

IIII 結晶成長その場観察 IIIII  
(解説)

観測ロケット S-520-28 号機を用いた微小重力下における  
宇宙ダストの核生成実験の概要

木村 勇気<sup>1,2</sup>・田中 今日子<sup>1</sup>・左近 樹<sup>3</sup>・野沢 貴也<sup>4</sup>・三浦 均<sup>5</sup>  
塚本 勝男<sup>2</sup>・竹内 伸介<sup>6</sup>・稲富 裕光<sup>6</sup>

Nucleation Experiment of Cosmic Dust under Microgravity using  
a Sounding Rocket S-520-28

Yuki KIMURA<sup>1,2</sup>, Kyoko K. TANAKA<sup>1</sup>, Itsuki SAKON<sup>3</sup>, Takaya NOZAWA<sup>4</sup>,  
Hitoshi MIURA<sup>5</sup>, Katsuo TSUKAMOTO<sup>2</sup>, Shinsuke TAKEUCHI<sup>6</sup> and Yuko INATOMI<sup>6</sup>

Abstract

We performed microgravity experiments of homogeneous nucleation of iron from the vapor phase using the sounding rocket S-520-28 on December 17, 2012. The purpose is determination of a sticking probability of iron during the nucleation from the supersaturated vapor, because the sticking probability is one of the most uncertain physical quantities to understand the formation process of cosmic dust based on nucleation theories. We prepared the specially designed Mach-Zehnder-type interferometers with an evaporation chamber and camera recording systems to fit the space and weight limitations of the rocket. Three same systems, named DUST 1 to 3, were installed into the rocket. Iron was evaporated in an argon gas and then it was cooled and nucleated to form nanoparticles. The temperature and concentration of iron vapor at the nucleation site are determined from the movement of the interference fringe. Here, we present the brief summary of the experiments and the preliminary results of the homogeneous nucleation from iron vapor under microgravity.

**Keyword(s):** Nucleation, Cosmic Dust, Interferometry

1. はじめに

宇宙空間に普遍的に存在するナノメートルサイズの宇宙ダストは、主として星からの紫外線光子を吸収して暖められ、赤外線波長域で再放射することで、宇宙におけるエネルギー収支を担っている。また、宇宙ダストは惑星の原材料となると同時に、我々生命の起源を探る上で鍵となる、複雑な分子が生成するために必要な化学反応表面を提供する。従って、宇宙ダストの生成過程とその

後の進化を解明し、その組成やサイズ、質量を明らかにする事は、惑星科学や天文学における重要な課題である。天文学者は、恒星周囲の環境を“宇宙の実験場”とみなし、まさに宇宙空間でダストが核生成している場所を、主に赤外線で観測している。宇宙ダストの生成過程は、この観測結果とバルク物質の物理定数に基づいた核生成の理論計算とを比較することにより議論される。しかしながら、表面自由エネルギーと吸着係数の二つの物理定数には大きな不定性がある。この不定性は理論計算から

- 
- 1 北海道大学 低温科学研究所 〒060-0819 札幌市北区北19条西8丁目  
Institute of Low Temperature Science, Hokkaido University, Kita 19, Nishi 8, Kita-ku, Sapporo 060-0819 Japan
- 2 東北大学大学院 理学研究科 〒980-8578 仙台市青葉区荒巻字青葉6-3  
Graduate School of Science, Tohoku University, Aoba 6-3, Aramaki Aza Aoba, Aoba-ku, Sendai 980-8578 Japan
- 3 東京大学 天文学教室 〒113-0033 東京都文京区本郷7-3-1  
Department of Astronomy, Graduate School of Science, The University of Tokyo, Hongo 7-3-1, Bunkyo-ku, Tokyo 113-0033 Japan
- 4 国立天文台 理論研究部 〒181-8588 東京都三鷹市大沢2-21-1  
Division of Theoretical Astronomy, National Astronomical Observatory of Japan, Osawa 2-21-1, Mitaka, Tokyo 181-8588 Japan
- 5 名古屋市立大学大学院 システム自然科学研究科 〒467-8501 名古屋市瑞穂区瑞穂町山の畑1  
Graduate School of Natural Sciences, Nagoya City University, Yamanohata 1, Mizuho-cho, Mizuho-ku, Nagoya 467-8501 Japan
- 6 宇宙航空研究開発機構 宇宙科学研究所 〒252-5210 神奈川県相模原市中央区由野台3-1-1  
Institute of Space and Astronautical Science, Yoshinodai, Sagami-hara, Kanagawa 229-08510 Japan  
(E-mail: ykimura@lowtem.hokudai.ac.jp)

観測結果を解釈する上で大きな影響を及ぼす。そのため、天体進化に伴う宇宙ダストの成長や変質を理解する上で、ガスから最初に生成するダストの特徴は定まらず、不確かなものになっている。そこで、我々は核生成理論を用いたモデル化に必須の物理定数を決定するために、宇宙ダストと同様に、ガスから固体微粒子を生成できるガス中蒸発法に着目して、核生成の研究をスタートさせた。

ガス中蒸発法は、1962年に久保亮五の「金属微粒子中の伝導電子のエネルギー準位は離散化する」という理論的研究<sup>1)</sup>をきっかけに、数 nm から 100 nm サイズの超微粒子の生成とその特異現象の解明を目的に、上田良二や堀内千尋らによって活発に行われ、メソスコピック系の物理として発展した<sup>2,4)</sup>。その過程で、透過電子顕微鏡の進歩もあり、超微粒子の成長、変成、結晶化などのプロセスが明らかになり、これらは超微粒子特有の現象として知られるようになった。近年では、超微粒子はナノ粒子と呼ばれて、バルクと異なる物性を持つことが広く認知されている。一方で、ガス中蒸発法によるナノ粒子生成時の核生成に関しては、半世紀の間ほとんど手つかずの状態であった。我々は最近、気相からの核生成過程と宇宙ダストの生成過程の解明を目的に、干渉計を用いて核生成の現場を“その場”観察する実験をスタートさせた。それにより、気相からのナノ粒子の生成においては、“超高過飽和の環境で、均質核生成を経て高速に生成する”ことや、“固体の粒子同士が液滴のように融合する成長は、二分子間の解離エネルギーが大きな物質でより頻繁に起こる”こと、“結晶多形は核生成時ではなく、後の成長過程で決まり得る”ことなどを示してきた<sup>5,7)</sup>。ここで、核生成過程や宇宙ダストの生成過程をより詳細に知るためには、微小重力実験が必要だということが分かってきた。

宇宙ダストの主要な形成メカニズムとして、年老いた星が大量にまき散らす恒星放出ガス中で原子・分子が凝集する過程が広く信じられている。流体力学において、レイノルズ数が同じ系は物理的に同様に扱えるのと同じ様に、宇宙ダストの生成過程は冷却の時間スケールと衝突頻度が相似形であれば、同様に取り扱えることが知られている<sup>8,9)</sup>。地上重力環境下での原子・分子の凝集過程では、個々の原子・分子に及ぼす重力効果は小さいが、ガス雰囲気中の濃度勾配、温度勾配によって巨視的な密度差対流がもたらされる。それゆえ、対流により冷却速度は大きくなり、現在の主なダスト供給源と考えられている、超新星や晩期型巨星でのダスト生成条件を再現できていない可能性がある。微小重力実験では、密度差対流の効果は小さく、宇宙ダストの生成環境と相似形の実験ができるため、核生成温度を直接観測と対応させることが可能となる。その結果、その温度や過飽和度条件での物理定数を求めることができ、宇宙ダストの生成過程の解明の決定打に成り得る。また、対流中では粒子同士の融合成長が促進されて、粒子サイズが大きくなることが考えられるため、

吸着係数が過大評価される危険性がある。そこで我々は、このモチベーションの下で観測ロケットを用いた微小重力実験を行った。

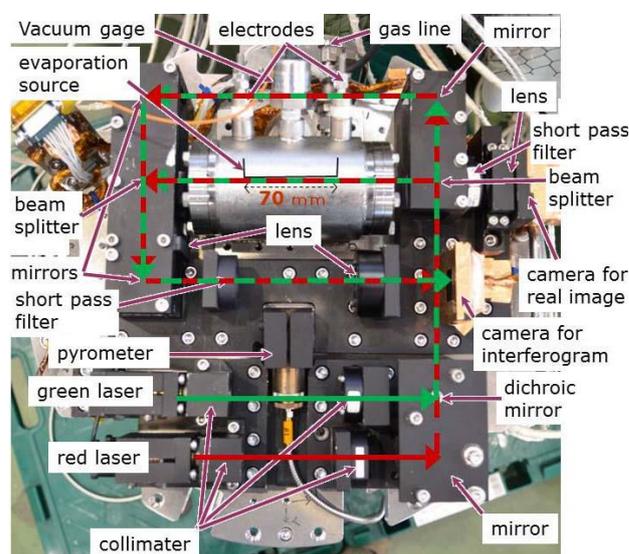
今回の観測ロケット S-520-28 号機を用いた実験では、宇宙ダストの主要物質の中で、最もシンプルかつ豊富に存在する鉄に注目し、核生成時における鉄の物理定数を求めることを目的とした。ここでは、詳細な結果は他に譲り、実験データを得るまでの過程を中心に述べる。

## 2. 実験システム

### 2.1 核生成実験の手法

先に述べたように、核生成時の物理定数を求めるために、宇宙ダストと同様にガスから固体微粒子を生成できる、ガス中蒸発法と呼ばれる手法を用いた。ここに二波長干渉計を導入することにより、微小重力下で核生成する際の温度と圧力（過飽和度）を同時に決定し、二つの核生成理論モデルと比較することで、物理定数を決定する。

観測ロケットを用いた微小重力実験では、限られたスペースと重量の制限の中で実験装置を用意する必要がある。我々は Fig. 1 に示す核生成用チェンバーと二波長マッハツェンダー干渉計、カメラ記録部を備えた実験システムを、直径 420 mm のアルミ製ベースプレート上に配置した。同様の構成で三組の装置を観測ロケット実験用

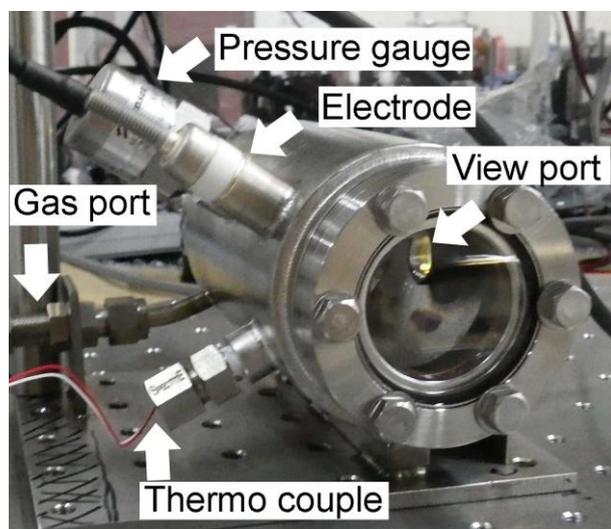


**Fig. 1** A photograph of the double wavelength Mach-Zehnder-type interferometer with an evaporation chamber. Red and green arrows show the optical path. The evaporation source, which is an iron wire (0.1 mm $\phi$  and 10 mm in length) wrapped around a tungsten wire (0.3 mm $\phi$ ), prepared in the nucleation chamber has been drawn by a black solid line.

に作製し, それぞれ DUST 1, DUST 2, DUST 3 と名付けた. 実験条件の違いは 2.3 節で述べる.

## 2.2 核生成チェンバー

Figure 2 に示す SUS 製の核生成用チェンバーは, 内径 6.5 cm, 長さ 15 cm の円筒形で両端に ICF-70 のビューポートを備えており, ここからレーザーを導入して干渉縞を得る. また, ショートカットフィルターを用いてビームスプリッター越しに, 実像も合わせて CCD カメラで“その場”観察する. チェンバーの中央には, 放射温度計 (Hazama Sokki Co. Ltd., ISQ5-LO) を用いて蒸発源温度を測定するために ICF-34 のビューポートをもう一つ取り付けている. その他に, 熱電対による温度測定用と圧力測定用, 真空排気とガス導入のためのポートをそれぞれ準備した. 直径 0.1 mm のクロメル-アルメル熱電対 (Tecsam CO. LTD., WF-1/8"PT -0.8-2-T -TK-1000mm/150mm と ANBE SMT Co., KMT-100-100-050 の組み合わせ) の先端は絶縁処理を施すことで, 蒸発源の根元の温度を直接計測した. チェンバー内の全圧測定は, 実験条件に合わせて特別に測定範囲を調整した高精度小型圧力センサ (Sensez Co., HAV-60KP-V) を用いた. チェンバーの真空排気およびガス導入は, バルブ (Swagelok Co., 6LVV-DPBW4-P1) を取り付けた 1/4 ス



**Fig. 2** A photograph of the nucleation chamber, which has a pressure gauge, two electrodes for heating of the evaporation source, view ports of ICF-70, thermo couple to measure the temperature of the edge of the evaporation source, and gas port for evacuation and gas inlet. There is another view port of ICF-34 for temperature measurement of the evaporation source by pyrometer indicated by an arrow with a term of “view port”.

テンレスチューブから行った. バルブは取っ手を外して特注の治具で開閉可能にし, 1/4 ステンレスチューブにはクイックコネクツを使用することで, ロケットの外壁に準備した操作口からレートアクセスできるようにした. ガス導入系は, 三つの核生成チェンバーそれぞれ独立に準備し, バルブは DUST2 のベースプレート裏面に集約した.

核生成チェンバーはターボ分子ポンプ (Osaka Vacuum, Ltd., TG50F, 50 L/s) とスクロールポンプを (ULVAC Kiko Inc., DIS-90) 組み合わせて真空排気を行った.

## 2.3 蒸発源

蒸発源には直径 0.3 mm, 長さ 68 mm のタングステン線 (Nilaco Co., 99.95% purity) に直径 0.1 mm, 長さ 100 mm の鉄線 (Nilaco Co., 99.5% purity) を巻いたものを使用した. 蒸発源は二つの電極間 (Kawaso Texcel Co., PF-SM6-3KV-10A) に電流を流すことで, 抵抗加熱によって昇温した. 平均自由行程を下げる目的で, バッファガスとして導入するアルゴン (>99.9999% purity) の屈折率はとても小さいので  $[(n-1)_{Ar} = 5.266 \times 10^{-5} \pm 0.016 \times 10^{-5} \text{ at } 632.8 \text{ nm and } 293.15 \text{ K for } 2.0 \times 10^4 \text{ Pa}]^{10}$ , 柱密度をかせぐために, 蒸発源はレーザーの光路に対してできるだけ長く平行 ( $< 4 \times 10^{-4} \text{ rad}$ ) になるように設置した. これにより, 今回の実験条件では,  $\sim 1 \times 10^{-6}$  以下のわずかな屈折率の変化でも捉えられる. これは, DUST 2 に導入した  $2 \times 10^4 \text{ Pa}$  のアルゴンガスの温度が 298 K から 301 K に変化したときの屈折率の違いに相当する.

## 2.4 光学系

チェンバー内のガスの屈折率は, 温度だけでなく, 鉄蒸気の濃度にも依存する. 観測ロケットに搭載したマツハツエンダー干渉計には, 532 nm の偏光緑レーザー (Shimadzu Co., Compact green laser module, 10 mW BEAM MATE HK-5616) と 635 nm の赤レーザー (Edmund Optics Inc., 4.5mW Continuous Wave Circular Beam Laser Diode Module) の, 異なる波長のレーザーを二つ用いることで, 温度と鉄の濃度の同時決定に成功した. 得られた干渉縞は, ローパスフィルターを外したカラーボード CCD カメラ (Moswell Co., Ltd, MS-88HCS) によって記録した. 画像は 4 分割した左上を干渉像, 右上を実像とし, 下段はファイルサイズの圧縮効率を高めて, 転送レートを上げる目的で使用しなかった. 画像圧縮には, Sensoray 社 Model2255 フレームグラバーのハードウェア JPEG 圧縮機能を使用し, OpenSUSE 12.2 をインストールした Congatec 社 CAx CPU ボードにて JPEG ファイルを取込後, Actel 社 FPGA ボード M1A3PL を介してテレメータ (送信機) に出力している. その結果, 実験中には  $\sim 5$  フレーム/秒で転送することができた. また, 一連の実験終了後に逆再生モードで, ライブ像のフレーム間を補完する形で, さらに  $\sim 5$  フレーム/秒の映像

を記録した。最終的な“その場”観察像の空間分解能とカメラレートは、それぞれ~45 μm と~10 フレーム/秒であった。

抵抗加熱によって鉄を蒸発させると、干渉縞は温度と濃度に依存して変化する。二波長それぞれの干渉縞の変位量と、圧力計で測定した全圧を用いることで、アルゴンガスの温度と分圧、鉄蒸気分圧を決定できた。圧力計の精度は±13.3 Pa で、核生成温度付近 (~1100 K) の温度の精度は±6.5 K である。金属タングステンの平衡蒸気圧は 2508 K で 10<sup>-5</sup> Pa であり、同じ温度の鉄の 9.7 × 10<sup>4</sup> Pa と比べて 9 桁以上低いので、タングステンの分圧は無視できる。

### 2.5 実験条件

三組の実験システムの違いは、蒸発源と雰囲気ガスである。DUST 1 は鉄線を巻かずに、アルゴンと酸素の混合ガスとして酸化タングステンの核生成実験を行い、DUST 2 と 3 はそれぞれ 2.0 × 10<sup>4</sup> Pa と 4.0 × 10<sup>4</sup> Pa のアルゴンガスを導入し、鉄の核生成実験を行った。

実験はすべて事前にセットした条件で、全自動で行われ、テレメトリーでデータだけを地上で受け取る。ガスの擾乱の影響を小さくするために、蒸発源の加熱は打上げ後 100 秒経ってから、DUST 1 から順に行った。蒸発源では、電極に与える電圧は 60 秒かけて 8.6 V まで上げた後に、5 秒間保持してから切れるようにして加熱を行った。蒸発源の抵抗加熱は、DUST 1-3 でそれぞれ打上げ後 105, 180, 255 秒後に始まり、170, 215, 320 秒後に終わった。蒸発した酸化タングステンまたは鉄は等方的に拡散し、冷えて過飽和になった後に核生成を経てナノ粒子へと成長すると期待しており、その際の干渉縞の変化から核生成温度と濃度を決定する。

### 3. 結果

Figure 3 に実験シーケンスと実験中の機軸方向の重力加速度の変化を示す。DUST 2 のベースプレート上に取り付けられた三軸加速度計 (Silicon Designs Inc., Model 2470-002) で計測した平均加速度は (6.3 ± 0.8) × 10<sup>-4</sup> G であった。Figure 3 中の矢印 D に示す重力変化は Yo-Yo 展開によるものであり、これにより観測ロケット本体の回転は 0.018 Hz に抑えられた。2011 年度には航空機を用いた微小重力実験を行ったが、重力環境は±10<sup>-2</sup> G のオーダーでふらつき、高温ガスはその重力変化に追従するために、ガスの濃度場と温度場は不均質になった。観測ロケット実験における微小重力環境は 10<sup>-4</sup> G のオーダーを達成でき、高温のガスから静かな環境で均質核生成がおこる過程を“その場”観察できる、より理想的な条件が得られることが分かった。ここで、航空機を用いた実験では、実験物質を持ち帰ることができるので、生成粒子のサイズや数密度、結晶構造を後から分析可能である。そのために、生

成物質を確認しながら、天体周囲での宇宙ダストの核生成と直接対応させられるという、観測ロケットにはない有用性があることは述べておきたい。

Figure 4 に蒸発源温度の違いに応じた DUST 2 の干渉像を示す。a は加熱前であり、b から h はそれぞれ蒸発源温度が 1000 K, 1200 K, 1400 K, 1600 K, 1800 K, 2270 K, 2290 K の時の干渉縞である。蒸発源温度を上げると、周囲のアルゴンガスの温度が上がることで、ガス密度が小さくなり、結果的に屈折率の減少へとつながる。その結果、Fig. 4 中の黒と白の矢印で示すように、干渉縞は右下方方向に動く。この時、アルゴンガスの屈折率、 $n_{Ar}(T,P)$  は、温度  $T(K)$  と圧力  $P_{Ar}(Pa)$  の関数として式(1)の様に書ける。

$$n_{Ar}(T,P) - 1 = \frac{[n_{Ar}(27315, P_0) - 1] P_{Ar}}{1 + a\Delta T P_0} \quad (1)$$

ここで、 $a$  は体膨張率 (0.003663 K<sup>-1</sup>)、圧力  $P_0$  は 101325 Pa である。干渉縞の右下方方向への変位量は光路長  $L$  に依存する。ここで光路長  $L$  は  $nl$  で定義され、屈折率、 $n$ 、とその領域を光が通る長さ (DUST 2 では 68 mm)、 $l$ 、の積で決まる。Figure 4a に示す緑と赤の実験前の干渉縞が、蒸発源温度の上昇による雰囲気ガスの昇温に伴ってシフトする量、 $\Delta d_G$  と  $\Delta d_R$  はそれぞれ次式で表される。

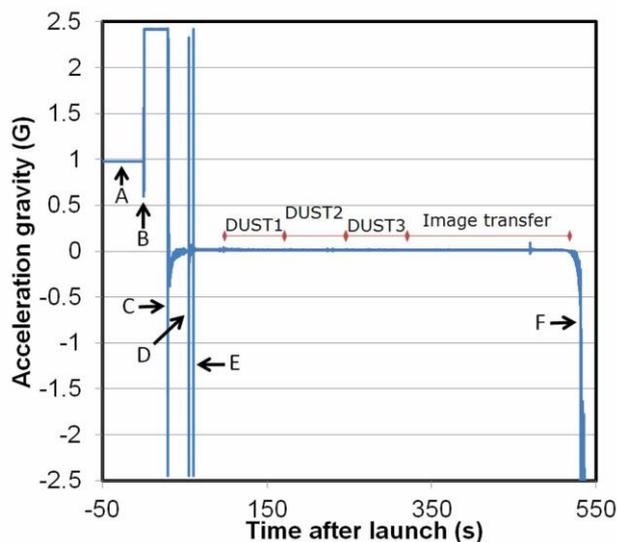
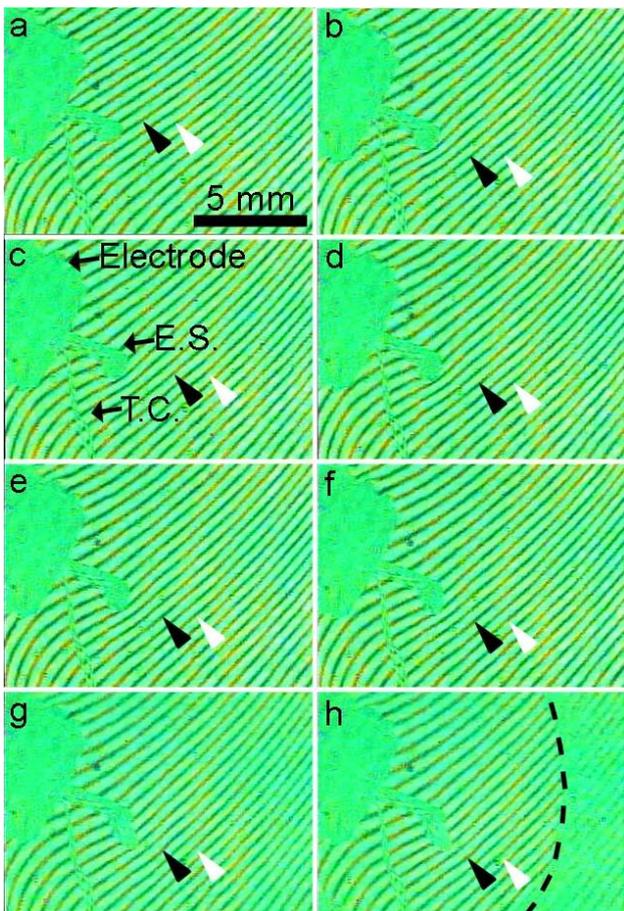


Fig. 3 Acceleration gravity to the longitudinal direction of the sounding rocket during the microgravity experiment. The gravitational acceleration was measured by a triaxial analog accelerometer module (Silicon Designs Inc., Model 2470-002) placed on a base plate of DUST 2. Arrows A to F show changing of gravity by events: A. before launch, B. launch, C. end of ignition and go to microgravity, D. spread of yo-yo for despun, E. open the nosecone for release the heat, and F. end of microgravity.

$$\Delta d_G = [n_{G,Ar(T_i,P_i)} - n_{G,Ar(T,P-P_{Fe})} - n_{G,Fe(T,P_{Fe})} + 1] \frac{l}{\lambda_G} \quad (2)$$

$$\Delta d_R = [n_{R,Ar(T_i,P_i)} - n_{R,Ar(T,P-P_{Fe})} - n_{R,Fe(T,P_{Fe})} + 1] \frac{l}{\lambda_R} \quad (3)$$

ここで、 $T_i$ と $P_i$ は初期温度と初期圧力であり、GとRの下付き文字は、それぞれ緑色と赤色のレーザーの値であることを示す。式(2)と(3)を用いることで、Fig. 4b以降の干渉像中で、温度場と濃度場を同時に決定することができる。



**Fig. 4** A still snapshot of in-situ observation of the interference fringe during a microgravity experiment of DUST 2 using the sounding rocket S-520-28. The temperature of the evaporation source shown in a to h are RT, 1200, 1400, 1600, 1800, 2000, 2270 and 2290 K, respectively. Black and white arrows indicate same interference fringes to identify the fringe movement. E.S. and T.C. are evaporation source and thermocouple, respectively. Dotted line in (h) indicates a nucleation front of iron nanoparticles. Diffuse fringes in the right hand side of the dotted line are the result of light scattering due to produced iron particles. The scale bar corresponds to 5 mm.

蒸発源温度が 1900 K を超えたあたりからは、アルゴンよりも屈折率の大きな鉄の分圧 ( $P_{Fe}$ ) が、温度上昇による屈折率の低下をキャンセルするために、干渉縞の動きは抑えられる。Figure 4e の 1800 K と Fig. 4f の 2000 K の干渉縞が、ほとんど動いていないように見えるのはそのためである。核生成により鉄粒子が生成すると光を散乱するために、Fig. 4h の点線の右側に見られるように干渉縞がぼやけ、核生成が起こったことをはっきりと確認できる。この核生成領域は、始めは蒸発源から遠い領域でみられ、時間の経過とともに蒸発源により近づいてくる。これは、蒸発源温度の上昇に伴って、鉄の分圧(平衡蒸気圧)が著しく大きくなる一方で、蒸発源から離れた場所の温度上昇は小さいために、より蒸発源に近い領域で核生成に必要な過飽和が達成されるためと考えられる。鉄粒子が生成する前の真空チャンパー内には、鉄の核生成を助ける下地は存在していないために、鉄原子自らが集まってクラスターを形成し、ナノ粒子へと成長していかなければならない。下地の無い状況でクラスタリングが進行して臨界核を超えて成長する様子を均質核生成と呼ぶ。均質核生成により臨界核を超えるためには、クラスタリングによる表面積の増加がもたらす表面自由エネルギー不利を克服する必要がある。この為、均質核生成には大きな過飽和が必要となる。ガス中蒸発法による酸化タングステンとマンガンでは、 $10^4$ - $10^7$  という非常に大きな過飽和度に達することを示した<sup>5,7)</sup>。大きな過飽和度は大きな成長速度をもたらすために、粒子は 1 ms 以下の短いタイムスケールで成長を終える。この時、最終的なサイズまで成長する間にブラウン運動で粒子が動くことのできる距離は 10  $\mu$ m 程度と、得られた動画の空間分解能と同様のオーダーであるから、核生成は干渉縞がぼやけた領域と同じ場所であると考えている。

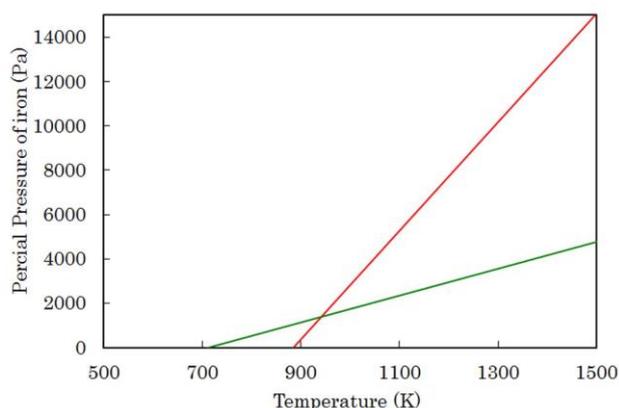
核生成時の過飽和度は干渉縞がぼやける直前の、まだ粒子の存在が確認できていない時の温度と鉄の分圧から決定する。今回示す DUST 2 実験では、核生成直前の干渉縞の変位量 $\Delta d_G$ と $\Delta d_R$ はそれぞれ 3.0 と 3.1、この時の蒸発源温度は 2270 K であった。

Figure 5 に示す二つの直線は、式(1) - (3) を用いて得られた干渉縞の変位量 $\Delta d_G$ と $\Delta d_R$ を説明できる、ガスの温度と鉄の分圧の関係である。用いるレーザー波長が一つの通常の干渉計では、この直線が 1 本しか引けないために、温度と濃度を同時に決定することはできないので、あらかじめ蒸発源温度に対する温度場の情報を得ておく必要がある。干渉計に波長の異なる二つのレーザーを用いることで、この直線の交点から均質核生成温度 942 K と鉄の分圧 1386 Pa を決定できた。鉄の平衡蒸気圧が 1386 Pa となる温度は 2384 K であり、今回の核生成が非常に大きな過冷却 ( $\Delta T = 1442$  K) 環境下で起こったことが分かる。942 K のときの鉄の平衡蒸気圧は  $3.7 \times 10^{-10}$  Pa であることから、過飽和比 ( $P/P$ ) は  $3.7 \times 10^{12}$  という極めて大きな値を取った。これは、下地となるよ

うな他の粒子上への不均質核生成ではなく、真に均質核生成により粒子が形成したからこそこの値と言える。

#### 4. 物理定数の決定方法

我々は核生成過程を理解するために、核生成理論を用いた数値シミュレーションを行い、実験結果の再現を試みた。核生成理論に対しては古典的核生成理論と半現象論的モデル（第 2 ビリアル定数またはダイマーの化学ポテンシャルを用いて古典的理論を補正したモデル）<sup>11)</sup>の二つの異なる核生成理論を用いる。数値シミュレーションでは、実験環境下のガスの冷却の時間スケールを用いて、鉄のガス数密度と核生成頻度の時間進化を計算する<sup>8,12)</sup>。このとき、鉄が非平衡凝縮する際の吸着係数が未定のパラメータとなっており、実験結果と比較することにより吸着係数が決定できる。ここで、DUST 2 の干渉縞から得た Fe の初期分圧 1386 Pa と初期温度 2270 K、冷却の時間スケール  $t = 5.6 \times 10^{-2}$  s をシミュレーション計算に与えることで、核生成温度を得る。冷却の時間スケール  $t$  は、鉄が蒸発してから核生成位置まで拡散で到達するのに要する時間であり、 $t \approx X^2/D$  と書ける。ここで、 $X$  は蒸発源から核生成位置までの距離で  $1.29 \times 10^{-2}$  m、拡散係数  $D$  は  $D = \bar{c}\lambda/3$  から決定した ( $2.97 \times 10^{-3}$  m<sup>2</sup> s<sup>-1</sup>) であり、 $\bar{c}$  はガスの平均速度 (781 m s<sup>-1</sup>)、 $\lambda$  は平均自由行程 ( $1.14 \times 10^{-5}$  m) である。他のパラメータは以下の文献値を用いた：1573–1773 K の熔融鉄の表面自由エネルギー 2.48 J m<sup>-2</sup><sup>13)</sup>、ダイマーの解離エネルギー ( $E = 8600$  K)<sup>14)</sup>、平衡原子間距離 ( $R_e = 2.4 \times 10^{-10}$  m)、振動周波数 ( $\omega = 8.9 \times 10^{12}$  s<sup>-1</sup>)<sup>14)</sup>。これらの値を用いて数



**Fig. 5** Two lines of green and red show the relationship between partial pressure of iron and temperature to explain the degrees of movement of the interference fringes by green and red lasers just before nucleation, respectively. Cross the point of intersection with the red line and the green line is the nucleation temperature and partial pressure of iron at the time of nucleation.

値シミュレーションを行い、実験と核生成温度を比較することで、吸着係数を決定することができる。ここで、数値シミュレーションでは、モノマー数が半分になった所を核生成温度とする。

既知の値として用いているバルクの表面自由エネルギーは、ナノ粒子では異なる値を取る可能性がある。実際に酸化チタンナノ粒子において、表面自由エネルギーに粒子サイズ依存性があり、直径 14 nm の時にはバルクよりも~30%大きな値を取ることが報告されている<sup>15)</sup>。鉄ナノ粒子の表面自由エネルギーもバルクの値とは数十%異なる可能性が考えられる。それゆえ、幅広い表面自由エネルギーに対して吸着係数を求める必要がある。詳細は他に譲るが、今回の実験から、鉄の吸着係数は非常に小さい値をとり、表面自由エネルギーを現実的な値で振っても、吸着係数はオーダーでは変化しないことが分かってきた。また、古典的核生成理論と半現象論モデルで大きな違いはなかった。

#### 5. まとめ

宇宙ダストの核生成過程の解明に必須の、鉄の吸着係数を決定することを目的に、2012年12月17日に観測ロケット S-520-28 号機を用いて、微小重力環境下で鉄の均質核生成実験を行った。吸着係数は、核生成理論を用いて宇宙ダストを理解する時に、最も大きな不定性を与えている物理定数である。我々は観測ロケット用に核生成チェンバーと二波長マツハツェンダー型干渉計をデザインし、同様の実験システムを 3 組作製した。核生成チェンバーには、バッファーガスとしてアルゴンを封入した。微小重力環境下で鉄を加熱蒸発すると、等方的に蒸発、拡散した後冷えて過飽和になり、均質核生成を経てナノ粒子へと成長した。核生成直前の温度と濃度を、干渉縞の変化から決定し、核生成条件をもとめた所、1442 K という超高過冷却、 $10^{12}$  以上の超高過飽和で核生成したことが分かった。これは地上よりもはるかに大きな値である。今後、実験結果と核生成理論を用いた数値シミュレーションとの比較により、核生成時の物理定数を決定し、得られた結果を宇宙ダストの核生成過程に適用することにより、宇宙ダスト起源の理解がさらに進むと期待している。

#### 謝辞

本研究は JAXA 宇宙環境利用科学委員会、科学研究費補助金、若手研究 A (22684024, 24684033) の助成を受けたものである。

#### 参考文献

- 1) R. Kubo: J. Phys. Soc. J., **17** (1962) 975.
- 2) K. Kimoto, Y. Kamiya, M. Nonoyama and R. Uyeda: Jpn. J. Appl. Phys., **2** (1963) 702.

- 3) R. Uyeda: Morphology of crystals, Part B, ed. I. Sunagawa, p. 369, Terra, Tokyo, 1987.
- 4) C. Kaito: Jpn. J. Appl. Phys., **17** (1978) 601.
- 5) Y. Kimura, H. Miura, K. Tsukamoto, C. Li and T. Maki: Journal of Crystal Growth, **316** (2011) 196.
- 6) Y. Kimura and K. Tsukamoto: J. Jpn. Soc. Microgravity Appl., **28** (2011) S9.
- 7) Y. Kimura, K. K. Tanaka, H. Miura and K. Tsukamoto: Crystal Growth & Design, **12** (2012) 3278.
- 8) T. Yamamoto and H. Hasegawa: Prog. Theor. Phys., **58** (1977) 816.
- 9) T. Nozawa and T. Kozasa: Astrophys. J., **776** (2013) 24.
- 10) Y. Clergent, C. Durou and M. Laurens: J. Chem. Eng. Data, **44** (1999) 197.
- 11) A. Laaksonen, I. J. Ford, and M. Kulmara, Phys. Rev. E, **49** (1994) 5517.
- 12) K. K. Tanaka, H. Tanaka and Nakazawa: Icarus, **160** (2002) 197.
- 13) F. R. Boer, R. Boom, W. C.M. Mattens, A. R. Miedema and A. K. Niessen: Cohesion in Metals (North-Holland, Amsterdam, 1988).
- 14) I. Shim and K. A. Gingerich: J. Chem. Phys., **77** (1982) 2490.
- 15) H. Zhang, B. Chen and J. F. Banfield: Phys. Chem. Chem. Phys., **11** (2009) 2553.

(2014年5月22日受理, 2014年6月19日採録)