小重力実験による宇宙ダストの初期形成プロセスの解明」、*Space Utilization Research*, 31 (2016) SA6000061013.
- 7) Y. Kimura, S. Ishizuka, S. Šturm, K. K. Tanaka, T. Yamazaki, F. Saito, Y. Satoh, K. Tsukamoto, Y. Inatomi, Nucleation Processes of Cosmic Dust Investigated by Microgravity Experiments using an Airplane, *International Journal of Microgravity Science and Application*, 35 (2018) 350305.
- 8) Y. Kimura, K. K. Tanaka, T. Nozawa, S. Takeuchi, Y. Inatomi, Pure iron grains are rare in the universe, *Science Advances*, 3 (2017) e1601992.
- 9) Y. Kimura, K. K. Tanaka, Y. Inatomi, F. T. Ferguson, J. A. Nuth III, Inefficient Growth of SiO_x Grains: Implications for Circumstellar Outflows, *The Astrophysical Journal Letters*, 934 (2022) L10.
- 10) Y. Kimura, K. K. Tanaka, Y. Inatomi, C. Aktas, J. Blum, Nucleation experiments on a titanium–carbon system imply nonclassical formation of presolar grain, *Science Advances*, 9 (2023) eadd8295.
- 11) S. Ishizuka, Y. Kimura, I. Sakon, H. Kimura, T. Yamazaki, S. Takeuchi, Y. Inatomi, Sounding-rocket microgravity experiments on alumina dust, *Nature Communications*, 9 (2018) 3820.
- 12) 木村勇氣、山崎智也、屋嶋悠河、中埜夕希、森章一、稲富裕光、「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」、*Space Utilization Research*, 37 (2022) SA6000180005.