

平成21年 5月28日現在

研究種目：基盤研究（C）

研究期間：2007-2008

課題番号：19540412

研究課題名（和文） 高速荷電粒子による液滴生成

研究課題名（英文） Droplet formation by the irradiation of fast charged particles

研究代表者 富田 成夫（Tomita Shigeo）

筑波大学・大学院数理物質科学研究科・講師

研究者番号：30375406

研究成果の概要：

本研究では加速器を用い、試料ガスに高速荷電粒子を照射し、それによる液滴生成機構についての実験的研究を行った。試料ガス中のSO₂による液滴生成の促進効果を確認し、さらに種々のガス成分中での液滴の生成率を評価した。その結果、液滴収量は高エネルギー荷電粒子によって発生された初期イオン密度ではなく、再結合後のイオン密度に比例していることが実験的に発見された。高エネルギー荷電粒子による液滴生成過程においてのイオンの役割を示唆する重要な結果がえられた。

交付額

（金額単位：円）

	直接経費	間接経費	合計
平成19年度	2,800,000	840,000	3,640,000
平成20年度	600,000	180,000	780,000
年度			
年度			
年度			
総計	3,400,000	1,020,000	4,420,000

研究分野：放射線物理

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・プラズマ

キーワード：放射線、クラスター、原子・分子、加速器、気候変動

1. 研究開始当初の背景

2002年にサイエンス誌に宇宙線の強度変化と地球上空の雲量（雲によって覆われた割合）の変化には強い相関関係があることが報告された。これは宇宙線により生成されたイオンが雲の生成に深く関わっていることを示唆す

る。この宇宙線の強度変化によるものと思われる雲の量の変化(1.7%)は地球の熱収支に置き換えると1.2W/m²に相当する。これは産業革命以来のCO₂増加による熱収支の増加量の推定値1.4W/m²に匹敵する。このことから、宇宙線強度の変化が地球温暖化の一要因になって

いる可能性が指摘されている。宇宙線による雲の形成のメカニズムは未だ明らかになっていない。原子核実験で用いられる霧箱のように宇宙線によってイオン化された大気成分が核となって液滴の生成が起こることが想像されるが、霧箱中の成分の過飽和度は非常に高いもの(約300%)であり、自然界で通常おこる過飽和度(約100%)とは大きく異なっている。通常の過飽和度では液滴として成長するためには直径100 nm程度の液滴Cloud Condensation Nuclei (CCN)の生成が必要であるが、イオン化された成分が存在するだけでは直径1nm以下のUltra fine Condensation Nuclei (UCN)が生成されるだけであり雲粒として成長するには不十分である。このことから、宇宙線強度と雲量の相関を説明するためには通常の成長過程のほかに、たとえば、ion-ion aggregation processなどの寄与が必要となるがその詳細は未知であった。

2. 研究の目的

本研究の目的はUCNからCCNへの高速荷電粒子照射下での生成プロセスを解明することである。本研究では加速器による陽子線を用いて大気中での液滴生成の実験的シミュレーションを行い、宇宙線によるUCNおよびCCNの成長過程のプロセスを解明を試みた。

3. 研究の方法

実験は筑波大学研究基盤総合センター応用加速器部門のペレトロン12UDタンデム加速器を用いて行った。加速器から得られる20MeV陽子ビームを容器内に用意した水分を含む大気圧のガス中に導入する。陽子線によって生成された液滴は理化学研究所ナノ物質工学研究室において開発されたDifferential Mobility Analyzer (DMA) を用いて粒径の選

別を行い、液滴の生成量はファラデーカップを用いて測定する。このDMAを用いることによって直径0.3nm程度以上の大きさの液滴を $10^4/\text{cm}^3$ 程度の数密度から測定することができる。

加速器から得られた陽子ビームはカプトン膜の窓を透過させ大気中に取り出す。取り出された陽子ビームは容器中に含まれるガスを透過する。DMA装置には2L/min程度のガス流量でサンプルガスを導入し、液滴の粒径を測定を行った。

4. 研究成果

trace gas を含まない場合の液滴生成機構における、正負イオンの役割について陽子線を用いた場合とコロナ放電を用いた場合の差から、議論を行った。その結果、大気中での液滴生成は正負荷電状態の微小液滴による融合課程の反応率がクーロン引力によって増加することによって促進されていることが示唆された。この結果については、国際会議において発表を行った。

また、trace gas として SO_2 を含んだ実験をおこない、液滴の生成に関する SO_2 の役割について定量的な議論をおこなった。定量性を高めるためにビームモニター用のFaraday Cupの改良を行い、種々のガス成分中での液滴の生成率を評価した。その結果、液滴収量は高エネルギー荷電粒子によって発生された初期イオン密度ではなく、再結合後のイオン密度に比例していることが実験的に発見された。これは高エネルギー荷電粒子による液滴生成過程においてのイオンの役割を示唆する重要な結果である。この結果については横浜で行われた国際会議において発表し、一定の評価を得た。これは SO_2 の大気中での酸化過程が重要な反応であり、この酸化過程における液滴の役割に注目している。これは産業

排出ガス中に含まれる SO₂ のコロナ放電による除去や、酸性雨など環境科学問題に密接にリンクしており、重要な課題であると考えている。

さらに、ガス成分の違いによる効果を確認するために N₂、Ar、大気ガスの三成分に対して同じ実験を行い、生成される液滴のサイズ分布および終了についての比較を行った。現在、確認段階ではあるが、ガス成分による差は大きくないという結果が得られている。これは H₂SO₄ の生成過程そのものにイオンの効果があることを示唆しているものと現段階では考えている。この結果については現在追実験で確認中であり、確認されたのちには速やかに原著論文として発表する。

一方、上記の結果からイオンの役割の重要性は示唆されるものの、いまだ、H₂SO₄ が放射線によって合成されたことによる中性での液滴生成の可能性を排除することはできず、イオンによる液滴生成の確たる証拠を得たとはいえない。これらのプロセスを明らかにするために我々は ESI との複合型の質量分析装置の開発を目指してきたが、上記の FC の改良などの計画の方向性の修正などにより、こちらの作業は残念ながら研究期間内に完成させることはできなかった。この装置の開発は今後も継続して行い、液滴生成のみではない種々の放射化学的研究に利用していく予定である。

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)

[学会発表] (計 8 件)

1. Shigeo Tomita, Masashi Imanaka, Suguru Kanda, Mitsuteru Fujieda, Masahiro Matsuoka, Kimikazu Sasa, Hiroshi Kudo

Nano-particle formation in H₂O/SO₂/N₂ by the irradiation of 20 MeV protons
International workshop on Variabilities of Solar-Cosmic and Terrestrial Environment

2008 年 12 月 4-6 日 Yokohama Japan

2. 松岡正紘、藤枝光輝、神田俊、今中雅士、笹公和、冨田成夫、工藤博

N₂/H₂O/SO₂ 中でのイオン誘起液滴生成

日本物理学会 2008 年秋季大会

2008 年 9 月 20 日~23 日

岩手大学上田キャンパス

3. 松岡正紘、藤枝光輝、神田俊、今中雅士、笹公和、冨田成夫、工藤博

イオン照射による SO₂ からの液滴生成

原子衝突研究協会第 33 回研究会

2008 年 8 月 5 日-7 日

北海道大学低温科学研究所

4. 冨田成夫、今中雅士、神田俊、藤枝光輝、笹公和、工藤博

20 MeV 陽子線による液滴生成

原子衝突研究協会第 32 回研究会

2007. 8. 22-24 東京工業大学百年記念館

5. 今中雅士、冨田成夫、神田俊、藤枝光輝、笹公和、工藤博

20MeV 陽子線照射およびコロナ放電による水液滴の生成

第 24 回 エアロゾル科学・技術研究討論会

2007. 8. 9-11 国立保健医療科学院

6. 冨田成夫

陽子線照射による液滴生成

日本物理学会第 63 回年次大会

2008. 3. 22-26 近畿大学

7. Masashi Imanaka, Suguru Kanda,
Mitsuteru Fujieda, Shigeo Tomita and
Hiroshi Kudo

Water droplet formation in H₂O/N₂ mixture
under irradiation of 20 MeV proton beam and
corona discharge

AAAR 26th Annual Conference

2007. 9. 24-28 Reno, Nevada

8. S. Tomita, M. Imanaka, S. Kanda, M.
Fujieda, K. Sasa, H. Kudo

FORMATION OF NANODROPLETS FROM N₂/H₂O BY
IRRADIATION OF 20 MeV PROTONS

20th International Symposium on Ion -Atom
Collisions

2007. 8. 1-4 Agios Nikolaos, Crete, Greece

6. 研究組織

(1) 研究代表者

富田 成夫 (Tomita Shigeo)
筑波大学・大学院数理物質科学研究科・講師
研究者番号：30375406

(2) 研究分担者

今中 雅士 (Imanaka Masashi)
理化学研究所ナノ粒子測定技術研究チーム・基礎科学特別研究員
研究者番号：00415085

(3) 連携研究者

笹 公和 (Sasa Kimikazu)
筑波大学・大学院数理物質科学研究科・講師
研究者番号：20312796

工藤 博 (Kudo Hiroshi)
筑波大学・大学院数理物質科学研究科・教授
研究者番号：40111364