

科学研究費助成事業 研究成果報告書

平成 26 年 6 月 18 日現在

機関番号：12102

研究種目：基盤研究(C)

研究期間：2011～2013

課題番号：23540462

研究課題名(和文)宇宙線によるイオン誘起核生成過程の加速器を用いた実験的研究

研究課題名(英文) Experimental study of ion induced nucleation process by cosmic rays using ion beams from accelerator

研究代表者

富田 成夫 (Tomita, Shigeo)

筑波大学・数理物質系・准教授

研究者番号：30375406

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 4,000,000円、(間接経費) 1,200,000円

研究成果の概要(和文)：宇宙線による液滴生成メカニズムは近年、宇宙線強度と地球環境との関連から、非常に注目を集めており、我々は従来、陽子線を用いた実験を行ってきた。

本研究では陽子線のかわりにコロナ放電を用い、再結合を抑制した環境下での実験を行い、陽子線の場合との比較を行った。N₂/H₂O/SO₂中での放電によって生成される液滴はSO₂酸化量にほぼ比例し、1ppbあたりおおよそ200000 particle/cc程度であった。これは陽子線によって得られた液滴生成量とほぼ同等であり、SO₂の酸化過程が液滴生成において非常に重要な役割を果たしていることを示している。

研究成果の概要(英文)：Nucleation process of water droplet by cosmic rays have been draw attentions because of possible link between cosmic ray intensity and climate. We had studied water droplet formation in N₂/H₂O/SO₂ using proton beam from accelerator.

In this study, We use corona discharge instead of proton beam. Corona discharge produce only positively charged ions thus recombination process can be ignored. The density of generated water droplets was almost proportional to the amount of oxidation of SO₂. The amount of produced particles are comparable with the case of proton beam. It seems that the oxidation of SO₂ is important process for the nucleation of water droplets in both case.

研究分野：数物系科学

科研費の分科・細目：物理学・原子・分子・量子エレクトロニクス

キーワード：放射線

1. 研究開始当初の背景

1997年にデンマークの Svensmark と Friis-Christensen が宇宙線強度と低層の雲による地球の被覆率の間の相関について報告して以来、宇宙線によるエアロゾル生成機構が大きな注目を集めている。彼らの報告が注目されたのは地球上の雲による被覆率が変化することにより地球の地表面反射率(アルベド)が変化し、これによって地球の熱収支がかわる可能性があるからである。これは太陽活動と地球環境の相関を考える際の重要な機構の一つとして考えられ、もし本当ならば、多くの古気候学で示されてきた太陽活動と地球環境との相関が説明できる可能性がある。

しかし、Svensmark らによって示された宇宙線強度と雲の量との間の相関がなぜ現れるのか、その機構は未だ解明されていない。(そもそも Svensmark らによって示された相関関係を懐疑的に見ている論文も多い。)いくつかの仮説の中のひとつとして挙げられているのが銀河宇宙線による微小液滴の生成である。銀河宇宙線によって、大気中のガスがイオン化され、このイオンによって雲の凝結核のもととなる微小液滴が生成される。この生成された微小液滴によって、大気中の凝結核であるエアロゾル濃度が変化し、これによって雲の生成量が変化するというものである。

この仮説には多くの未知の科学が含まれている。宇宙線による微小液滴の生成機構、微小液滴の雲の凝結核であるエアロゾルになるまでの成長過程、そして、エアロゾル濃度と雲による被覆率の解明、さらには、雲による被覆率とアルベドの変化などである。それぞれが複雑なプロセスであり、容易に解決できる問題ではない。本研究ではこの過程の初段階である銀河宇宙線による微小液滴の生成機構についての実験的研究を行った。

大気中における液滴生成において、注目されているのはイオン誘発核生成である。しかし、大気中における過飽和度は高々1.01程度であり、イオン誘発のみによる液滴生成はおきにくい。実際の大気中における核生成には H_2SO_4 などの大気中に含まれる微量ガスによる寄与が重要であると考えられている。大気中の H_2SO_4 はおもに紫外線によって生成されるOHラジカルが SO_2 を酸化することによって生成されることが知られている。液滴生成率 J は H_2SO_4 濃度に非常に強く依存し、 $J = k[H_2SO_4]^m$ とした場合、 m の値は5から10の大きな値を持つ。これは上述の臨界サイズの液滴中に含まれる H_2SO_4 分子の個数に対応する。このことから従来の実験では SO_2 を含むガスに紫外線を照射し、 H_2SO_4 を含む試料ガスを用意し、これに放射線を照射し、生成液滴を測定するのが一般的であった。最も大規模な実験としてはCERNにおけるCLOUD project があげられる。CLOUD project では銀河宇宙線による2次宇宙線を模擬した高エ

ネルギー粒子を試料ガスに照射し、照射による液滴生成量を測定している。現時点ではイオン誘発の効果による液滴生成率の上昇は観測されているものの宇宙線による雲の形成を説明するには十分な量ではないという立場をとるものが多い。

2. 研究の目的

一方、Svensmark らはガンマ線源や電子線を用いた液滴生成実験を行っている。高エネルギー宇宙線による大気成分のイオン化が種々の化学反応を引き起こすことによって液滴が生成されるとするならば、放射線のエネルギーや粒子による相違はないため、CERNのような大実験施設を用いなくても、同様な基礎実験を遂行することが可能である。Svensmark らの実験によると放射線によって液滴の生成率が大きくなり、測定された生成率は既存の H_2SO_4 を含む核生成理論では説明できないことが示されている。彼らは放射線によって生成されたイオン、特に負イオンによる試料ガス中での SO_2 の酸化過程に注目している。

我々のグループでは従来、陽子線による液滴生成の実験を行い、 SO_2 の放射線による酸化およびその液滴生成に対する寄与を明らかにするため、あえて試料ガスに H_2SO_4 を含まず、 SO_2 の酸化過程およびそれに伴う液滴生成に注目してきた。本研究では液滴生成におけるイオンの役割にさらに注目するため、対消滅を抑制した状況下での液滴生成について研究を行った。 SO_2 酸化による硫酸生成が主に寄与しているとすれば、生成される液滴粒子数は再結合の有無にかかわらず SO_2 消費量に依存すると考えられる。

3. 研究の方法

実験装置を図1に示す。従来の実験では加速器から得られる陽子線を利用し、液滴の生成を行っていたのに対し、本研究ではコロナ放電を用いた。これは陽子線の場合、陽子線によってイオン化された正イオンと、イオン化によって生成された自由電子が付着した負イオンの両方が存在するのに対し、コロナ放電の場合には放電で生成された自由電子および負イオンはすぐに放電電極に吸収されるため、試料ガス中で液滴生成に寄与するのは主に正イオンであると考えられる。

コロナ放電用の針状電極には志賀昆虫普及社製の先端での曲率半径約 $1\mu m$ のものを用い、対抗電極までの距離を5mmとし、対抗電極には3mmの穴のあいた厚さ0.5mmの円盤状の電極を設置した。放電のための印加電圧は3~5kVであり、放電電流は0~6 μA で実験を行った。

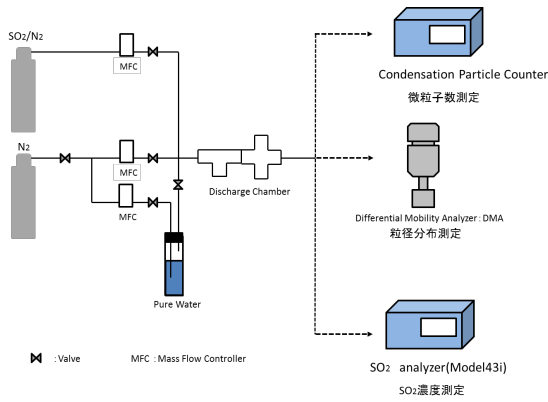


図 1 実験セットアップ

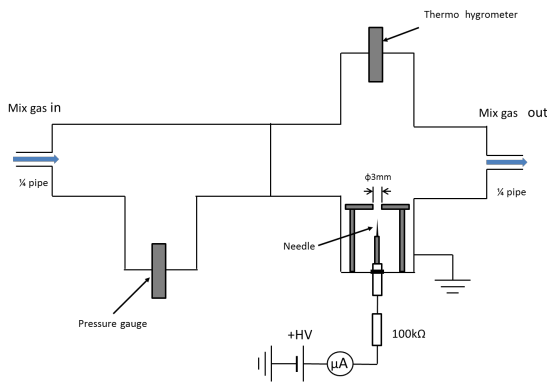


図 2 放電チャンバー概念図

コロナ放電によって生成された液滴粒子の粒径分布測定は DMA(Differential Mobility Analyzer)によって行った。DMA を用いて帯電粒子の移動度を測定し、Stokes-Cunningham の式を用いることにより移動度から粒径を求めた。DMA では帯電液滴の情報しか見えないため、生成した液滴粒子の総量は CPC(Condensation Particle Counter)を用いて測定した。一方、放電による SO_2 酸化量を計測するために、試料ガスは蛍光型 SO_2 計によって、放電の有無による濃度変化を測定した。

4. 研究成果

図 3 に放電による SO_2 濃度の変化を示す。図から見て明らかなように SO_2 濃度は放電の有無によって明らかに減少しており、コロナ放電を用いても陽子線照射の場合と同様に SO_2 の酸化が起きていることが確認された。このことから、 SO_2 の酸化は負イオンのみならず、正イオンおよび中性のラジカルによる寄与もあることが分かった。

図 4 にコロナ放電によって得られた液滴の移動度分布(粒径分布)を示す。試料ガスの SO_2 濃度が高くなると、同じ放電電流でも液滴の生成量が大きくなり、分布も電気移動度の小さいほう(粒径の大きいほう)にシフトしていることが分かる。これらの結果の示す傾向は陽子線のとときとほぼ同じ傾向である。陽子

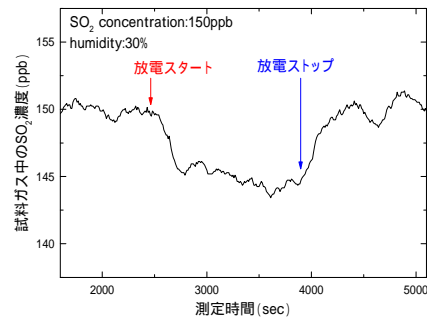


図 3 SO_2 濃度の放電による変化。試料ガスの SO_2 濃度は 150ppb、湿度 30%、放電電流は $4\mu\text{A}$ である。

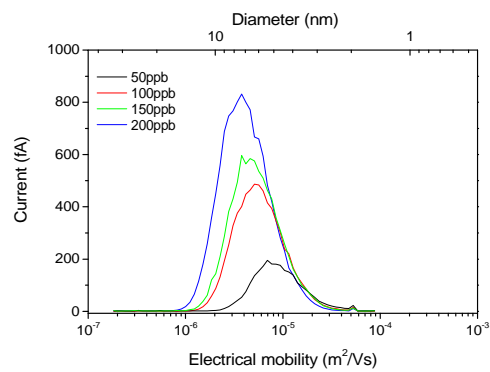


図 4 帯電液滴の電気移動度分布。試料ガスの湿度は 30%、放電電流は $4.0\mu\text{A}$ 、 SO_2 濃度は 50(黒)、100(赤)、150(緑)、200ppb(青)である。

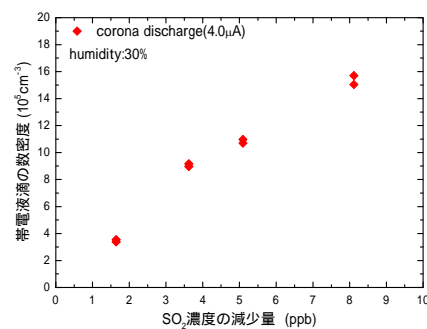


図 5 放電によって酸化された SO_2 濃度の変化量に対する生成された液滴濃度。試料ガスの湿度は 30%、放電電流は $4\mu\text{A}$ である。照射前の SO_2 濃度を変化させることによって SO_2 消費量を変化させている。

線のとくと異なるのは陽子線の場合は陽子線強度に依存して SO₂ 酸化量、液滴生成量が変化したが、コロナ放電では放電電流依存性が顕著には現れなかった。

図 5 に放電による SO₂ 濃度の変化量に対する生成された液滴の密度を示す。生成される液滴の密度は SO₂ 濃度の変化量にほぼ比例することが分かった。この結果は陽子線に対して得られたものと同じ傾向にあり、SO₂ が放電によって生成されたラジカルによって酸化され、液滴生成に重要な寄与していることを示していると共に、酸化剤の違いによる液滴生成率への差異は少ないことが示唆されていると考えられる。また、同様の測定を CPC を用いて行い、同程度の液滴収量が得られることを確認した。また、同じ SO₂ 消費量での陽子線の結果と比較しても今回得られた液滴の密度は同程度であった。

陽子線を用いた実験でも同じ SO₂ 消費量に対して同等の液滴が生成されていたことから、SO₂ の酸化が液滴生成の重要な過程であることは間違いないと思われる。陽子線の場合、正負の両イオンが存在するのに対して、正イオンしか存在しないコロナ放電でも酸化量に対する液滴収量に大差がなかったことは液滴の凝集過程と SO₂ の酸化過程は分けて考えられることを示唆するが、一方、H₂SO₄ による Binary Nucleation とはまったく異なる依存性を示すことから、SO₂ による酸化過程の詳細を明らかにする必要がある。SO₂ の酸化におけるイオンの役割は重要であると予想されるものの、その詳細は未だはっきりしない。

現在、我々はこれらの研究結果を踏まえ、SO₂ の酸化について、とくに酸化剤について明らかにするため、液滴中に含まれる H₂SO₄ の採取を行い、同位体分析をおこなう実験を計画している。これにより、酸化反応の詳細についてイオンの役割を明らかにしていく方針である。

5. 主な発表論文等

(研究代表者、研究分担者及び連携研究者には下線)

〔雑誌論文〕(計 0 件)

〔学会発表〕(計 4 件)

富田成夫、「Oxidation of SO₂ and Water Droplet Formation in N₂/H₂O/SO₂ and Air/H₂O/SO₂ by Irradiation of 20 MeV protons」[宇宙気候研究会]、2014年4月3日、名古屋

富田成夫、「宇宙線と地球環境 - 宇宙線による大気化学 - 」、「工学研究所附属量子理工学研究センター第14回公開シンポジウム」、2013年10月19日、京都

富田成夫、「N₂/H₂O/SO₂ 中での 20MeV

陽子線による液滴生成量と SO₂ 消費量との関係」、「宇宙線による雲核生成機構の解明 - ラボ実験とフィールド観測からのアプローチ」、2013年7月12日、名古屋

Shigeo Tomita, “Correlation between Consumption of SO₂ and Nucleation Rate in N₂/H₂O/SO₂ by Irradiation of 20 MeV protons”, The 2nd Nagoya Workshop on the Relationship between Solar Activity and Climate Changes”, 2012 Jan 15-16, Nagoya, Japan

〔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
<http://ilab.bk.tsukuba.ac.jp/>

6. 研究組織

(1) 研究代表者

富田 成夫 (TOMITA, Shigeo)
筑波大学・数理物質系・准教授
研究者番号：30375406

(2) 連携研究者

中井 陽一 (NAKAI, Yoichi)
独立行政法人理化学研究所・櫻井 RI 物理研究室・専任研究員
研究者番号：30260194

小原 ひとみ (KOBARA, Hitomi)
独立行政法人産業技術総合研究所・環境管理技術研究部門・研究員
研究者番号：20344195

笹 公和 (SASA, Kimikazu)
筑波大学・数理物質系・准教授
研究者番号：20312796