

水の均一蒸気-液体核生成過程の分子動力学シミュレーション

○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 宇宙・地球表層・地球内部の相関モデリングラボユニット

² 名古屋大学 太陽地球環境研究所

【序】気相からのエアロゾル新粒子生成過程は大気科学や機械工学など様々な分野で重要な役割を果たしている。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り、エアロゾル生成速度や粒径分布、組成などを理論から正確に予測するためには核生成過程を正確に記述することが求められる。水蒸気の均一核生成は大気などで見られる多成分核生成過程の基礎として重要である。シミュレーションによって核生成過程を直接的に研究するための手法として分子動力学法 (MD) による直接シミュレーションがしばしば用いられている。MD の問題点はその計算コストにあり、実験と直接比較できるような条件で直接 MD 計算を行うことは現実的ではない。そのため、その結果には現実の核生成とは定性的に異なった状況が現れる可能性がある。MD による核生成の直接シミュレーションによって得られたトラジェクトリはしばしば等温、定常などの近似のもとで解析されるが、MD 計算の典型的な条件ではこの近似は妥当でないおそれがある。本研究では水蒸気の均一核生成過程の直接 MD シミュレーションを行い、等温、定常などの近似を用いない速度論的な解析を行い、核生成速度やクラスターの自由エネルギーを議論する。

【手法】水分子モデルとして SPC/E を用い、系には 4000 個の水分子と、キャリアガスとして 4000 個または 8000 個のアルゴンを入れた。キャリアガスは温度制御

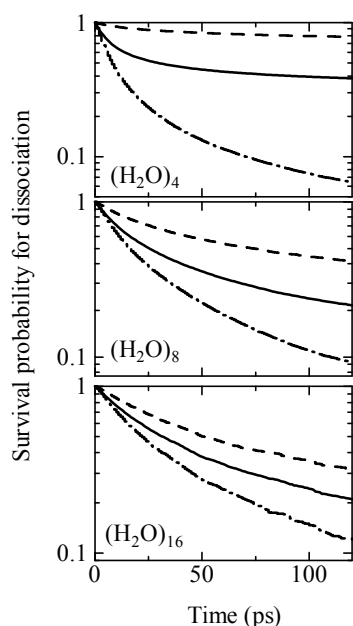


Fig.1. Survival probability of a cluster relating to dissociation vs time from the cluster formation: solid lines for all of the clusters, dot-dashed lines for clusters created by association reactions, broken lines for clusters created by reactions other than association.

を行って定温に保ち、水分子はキャリアガスから間接的に温度制御を受ける。Fig. 1 にクラスターが生成してから解離を起こさずにクラスターのまま存在し続ける確率を時間に対して示した。解離以外の反応については Kaplan-Meier 推定法によりその寄与を除去している。この図から解離反応には (みかけの) 履歴依存性があることがわかる。この顕著な履歴依存性は、クラスターを等温とみなす近似が適切でないことを示している。MD の結果に基づいて温度依存速度係数などの値を決定した (Fig. 2)。

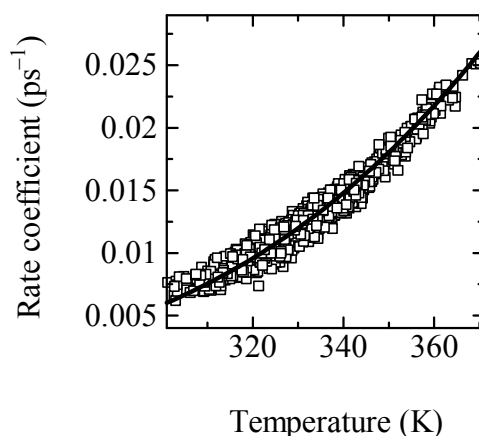


Fig. 2. Dependence on temperature of the evaporation coefficients of water dimer.