

大気中の新粒子生成過程の計算化学的研究

○河野明男¹、河村洋史¹、草野完也^{1,2}

(¹海洋研究開発機構 地球内部ダイナミクス領域、²名古屋大学 太陽地球環境研究所)

【序】

大気中に広く存在するエアロゾルは、放射の吸収や散乱によって、または雲や降水によって地球環境に大きな影響を与えている。前駆気体（主に硫酸）からの新粒子生成は大気中の微小エアロゾル粒子の主要なソースであり、エアロゾルの個数濃度分布を規定する主要な過程であると考えられている。新粒子生成は核生成過程とそれに引き続く成長過程からなるが、それらの詳細な理解は未だ十分ではない。

大気中の新粒子生成の数値シミュレーションにはしばしば速度論モデルが用いられる。これは粒子の数密度の時間発展を化学反応速度方程式に類似の連立微分方程式によって記述するものである。速度論モデルはその初期過程に生成されるクラスターの速度係数の値に特に敏感であり、それらの値を正確に決定することが必要である。速度論モデルで用いられる速度係数はしばしばバルクの液体の物性値に基づいて決定される。しかし特に核生成に関与する微小なクラスターはバルクの液体とは性質が大きく異なるため、そのような手法で決定された速度係数は信頼性に欠けると考えられる。一方、近年この速度係数を分子計算によって決定する試みもなされている。通常、そのような手法では剛体回転調和振動近似によって決定されたクラスターの自由エネルギーと単純な方法によって見積もられた衝突断面積から速度係数を見積もる。しかしこの手法に用いられている近似の信頼性に関する議論は十分になされていない。

本研究では分子動力学法によって硫酸-水エアロゾルの二成分核生成のシミュレーションを行うとともに、その結果を様々な近似的手法によって得られた速度係数を用いた速度論モデルと比較することによりそれらの信頼性について議論する。

【手法と結果】

Table I の条件で、水-硫酸-アルゴンの三成分からなる系に対して分子動力学法によって核生成のシミュレーションを行った。系の温度はアルゴンの温度を制御することによって制御した。臨界核の分子数は約 15、核生成速度 $4.5 \times 10^{25} \text{ s}^{-1} \text{ cm}^{-3}$ を得た (Fig. 1)。詳細は当日報告する。

Table I. 計算条件

Number of molecules :

$$N_{\text{H}_2\text{O}} = 5000, N_{\text{H}_2\text{SO}_4} = 50, N_{\text{Ar}} = 5000.$$

Simulation cell :

$$46.5 \text{ nm} \times 46.5 \text{ nm} \times 46.5 \text{ nm}.$$

Temperature :

$$1000 \text{ K} \rightarrow 350 \text{ K}.$$

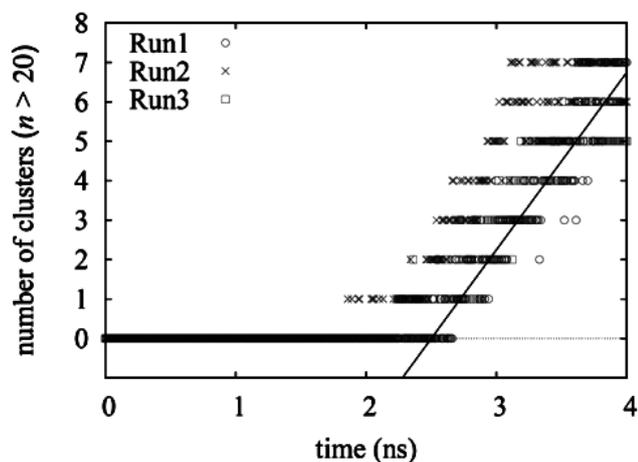


Fig. 1. 分子数 20 以上のクラスター数の時間発展