

令和元年6月6日現在

機関番号：11301

研究種目：基盤研究(C) (一般)

研究期間：2015～2018

課題番号：15K05015

研究課題名(和文) 宇宙ダスト生成過程の解明に向けた核生成理論モデルの検証

研究課題名(英文) Theoretical model of nucleation for cosmic dust formations

研究代表者

田中 今日子 (Kyoko, Tanaka)

東北大学・理学研究科・客員研究者

研究者番号：70377993

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 3,200,000円

研究成果の概要(和文)：近年の赤外天文観測などにより、宇宙ダストは宇宙環境の中でアモルファス相(非晶質相)や結晶相などの状態を取ることが明らかになっている。宇宙ダストがどのような状態で生成し、進化するのは相変化の初期に起こる核生成過程が鍵となる。我々は精度の高い核生成理論モデルの構築を目指し、主要な宇宙固体物質である水の気相からの凝縮核生成の分子動力学(MD)計算を行った。MD計算と理論モデルの比較検討により、半現象論的核生成モデルの妥当性を示し、新たなスケールリング則を提唱した。また気相から固相への相変化のMD計算により、相変化の始めに現れる凝縮核は液相である可能性が示された。

研究成果の学術的意義や社会的意義

本研究の特徴は、宇宙ダスト生成を考える際の最も根本となる基礎理論を、分子レベルで解明し、宇宙環境におけるさまざまな温度圧力場でも使える核生成モデルを導き出すことにある。核生成率の不定性は宇宙のみならず他分野に関わる未解決な大問題であるが、分子動力学計算は分子レベルでの全く新しい情報を得ることが可能であり、核生成過程を詳細に調べる強力なツールである。また粒子数を多くした大規模計算により、小さい核生成率かつ大きな凝縮核のデータを得ることが可能になった。この手法をさまざまな物質に広げることにより、宇宙環境に使える理論モデルを構築できる。

研究成果の概要(英文)：The condensation and crystallization processes are important for understanding the origin of cosmic dusts and have been seen by various observations. We performed direct large molecular dynamics simulations of homogeneous nucleation of water which is an important component of cosmic dusts. We obtained nucleation rates and found a scaling relation of nucleation rate with remarkable consistency. We also performed molecular dynamics simulations of vapor-to-solid phase transition and discuss the transition process. Our simulations indicate that the vapor-to-solid transition occurs through multistep nucleation which is vapor-to-liquid nucleation (first step nucleation) and crystallization in the supercooled liquid droplets (second step nucleation), even though the temperature is much lower than the triple temperature. Our results indicate that the multistep nucleation is a common phenomenon in the first stage of condensation from vapor to solid in the astrophysical environments.

研究分野：天文学、物質科学

キーワード：宇宙ダスト 凝縮 核生成

様式 C - 19、F - 19 - 1、Z - 19、CK - 19 (共通)

### 1. 研究開始当初の背景

ダスト生成過程は赤外観測や宇宙の固体物質循環の出発点および星間ダストの進化や惑星形成過程を考える上で重要である。宇宙の固体微粒子(ダスト)の多くは超新星、新星、晩期型星などから放出されるガスからの凝縮により生成され、またその後の進化に伴い、蒸発と凝縮を繰り返す。希薄な宇宙でのダスト生成環境の特徴として、均質核生成が卓越する点が挙げられる。均質核生成ではダストの表面張力の効果により、平衡凝縮温度より低温度のかなり高過飽和な非平衡な状態から凝縮が起こる。従って星から放出されたガスからどの物質がいつ、どのような環境(凝縮温度)で、どのような順番、サイズで凝縮するのは核生成過程が支配すると考えられる。

従来の宇宙ダストの生成過程の研究では、均質核生成の巨視的記述を与える古典的核生理論が広く用いられてきたが、古典的核生成理論には得られる核生成率が実験と何桁も(一致しないという問題が残されている。古典的核生成理論から得られる核生成率が実際と異なる原因は、表面エネルギーは単にバルクと同じであると仮定している一方、始めに凝縮が起こる際の臨界核のサイズはナノスケール以下(10分子程度から成るクラスター)であり、この超微小ダストのバルクからの表面エネルギーがずれる点にある。つまり、核生成理論の構築において、核生成率を決定する微小クラスターの表面エネルギーの評価が本質である。

### 2. 研究の目的

我々は精度の高い核生成理論モデルの構築をめざし、核生成の分子動力学(MD)計算を行ってきた。核生成率を求めるだけでなく、クラスター分布からクラスターの表面エネルギーを導く方法論を構築した。MD計算において分子数が少ないと扱える温度圧力は高い過飽和状態に限られるが、我々は以前の研究において、超並列計算機を用いて80億分子の希ガスの分子動力学計算を行い、従来よりも4桁以上低い核生成率の現象を調べ、これまで難しかった室内実験条件と同様の条件で核生成過程を再現することに成功し、凝縮核の表面エネルギーは従来の巨視的な見積もりより大幅にずれること、またこのずれにより古典的核生成理論より10桁以上も高い実験の核生成率を説明できることを示した。この結果は臨界核の表面エネルギーがバルクの表面エネルギーと曲率のみに依存する簡単な関係式が成り立っていることを示し、この関係から任意の過飽和状態で使える核生成のスケーリングの関係を導いた。

本研究では我々が提唱したスケーリングの関係が宇宙ダストの主要物質に使えるのか検証する。これまでの分子動力学計算による核生成過程の研究手法を、 $H_2O$ に適用した。 $H_2O$ は宇宙ダストの主要な材料物質であり、その凝縮過程は例えば彗星や原始惑星系円盤のスノーライン付近で頻繁に起こる。本研究では $H_2O$ に対して分子動力学計算を行い、核生成率がどのように決まるのか、またスケーリングの関係が成り立っているかどうかを明らかにする。スケーリングの関係は表面張力が曲率に依存するという関係式から導かれるため、物質に依存せずに成り立つ可能性が高いことが予想される。これらの結果を統合し、高精度の核生成理論モデルの構築を目指す。また、気相から固相への相変化の振る舞いを、MD計算や近年精力的に行われている核生成実験との連携により比較検討し、その振る舞いを明らかにする。

### 3. 研究の方法

大規模並列計算用の分子動力学計算コード(LAMMPS)を用いて、過飽和状態の水分子、および希ガスによる気相から凝縮核が作られる様子を再現した。計算は国内外のスーパーコンピュータシステムを使用した。計算結果をこれまでの我々の手法を用いて解析し、得られたクラスタ

一分布から核生成率を決定するクラスターの表面エネルギーを算出した。また均質核生成実験の結果と核生成理論との詳細な比較を行った。

#### 4. 研究成果

本研究では超並列計算機を用いて水の核生成過程の大規模 MD 計算を行った。スイスのスーパーコンピュータを用いて、最大 8 千コアの並列計算を千時間以上かけて行い、最大 400 万分子で時間ステップは 3 億ステップという非常に大規模な分子動力学計算を実行することにより、従来よりも 10 万分の 1 という低い核生成率で進行する現象を再現し室内実験と同レベルに到達することに成功した。今回温度や圧力の広い範囲に対し得られた水蒸気からの凝縮核生成率は、古典的核生成理論から大きくずれるが、凝縮核の表面張力を補正した半現象論的モデルとはよく一致することが確認された。さらに、我々は、本来温度と圧力の 2 つに依存する凝縮核生成率が、それらの組み合わせで表される 1 つの変数のみに依存する簡単なスケーリング則を新たに提唱した (図 1)。このスケーリング則は、温度で約 200K、核生成率では 30 桁にわたる広い範囲に対し、分子動力学計算と室内実験の両方のほとんどの結果をよく再現しており有用である。

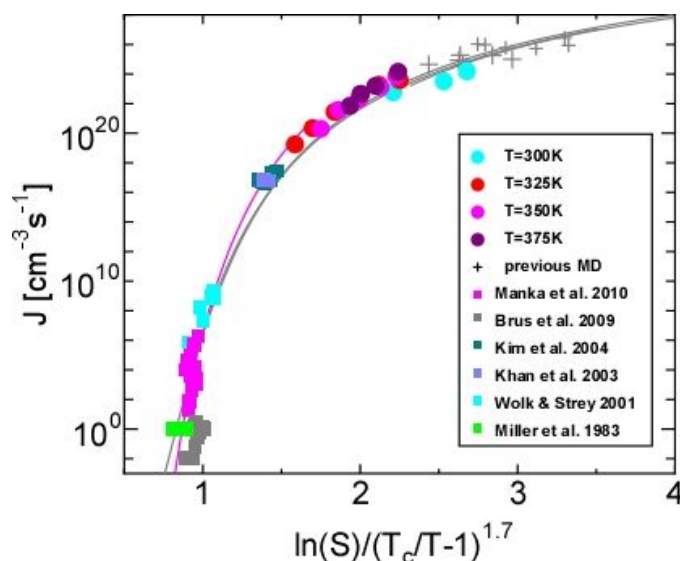


図 1 水の MD 計算および室内実験から得られた核生成率  $J$  のデータとスケーリングの関係 ( $S$ : 過飽和比,  $T$  は温度,  $T_c$  は臨界温度)。核生成率の約 30 桁にわたる範囲に対して、我々の提唱するスケーリング則は MD 計算と室内実験両方の結果をよく再現する (Angelil et al. 2015)。このような関係が様々な物質で成立することが分かれば、宇宙環境のような実験が困難な環境での核生成率を予測可能になる。

また、古典的理論を改良した新しい核生成理論モデルを用いて核生成実験結果の解析および比較検討を行った。2012 年に打ち上げられた観測ロケット S-520-28 号機による微小重力実験により行われた鉄の均質核生成実験の結果と核生成理論との詳細な比較を行うことにより鉄の付着確率を求めた。その結果、これまで 100%と考えられていた付着確率が、実は 0.002%程度と非常に小さいことが明らかになった。この結果は、宇宙において金属鉄粒子の生成は非常に限定的であり、鉄の主要な存在形態は純粋な金属ではないということを示唆する。

また、我々は希ガスをを用いて気相からの凝縮核生成および結晶化の MD 計算を行った。MD 計算を温度、圧力、系の大きさなどの広い範囲で行い、非晶質相から結晶相への相変化を詳細に調べた。これにより結晶核発生時間 (核生成率) や結晶核成長率を求めた。これらの研究によりはじめにできる臨界核は非常に小さく液相である可能性が高いことが分かった。凝縮物が

急冷して固化しアモルファス相になるか結晶化するかは冷却条件により決まると考えられる。このような多段階核生成は宇宙で普遍的に起きる可能性があり、固相が安定な低温環境においても、凝縮時にはまず液相ができ、その後結晶化するという多段階核生成を経ることが考えられる。この現象はいくつかの実験でも確かめられており、実験と理論との比較検討も行った。これらの研究は宇宙ダストに普遍的に存在するアモルファス相の起源やさまざまな宇宙環境での結晶化の条件を考える上での重要な鍵になると考えられる。

#### 5 . 主な発表論文等

〔雑誌論文〕(計 8 件)

田中今日子、大規模分子動力学計算による核生成の研究～古典的核生成理論の検証と改良  
～日本結晶成長学会誌、巻 : 44, ページ : 2-10, 2017 年, 査読有

K. K. Tanaka, J. Diemand, H. Tanaka, and R. Angelil, Analyzing Multistep Homogeneous Nucleation in Vapor-to-solid Transition Using Molecular Dynamics Simulations, Phys. Rev. E, 96, 022804, 2017, 査読有  
10.1103/physreve.96.022804

H. Miura, T. Yamamoto, H. Nomura, T. Nakamoto, K. K. Tanaka, H. Tanaka, and M. Nagasawa, Comprehensive study of thermal desorption of grain-surface species by accretion shocks around protostars, The Astrophysical J. 839, 47, 2017, 査読有 10.3847/1538-4357/aa67df

Y. Kimura, K. K. Tanaka, T. Nozawa, S. Takeuchi, and Yuko Inatomi, Pure iron grains are rare in the universe, Science Advances, 3, e1601992, 2017, 査読有  
10.1126/sciadv.1601992

K. K. Tanaka, H. Tanaka, J. Diemand, and R. Angelil, Nucleation processes revealed by large-scale molecular dynamics simulations, Proceedings of the 20th International Conference on Nucleation and Atmospheric Aerosols, p.2-14, 査読無

K. K. Tanaka, H. Tanaka, R. Angelil, and J. Diemand, Reply to "'Comment on 'Simple improvements to classical bubble nucleation models' '", Physical Review E, 94, 026802, 2016, 査読有  
<https://doi.org/10.1103/PhysRevE.94.026802>

R. Angelil, J. Diemand, K. K. Tanaka, and H. Tanaka, Homogeneous SPC/E water nucleation in large molecular dynamics simulations, J. Chem. Phys. 143, 0640507, 2015, 査読有  
<https://doi.org/10.1063/1.4928055>

K. K. Tanaka, Hidekazu Tnaka, R. Angelil, and J. Diemand, Simple improvements to classical bubble nucleation models, Physical Review E, 92, 022401, 2015, 査読有  
10.1103/PhysRevE.92.022401

〔学会発表〕(計 19 件)

田中今日子, 木村勇氣 過冷却水滴の結晶化理論モデル, 第 34 回 Grain Formation Workshop, KKR 京都くに荘, 2017 年 12 月 18-20 日

田中今日子, Juerg Diemand, 田中秀和、木村勇氣、Raymond Angelil, 27p-A03, 気相-固相転移の分子動力学シミュレーション: 気相の凝縮と過冷却液滴の結晶化による多段階核生成, 結晶成長国内会議、ホテルコンコルド浜松, 2017 年 11 月 27-29 日

田中今日子, 木村勇氣, 過冷却水滴の結晶化理論モデル、新学術領域「宇宙分子進化」全体集会, 明治大学, 2017年11月6-7日

田中今日子, 田中秀和, Juerg Diemand, Raymond Angelil, P4, 核生成過程の大規模分子動力学シミュレーション, 第7回計算統計物理研究会, 東北大学, 2017年9月25-26日

田中今日子, Juerg Diemand, 田中秀和, Raymond Angelil, Multistep Nucleation from Vapor-to-Solid in Molecular Dynamics Simulations, 地球惑星科学関連学会, 幕張メッセ, 2017年5月24日

田中今日子, Juerg Diemand, 田中秀和, Raymond Angelil, 気相から固相への多段階核生成の分子動力学シミュレーション, 物理学会, 大坂大, 2017年3月20日

田中今日子, 核生成過程の大規模分子動力学シミュレーション, 「自然科学における階層と全体」シンポジウム, 名古屋, 2017年2月14-15日 (招待講演)

田中今日子, 大規模分子動力学シミュレーションによる古典核生成理論の検証と改良, 計算機センター特別研究プロジェクト「結晶成長の数理」第11回研究会 核生成再考ー古典核生成理論を越えてー, 学習院大学, 2016年12月17-18日 (招待講演)

田中今日子, 田中秀和, Juerg Diemand, Raymond Angelil, 大規模分子動力学シミュレーションによる気泡の核生成過程および古典的理論の改良, プラズマシミュレータシンポジウム2016, 多治見, 核融合研究所, 2016年9月7日 (招待講演)

田中今日子, Raymond Angelil, 田中秀和, Juerg Diemand, 水の凝縮核生成の分子動力学計算, 低温物質の界面・ナノ現象ワークショップ2016, 札幌, 低温科学研究所, 2016年7月13日 2016/7/13

田中今日子, Juerg Diemand, 田中秀和, Raymond Angelil, 固体微粒子の凝縮・結晶化の分子動力学シミュレーション, 新学術領域「宇宙分子進化」全体集会, 札幌, 低温科学研究所, 2016年7月12日 2016/7/11-7/12

田中今日子, 田中秀和, Raymond Angelil, Juerg Diemand, 液相からの気泡核生成の大規模分子動力学計算による気泡表面張力の算出, 地球惑星科学関連学会 2016年合同大会, 千葉県幕張, 2016年5月20日 2016/5/20-5/25

木村 勇氣, 石塚 紳之介, 山崎 智也, 田中 今日子, 竹内 伸介, 稲富 裕光, 観測ロケット S-520-30号機を用いたアルミナとシリカの気相からの核生成実験, 地球惑星科学関連学会 2016年合同大会, 千葉県幕張, 2016/5/20-5/25

三浦 均、山本 哲生、野村 英子、中本 泰史、田中 今日子、田中 秀和、長沢 真樹子、降着衝撃波による氷ダスト表面吸着分子の昇華:脱離エネルギーが分布を持つ場合、地球惑星科学関連学会 2016 年合同大会、千葉県幕張、2016/5/20-5/25

田中 今日子、田中秀和、Juerg Diemand, Raymond Angelil, 水の凝縮核生成の大規模 MD 計算と核生成率のスケーリング, 日本物理学会第 71 回年次大会(2016 年), 東北学院大, 2016/3/19-22

田中 今日子、田中秀和、Juerg Diemand, Raymond Angelil, 液相からの気泡核生成の大規模分子動力学計算と古典的理論の改良, 第 29 回分子シミュレーション討論会、207S, 低温科学研究所, 2015/11/30-12/2

田中 今日子、田中秀和、Juerg Diemand, Raymond Angelil, 液相からの気泡核生成の大規模分子動力学計算と古典的理論の改良, 北海道大学低温科学研究所研究集会 衛星系研究会: 衛星系と噴火現象、低温科学研究所, 2015/7/21-7/22

田中 今日子、田中秀和、Raymond Angelil, Juerg Diemand, 水蒸気から液滴への均質核生成の大規模分子動計算, 地球惑星科学関連学会 2015 年合同大会, 千葉県幕張, 2015 年 5 月 27 日 2015/5/24-5/28

田中 今日子、田中秀和、Juerg Diemand, Raymond Angelil, 気泡核生成の大規模分子動力学計算と古典的核生成理論の改良, 地球惑星科学関連学会 2015 年合同大会, 千葉県幕張, 2015 年 5 月 25 日 2015/5/24-5/28

〔図書〕(計 0 件)

〔産業財産権〕  
出願状況(計 0 件)

取得状況(計 0 件)

〔その他〕

ホームページ等

北海道大学 プレスリリース 水の凝縮核生成の大規模分子動力学シミュレーション

[http://www.hokudai.ac.jp/news/150819\\_lowtem\\_pr.pdf](http://www.hokudai.ac.jp/news/150819_lowtem_pr.pdf)

## 6. 研究組織

### (1)研究分担者

研究分担者氏名:

ローマ字氏名:

所属研究機関名:

部局名:

職名:

研究者番号(8桁):

### (2)研究協力者

研究協力者氏名:

ローマ字氏名:

科研費による研究は、研究者の自覚と責任において実施するものです。そのため、研究の実施や研究成果の公表等については、国の要請等に基づくものではなく、その研究成果に関する見解や責任は、研究者個人に帰属されます。