R009-21

B会場:11/25 AM1 (9:00-10:15)

9:30~9:45

金星模擬環境下における NO2 による酸化を通じた SO2 の硫酸液滴への取り込みに 関する室内実験

#生方 颯真 $^{1)}$, 狩生 宏喜 $^{1)}$, 玄 大雄 $^{2)}$, 中川 広務 $^{1)}$, 小山 俊吾 $^{1)}$, 南川 陸登 $^{2)}$, 黒田 剛史 $^{1)}$, 寺田 直樹 $^{1)}$ 東北大・理・地球物理、 $^{(2)}$ 中央大・理工・応用化学

Laboratory Experiments on SO2 Uptake into Sulfuric Acid Droplets through Oxidation by NO2 under Venus-analogous Conditions

#Soma Ubukata¹⁾, Hiroki Karyu¹⁾, Masao Gen²⁾, Hiromu Nakagawa¹⁾, Shungo Koyama¹⁾, Rikuto Minamikawa²⁾, Takeshi Kuroda¹⁾, Naoki Terada¹⁾

⁽¹Department of Geophysics, Graduate School of Science, Tohoku University, ⁽²Department of Applied Chemistry, Faculty of Science and Engineering, Chuo University

Sulfur dioxide (SO2) has both direct and indirect effects on the thermal structure of the Venusian atmosphere: while SO2 causes a warming of the planetary atmosphere through its greenhouse effect, it also causes a cooling by increasing albedo as a precursor to clouds. We can constrain the photochemical processes involving SO2 and their subsequent impact on the thermal structure of the Venusian atmosphere by identifying the factors that determine the mixing ratio of SO2.

According to observations from instruments such as SPICAV on Venus Express and ISAV on VEGA, the volume mixing ratio of SO2 decreases by approximately three orders of magnitude from the lower cloud to the cloud top. However, the SO2 depletion cannot be explained by gas-phase chemistry alone, suggesting the presence of missing sinks of SO2 in the cloud layers. A potential mechanism for SO2 depletion is the reactive uptake of SO2 by cloud droplets of sulfuric acid (H2SO4), which is very significant in the Earth's atmosphere, particularly when oxidants co-exist. It is highly uncertain whether the reactive uptake mechanism can substantially deplete SO2 in the cloud layers of Venus because the solubility of SO2 in H2SO4 is extremely low. This unaccounted-for pathway necessitates experimental validation under Venus-analogous conditions.

Here, we perform laboratory experiments to examine the uptake of SO2 by H2SO4 droplets in the presence of oxidants. NO2 was used as a potentially important oxidant to oxidize dissolved SO2 in an H2SO4 droplet. An H2SO4 droplet of ~10 μ m in radius was levitated using an electrodynamic balance (EDB) at the ambient temperature (~298 K) and pressure (1 atm), corresponding to an altitude of 50-55 km on Venus. The relative humidity in the EDB was kept at ~1%, and hence the droplet concentration was ~77 wt% H2SO4. Uptake experiments were performed in an open system under continuous mixed flow of carbon dioxide (CO2: ~100%) and SO2 (100 ppm) gases, representative of the Venusian cloud layers. NO2 was also introduced at 0-100 ppm to initiate the reaction. The size increase during the reactive uptake of SO2 was measured by the Mie scattering method and converted to the H2SO4 formation rate to estimate the SO2 uptake coefficient.

We find that the growth rate of an H2SO4 droplet increases with NO2 concentration. The reactive uptake coefficient is expressed as a function of the partial pressure of NO2. To the best of our knowledge, the present study reports the first experiments demonstrating the reactive uptake of SO2 by H2SO4 droplets promoted by NO2 oxidants. Reactive uptake of SO2 by H2SO4 droplets may be a potentially important contributor to the SO2 depletion, warranting future observations of oxidants in the Venusian atmosphere.

二酸化硫黄 (SO2) は、金星大気の温度構造に対して直接的・間接的に影響を及ぼす。SO2 はその温室効果によって惑星を温める一方、雲の前駆物質でもあり、アルベドを上げて惑星を冷やす効果がある。SO2 の混合比を決める要因を同定することで、SO2 に伴う光化学反応と、それに伴う惑星大気の熱構造への影響を制約することができる。

Venus Express の SPICAV や VEGA の ISAV などの観測によると、SO2 の体積混合比は、雲層下部から雲層上部にかけて 3 桁近く減少している。しかし、この SO2 の減少は気相の化学種だけを考慮したモデルでは説明できず、雲層における未知の SO2 消失メカニズムが存在することが示唆されている。SO2 減少の潜在的なメカニズムとして、硫酸雲粒による SO2 の取り込みが考えられる。このプロセスは地球大気において、特に酸化剤が共存する場合に非常に重要となることがわかっている。しかし、濃硫酸に対する SO2 の溶解度は極めて低いため、このプロセスが金星の雲層で SO2 の減少に大きな役割を果たしているかどうかは不明である。よって、硫酸液滴による SO2 の取り込み過程について、金星類似の条件下での実験的検証が必要である。

そこで私たちは、酸化剤の存在下での硫酸液滴による SO2 の取り込みを調べるための実験を行った。 SO2 を酸化する可能性のある重要な酸化剤として、二酸化窒素 (NO2) を使用した。電気力学天秤 (EDB) を用いて、半径約 $10~\mu$ m の硫酸液滴を室温 (約 298 K) および室内圧力 (1 atm) で浮遊させ、金星の高度 50-55 km に相当する条件を再現した。 EDB 内の相対湿度は約 1% に保たれ、その条件下での硫酸液滴の濃度は約 77 wt% と見積もられた。実験は、CO2 (約 100%)、SO2 (100 ppm) および NO2(0-100 ppm) の混合ガスを連続的に流す開放系で行った。SO2 の取り込みによる硫酸液滴のサイズ増加は Mie 散乱法により測定した。そして、測定されたサイズ増加を硫酸生成速度に変換して SO2 の取り込み係数を推定した。

実験の結果、NO2 濃度の増加に伴い硫酸液滴の成長率が増加することがわかった。取り込み係数は NO2 の分圧の関数として表された。私たちの知る限り、本研究は硫酸液滴による SO2 の取り込みが NO2 によって促進されることを実証する初めての実験である。硫酸液滴による SO2 の取り込みは、金星での SO2 の減少に重要な寄与をする可能性があり、金星大気中の酸化剤の将来観測が必要となる。