

科学研究費助成事業（科学研究費補助金）研究成果報告書

平成24年 4月 9日現在

機関番号：11301

研究種目：挑戦的萌芽研究

研究期間：2010～2011

課題番号：22654022

研究課題名（和文） ナノ粒子表面と準安定結晶構造に起因する赤外スペクトルの探求

研究課題名（英文） Research of IR spectral features caused by nanoparticle surfaces and metastable crystal structure

研究代表者

木村 勇気 (KIMURA YUKI)

東北大学・大学院理学研究科・助教

研究者番号：50449542

研究成果の概要（和文）：

天体のスペクトルに多数の未同定バンドが残っている一因はナノ領域に現れる特異現象にあると考え、ナノ粒子の赤外スペクトルを実験室で得ることを目的に研究を立ち上げた。赤外スペクトルその場観測装置を新たに作製し、気相中をフリーに漂うナノ粒子の赤外スペクトルを測定できるようになった。実際に測定した結果、従来のバルクやKBr錠剤法に比べ、ピーク位置のシフトと半値幅の大幅な減少が確認でき、未同定バンドの解明に向けた突破口が拓けた。

研究成果の概要（英文）：

There are a lot of unidentified infrared (UIR) features in the astronomical spectra. We assumed the reason that is characteristic physical parameters of nanoparticles, because no one ever considers the properties of nanoparticle, although cosmic dust has nanometer in size. To identify the UIR features, we constructed a new system, which is able to measure IR spectra of free frying as-grown nanoparticles. Our results showed that the free frying nanoparticles have different features compared with that in the spectra of bulk and nanoparticles embedded into a KBr pellets. UIR features will be identified based on our concept.

交付決定額

(金額単位：円)

	直接経費	間接経費	合計
2010年度	1,700,000	0	1,700,000
2011年度	1,100,000	330,000	1,430,000
年度			
年度			
年度			
総計	2,800,000	330,000	3,130,000

研究分野：数物系科学

科研費の分科・細目：天文学

キーワード：ナノ粒子、赤外スペクトル、宇宙ダスト、天体観測、表面、結晶

1. 研究開始当初の背景

晩期星の放出ガス中で生成する星周ダストは環境を敏感に反映する為に、鉱物の指紋領域である赤外スペクトル観測によって生成環境が推測できる。ここで、地上の鉱物や合成

した大きな結晶（バルク）が参照資料として使われてきた。また、宇宙ダストの形態が変わるとスペクトルが変化することは知られており、計算から得られたスペクトルとの比較も行われている。しかし、天体から得られる

スペクトルには非常に多くの未同定バンドが残っているのが現状である。本研究課題では、ナノ領域に現れる特異現象を考慮した実験室での再現実験と「すばる望遠鏡」や「あかり衛星」を用いた天体観測のスペクトルを比較し、成長に伴う赤外スペクトルの変化を定量的に扱うことで、未知の天体環境の情報を引き出す。これは、ナノ領域科学と天文分野の境界に新しい研究領域を形成する位置付けになる。

これまでは、ナノ粒子の赤外スペクトルデータが無いために、原子がわずか数百個程度の nm サイズの宇宙ダストであっても、地上の鉱物や実験室で合成した大きな結晶の光学定数が参照されてきた。しかし、ナノ粒子では、結晶構造の変化や 50%もの融点降下、9 桁以上の原子の拡散速度の増大などの特異現象が現れる。結晶表面に現れる原子の割合は数十%にもなり、内部とは異なる表面構造に起因する赤外バンドが強く現れることが考えられる。例えばシリコンの(111)表面は 7×7 構造を安定にとる。また、成長様式ですら常識とは異なり、二つの固体粒子がまるで液体のように混ざり合って一つの粒子になる。

これまで、我々は気相からのナノ粒子の合成（煙の実験）と、ナノ領域での特異現象の解明は盛んに行ってきた。煙の実験は液体相の少ない宇宙でのダストの生成過程に類似している。ナノの視点から隕石中に見られるダストの再現実験を試み、その多くを再現してきた。次の展開として、鉱物ナノ粒子の赤外スペクトルを、その表面構造が失われず、かつナノの特徴が弱められない気相で、さらに成長プロセスを追いながら測定する研究が必須であると考えに至った。

従来の赤外スペクトル測定では、サブミクロンサイズの粒子の表面構造は臭化カリウムに埋め込む（KBr 錠剤法）ために失われ、ナノの性質も凝集によって弱められていた。本研究課題では、気相中のナノ粒子をそのまま測定することで、鉱物ナノ結晶のスペクトルを初めて測定し、未同定赤外バンドの起源の解明をめざす。その結果、宇宙での物質進化過程の理解が飛躍的に高まると予想される。

2. 研究の目的

物質進化の初期段階を明らかにするために、気相中を漂うナノ粒子の赤外スペクトルを実験室で得ることが目的である。

3. 研究の方法

不活性ガス、または不活性ガスと酸素の混

合ガス中 (10^4 – 10^5 Pa) で、試料を設置した蒸発源を加熱する。試料が蒸発した後、冷えて凝縮する過程でナノ粒子を形成する。この手法はガス中蒸発法と呼ばれており、50 年の歴史がある。この実験を、フーリエ変換型赤外分光光度計の光路上で行うことで、気相中をフリーに漂うナノ粒子の赤外スペクトルを得る。その為の装置を図 1. に示すように新たに立ち上げた。



図 1. フーリエ変換型赤外分光光度計とその光路に設置したナノ粒子生成装置。中間赤外に透明なビューポートを持つ特型である。



図 2. 典型的なナノ粒子からなる煙の写真。生成した粒子は熱対流により成長しながら上昇する。

生成したナノ粒子は、熱滞留によってタバコの煙のように立ち昇るため（図 2）、チャンバーを上下に移動させることで核形成前、直後、成長過程の各ステージにおけるスペクトルを分離して取得することが可能である。これは、星から放出されたガスが冷える過程で凝縮して成長する宇宙ダストに対応している。

「すばる」や「あかり」を用いた天体観測の結果と比較することで、星周でのダストの生成過程を明らかにする。また、回収したナノ粒子の赤外スペクトルを一般的な KBr 錠剤法により取得して、気相中でのスペクトルと比較することで、従来法との違いを明確に示す。透過型電子顕微鏡を用いて、随時サイズと形

態、結晶構造を調べ、対応付ける。

4. 研究成果

赤外スペクトルその場観測装置を新たに作製し、気相中をフリーに漂うナノ粒子の赤外スペクトルを測定できるようになった。

まず、輻射場の強い大質量星形成領域をすばる望遠鏡で観測し、実験結果と比較することで中間赤外領域に見られる $9 \cdot \mu\text{m}$ の未同定赤外バンドの起源を明らかにする試みを行った。このバンドは炭素質物質起源であると推測されているが、その起源や生成メカニズムは不明である。

すばる望遠鏡による観測の結果発見した、 $9 \mu\text{m}$ をピークとする半値幅 $1 \mu\text{m}$ の非常にブロードな対称バンドは、一連の未同定赤外バンドとは分布が異なり、赤外コア近傍にのみ存在していた。観測結果に対して、実験室で生成した粒子の透過型電子顕微鏡観察、およびその場測定に先立ち、生成後の粒子に対して赤外スペクトル測定を行った結果、炭素を不純物として格子間を含む SiC が $9 \cdot \mu\text{m}$ バンドを再現することを明らかにした。その強度 $\sim 10^{-18} \text{ W cm}^{-2} \text{ mm}^{-1}$ も観測と一致していた。

炭素リッチな SiC は Si を含む非晶質炭素薄膜への放射光照射により生成することが分かっている。この結果から、晩期星で作られた非晶質ダストが強輻射場環境下で変化した結果、 $9 \cdot \mu\text{m}$ バンドが現れたと考えられる。

始めに行った、酸化マグネシウムのナノ粒子の結果について報告する。酸化マグネシウムのバルクや、KBr 錠剤にナノ粒子を埋め込んだ際には $20 \cdot \mu\text{m}$ 付近に非常にブロードなフィーチャーを持つ酸化マグネシウムに関して (図 3a)、気相を漂うナノ粒子の中間赤外スペクトルを測定した。その結果、図 3b に示すように $17.3 \cdot \mu\text{m}$ に、バルクに比べて非常にシャープなフィーチャーを示すことが明らかになった。また、ピーク位置も短波長側にシフトしていた。これは、ナノ粒子の赤外スペクトルが、バルクとは全く異なることを示した成果である。

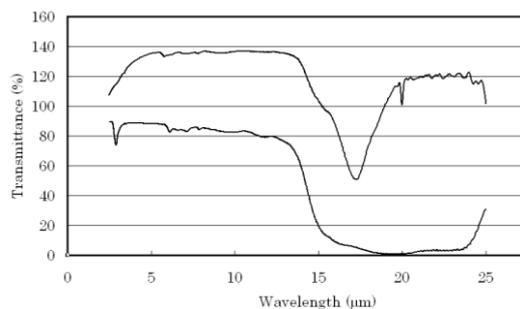


図 3. 酸化マグネシウムナノ粒子の中間赤外吸収スペクトル。(a) KBr 錠剤法により、媒質に埋め込まれたナノ粒子のスペクトル。(b) 気相中をフリーに漂うナノ粒子のスペクトル。

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)

[雑誌論文] (計 2 件)

1. Y. Kimura, J. A. Nuth III, K. Tsukamoto, C. Kaito, Laboratory annealing experiments of refractory silicate grain analogs using differential scanning calorimetry, *Meteoritics & Planetary Science*, 46 (2011) 92-102. 査読有り
2. M. Saito, I. Sakon, C. Kaito, Y. Kimura, Formation of polycyclic aromatic hydrocarbon grains using anthracene and their stability under UV irradiation, *Earth, Planets and Space*, 62 (2010) 81-90. 査読有り

[学会発表] (計 5 件)

1. 左近 樹、酒向重行、大澤 亮、下西 隆、宮田 隆志、高橋英則、尾中 敬、野沢 貴也、木村 勇気、小笹隆司、藤吉拓哉、植村 誠、新井 彰、赤外線継続観測に基づく新星 V1280 Sco 周囲でのダスト形成史、日本天文学会 2012 年春季年会、2012 年 3 月 21 日、龍谷大学 深草キャンパス
2. 木村 勇気、その場観察によるナノ粒子生成過程の解明に向けて、立命館大学・学術フロンティア公開シンポジウム「表面・界面ナノ構造の形成と制御—新奇現象の発現とその機構解明」、2012 年 3 月 13 日、滋賀県 草津市 立命館大学
3. 木村 勇気、ダストの核形成過程を実験室で観る、第 7 回 太陽系外惑星大研究会、2011 年 3 月 9 日、東京
4. Y. Kimura, K. Tsukamoto, Experimental study of Nucleation, Coalescence and Growth of Nanoparticles, Workshop on Interstellar Matter 2010, September 13-15, 2010.
5. Y. Kimura, K. Tsukamoto, T. Maki, Condensation Takes Place in Far from

Equilibrium Condition. 73rd Annual
Meeting of the Meteoritical Society,
July 26-30, 2010.

〔図書〕（計0件）

〔産業財産権〕

○出願状況（計0件）

名称：
発明者：
権利者：
種類：
番号：
出願年月日：
国内外の別：

○取得状況（計0件）

名称：
発明者：
権利者：
種類：
番号：
取得年月日：
国内外の別：

〔その他〕

ホームページ等

6. 研究組織

(1) 研究代表者

木村 勇気 (KIMURA YUKI)
東北大学・大学院理学研究科・助教

研究者番号：50449542

(2) 研究分担者

()

研究者番号：

(3) 連携研究者

左近 樹 (SAKON ITSUKI)
東京大学・大学院理学研究科・助教

研究者番号：70451820