

## 科学研究費助成事業 研究成果報告書

平成 29 年 8 月 10 日現在

機関番号：12601

研究種目：挑戦的萌芽研究

研究期間：2014～2016

課題番号：26610043

研究課題名(和文)密度汎関数理論に基づく宇宙鉱物学へのアプローチ

研究課題名(英文)Approach to astromineralogy based on the density functional theory

研究代表者

尾中 敬(Onaka, Takashi)

東京大学・大学院理学系研究科(理学部)・教授

研究者番号：30143358

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 2,900,000円

研究成果の概要(和文)：多くの天体に見られる結晶質鉱物の微細構造赤外線バンドから、その物質構造、組成の推定が可能となることが期待され、宇宙鉱物学(astromineralogy)が提唱された。しかし、これまでのところ振動モードについての理論的な基礎付けがなされていないため、観測データの解釈は実験室データとの経験的な比較にとどまり、その発展は限定的であった。本研究では密度汎関数理論(DFT)を用いた数値計算を行い、天体に見られる鉱物の振動モードを計算し、観測との比較を行う基礎を得た。またDFT計算を有機物質にも適用し、重水素含有量の推定を行い、従来提唱されている仮説より1桁低い値を導いた。

研究成果の概要(英文)：Fine structures of the infrared bands of crystalline materials seen in celestial objects are expected to provide the properties and composition of the materials, leading to astromineralogy. However, due to the lack of theoretical identifications of the vibration modes, comparison of observational data with laboratory data is limited to empirical investigations and full power of astromineralogy has not been developed. In this research we apply the density functional theory (DFT) to the calculation of vibration modes of minerals of astronomical interest and the basis of comparison with observations is obtained. The DFT calculation is also applied to organics and the deuterium content in interstellar organic materials is investigated. Comparison with observations based on the DFT calculations suggests that the deuterium content in organic materials is by an order of magnitude smaller than theoretically suggested.

研究分野：天体物理学

キーワード：星間塵 宇宙鉱物学 赤外線観測 密度汎関数理論

### 1. 研究開始当初の背景

1995年に打ち上げられたヨーロッパの赤外線衛星 ISO は、それまで彗星でしか観測されていなかった結晶質珪酸塩の赤外線微細構造バンドを、進化した星、若い星等多くの天体に検出した(e.g., Waters et al. 1996)。非晶質の珪酸塩のスペクトルは微細構造がなく、宇宙空間に存在するダスト粒子の組成等の情報の推定を行うことに困難があったが、結晶質珪酸塩が示す微細構造バンドの検出はこの状況を一変させた。微細構造バンドは珪酸塩の結晶構造、組成に敏感に依存するため、これらの物質の性質、構造の推定が可能となることが期待された。しかし、これまでのところ振動モードについての理論的な基礎付けがなされていないため、観測データの解釈は実験室データとの経験的な比較にとどまり(Jaeger et al. 1998)、宇宙鉱物学(astromineralogy)も期待されたほど大きく発展していなかった。

一方、星間中の重水素は理論予想より少ないことが知られており、これらが星間の有機物、特に多環式芳香族炭化水素(Polycyclic Aromatic Hydrocarbon、以下 PAH)に取り込まれている可能性が指摘されてきた(Linsky et al. 2006; Draine 2006)。ISOの観測では理論予想に近い強度のC-D結合起源の輝線バンドが4 $\mu$ m帯に検出されていたが、不定性が大きかった。AKARIによる観測で、C-D結合輝線バンド強度の値がISOの結果の約1/10に制限され、理論との不一致が明確になった(Onaka et al. 2014)。しかし、C-D結合の理論的バンド強度については、まだ十分な検討がなされておらず、定量的に星間空間の重水素が有機物中に取り込まれている量を明らかにするには、電離したPAHを含む様々な有機物でのC-D結合起源のバンド強度を理論的に求めることが必要とされていた。

### 2. 研究の目的

本研究では近年の進展が著しい密度汎関数理論(DFT)を用いた手法(e.g., Noel et al. 2006)を天体で観測されている物質に初めて適用することで、astromineralogyに理論的基礎を築き、新しい段階に進めることを目指す。観測される結晶質の鉱物のバンドからその性質を定量的に導く理論的基礎を得ることを目的とする。またDFT計算を有機物にも適用し、星間有機物中の重水素含有量の見積もりを定量的に行うことを目的とする。

### 3. 研究の方法

鉱物に適用可能なDFT計算ソフトウェアを導入し、天体で検出されている鉱物の振動モードの計算を行い、観測されているバンドの同定を行う。これらの計算を基礎にどの振動モードがどのような構造と結びついているのかを理論的に明らかにし、観測値との比較を定

量的に行う。また星生成領域でガス中に残っているケイ素の量を赤外線観測から見積もり、活動領域中の珪酸塩の性質、変性過程を明らかにする。

有機物については、観測されているC-D結合の強度を様々な天体で測定し、C-H結合の強度と比較する。これにDFT計算で得られたC-D結合、C-H結合の強度を適用し、星間有機物に存在する重水素含有量を定量的に評価する。

### 4. 研究成果

固体の振動のDFT計算を行うソフトウェアを導入し、パラメータの最適化の手法などを確認した。これを用いて、天体で検出されているMg<sub>2</sub>SiO<sub>4</sub>に絞り、いくつかの交換ポテンシャルと相関ポテンシャルを用いてDFT計算により構造の最適化を行なった(図1)。この結果、交換ポテンシャルとして、局所密度近

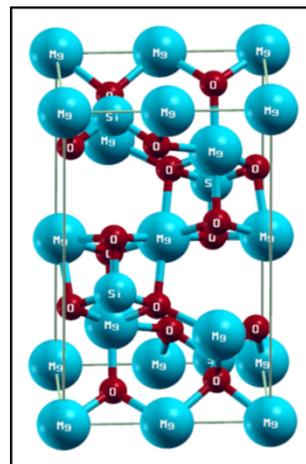


図1. 交換ポテンシャルLDA、相関ポテンシャルPZを用いて最適化したMg<sub>2</sub>SiO<sub>4</sub>の構造

似(LDA)、相関ポテンシャルとしてはPZ(Perdew-Zunger)を用いれば、十分な精度が得られることがわかった。この構造を用いて振動モードの計算を行った。表1に示す35モードが赤外活性のモードであることがわかり、それぞれのモードの同定を行なった。

表1. Mg<sub>2</sub>SiO<sub>4</sub>のDFT計算により得られた赤外活性振動モード

No.	Modes <sup>(1)</sup>	Frequency (cm <sup>-1</sup> )	Symmetry	Intensity (KMMol <sup>-1</sup> )
1	CS	145.6877	B3u	7.55
2	CS	192.7761	B2u	3.61
3	CS	199.0642	B1u	1.09
4	CS	244.5118	B1u	47.36
5	CS	269.5700	B2u	12.20
6	CS	277.3551	B3u	461.73
7	SiMgS	286.9418	B3u	74.94
8	SiMgS	306.8235	B2u	12.24
9	SiMgS	310.6713	B1u	72.92
10	SiMgS	319.9188	B1u	424.05
11	SiMgS	340.9131	B2u	38.13
12	MgOS	347.9185	B3u	926.03
13	MgOS	363.0441	B1u	425.97
14	MgOS	371.8201	B2u	1301.71
15	MgOS	404.8980	B3u	287.76

16	MgOS	413.5212	B2u	1042.82
17	MgOS	421.9510	B3u	947.81
18	MgOS	435.2148	B1u	622.07
19	MgOS	456.0756	B3u	25.90
20	MgOS	464.6315	B2u	83.48
21	MgOS	470.6567	B1u	437.41
22	MgOS	491.2860	B1u	780.47
23	MgOS	505.7170	B3u	142.83
24	MgOS	514.9394	B2u	394.44
25	MgOS	525.7935	B3u	37.11
26	MgOS	528.7527	B2u	329.31
27	SiOS	585.3926	B2u	169.21
28	SiOS	607.2703	B3u	1.36
29	MgOS	858.5011	B3u	862.39
30	MgOS	886.6861	B2u	69.91
31	SiOS	956.4160	B3u	835.42
32	SiO <sub>2</sub> S	996.0413	B2u	1517.65
33	SiOS	1065.4839	B1u	2618.90
34	SiOS	1096.4604	B3u	481.63
35	SiOS	1109.5571	B2u	1042.04

(1) CS: Crystal Stretch, SiMgS: SiMg Stretch, MgOS, MgO Stretch, SiOS: SiO Stretch, SiO<sub>2</sub>S: SiO<sub>2</sub> Stretch を示す。

この結果をスペクトルとして図 2 に示す。これにより、他の鉱物の振動モードの計算にも応用できる基礎を得ることができた。一方、振動の温度変化についても検討したが、現状のソフトウェアでは十分な精度で対応できないことがわかり、今後の課題となった。

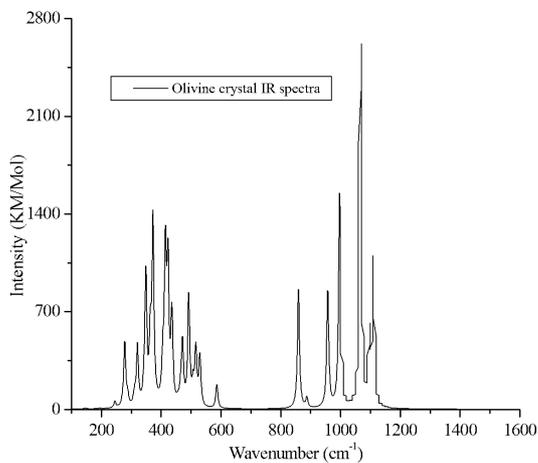


図 2. DFT 計算による Mg<sub>2</sub>SiO<sub>4</sub> の赤外スペクトル

次に、ガスの組成から星間塵の組成を見積もる手法を用い、星生成活動領域ではガス中に 70%以上のケイ素が存在することを新しい衝突係数を用いて確認した (図 3, Onaka et al. 2015)。この結果、もし多くのケイ素が珪酸塩に取り込まれているとすると、それらの大部分は活動度の高い領域で破壊されている可能性が示唆され、星間珪酸塩の性質を制限する結果を得た。

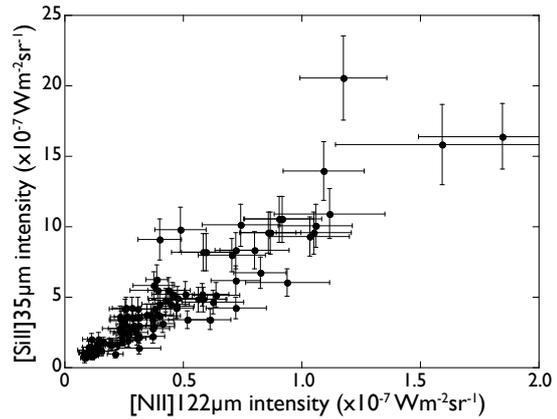


図 3. 竜骨座の遠赤外線ガス輝線の相関図. 新しい衝突係数を用いると 70%以上のケイ素が N<sup>+</sup>と共存していることになり、多くの珪酸塩が破壊されていることを示唆する (Onaka et al. 2015).

PAHに関連した物質の C-D 結合による振動モードについては、H が D<sup>+</sup>に置換した分子が、D で置換したものより安定であることが予想されるため、D<sup>+</sup> (deuteronated) PAH の DFT 計算を行い、その振動強度を求めた (Buragohain et al. 2015, 2016)。その結果、これまでの結果、理論予想より 1/10 程度以下の重水素が有機物中にあるという制限が確認された。一方で、観測データの検討も進めた結果、複数の天体で、平均より大きな C-D 結合起源の輝線バンドが検出され、一部の重水素は有機物に取り込まれている可能性が示された (図 4, Doney et al. 2016)。しかし一般的には多くの重水素が有機物に取り込まれている可能性は低いことが確認された。

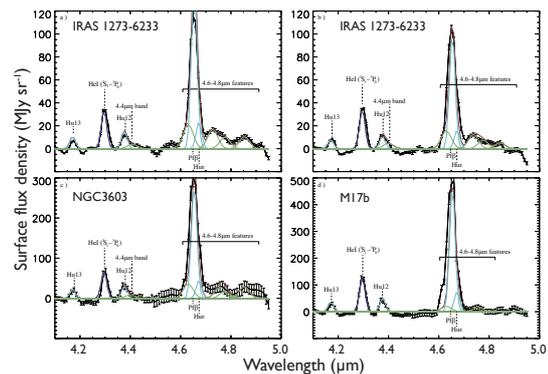


図 4. C-D 起源の 4.6–4.8 μm の輝線バンドが平均より強い強度で受かった天体の例. 上段は同じ天体の独立の観測データである (Doney et al. 2016).

#### 引用文献

- Buragohain, M. et al. 2015, MNRAS, 454, 193  
 Buragohain, M. et al. 2016, P&SS, 133, 97  
 Doney, K. D., et al. 2016, A&A, 586, A65  
 Draine, B. T. 2006, ASP Conf. ser. 348, 58  
 Jaeger, C., et al. 1998, A&A, 339, 904

Linsky, J. L., et al. 2006, ApJ, 647, 1106  
Onaka, T., et al. 2014, ApJ, 780, 114  
Onaka, T., et al. 2015, P&SS, 116, 84  
Waters, L. B. F. M., et al. 1996, A&A, 315, L361

#### 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 9 件)

(1) Onaka, T. 2016, Organic dust in galaxies, *Journal of Physics, Conf. ser.* **728**, 062001 (8pp) (査読無)

DOI: 10.1088/1742-6596/728/6/062001

(2) Buragohain, M., Pathak, A., Sarre, P., Onaka, T., and Sakon, I. 2016, Mid-infrared vibrational study of deuterium-containing PAH variant, *Planetary & Space Science*, **133**, 97–108 (査読有)  
DOI: 10.1016/j.pss.2016.05.001

(3) Sakon, I., Sako, S., Onaka, T., Nozawa, T., Kimura, Y., Fujiyoshi, T., Shimonishi, T., Usui, F., Takahashi, H., Ohsawa, R., Arai, A., Uemura, M., Nagayamaya, T., Koo, B.-C., and Kozasa, T. 2016, Concurrent Formation of Carbon and Silicate Dust in Nova V1280 Sco, *Astrophysical Journal*, **817**, 145 (23pp) (査読有)  
DOI: 10.3847/0004-637X/817/2/145

(4) Doney, K. D., Candian, A., Mori, T., Onaka, T., and Tielens, A. G. G. M. 2016, Deuterated Polycyclic Aromatic Hydrocarbons: Revisited, *Astronomy & Astrophysics*, **586**, A65 (10pp) (査読有)

DOI: 10.1051/0004-6361/201526809

(5) Buragohain, M., Pathak, A., Sarre, P., Onaka, T., and Sakon, I. 2015, Theoretical study of deuterated PAHs as carriers for IR emission features in the ISM, *Monthly Notices of the Royal Astronomical Society*, **454**, 193–204 (査読有)

DOI: 10.1093/mnras/stv1946

(6) Onaka, T. 2015, An overview of AKARI observations of the interstellar medium, *Asian Journal of Physics*, **24**, 1007–1018 (査読有)  
<http://asianjournalofphysics.in/content2/vol-24-2015/vol-24-no-8>

(7) Onaka, T., Mori, T. I., and Okada, Y. 2015, Dust processing in the Carina nebula region, *Planetary & Space Science*, **116**, 84–91 (査読有)  
DOI: 10.1016/j.pss.2015.03.025

(8) Hammonds, M., Mori, T. I., Usui, F., and Onaka, T. 2015, Variations in the 3.μm feature and carbonaceous dust in AKARI data, *Planetary & Space Science*, **116**, 73–83 (査読有)  
DOI: 10.1016/j.pss.2015.05.010

(9) Pilleri, P., Joblin, C., Boulanger, F., and Onaka, T. 2015, The mixed aliphatic/aromatic composition of evaporating very small grains in NGC 7023 viewed by the 3.4/3.3μm ratio, *Astronomy & Astrophysics*, **577**, A16 (8pp) (査読有)

DOI: 10.1051/0004-6361/201425590

[学会発表] (計 12 件)

(1) Onaka, T., Nakamura, T., Sakon, I., Ohsawa, R., Wu, R., and Kaneda, H. 2017, AKARI observations of mergers: PAH emission as a star-formation probe in tidal tails of galaxies, *Star Formation and Nearby Galaxies with JWST*, Pasadena, U.S.A., 2017年1月18–20日

(2) Onaka, T. 2016, Dust in galaxies (招待講演), Workshop of University of Tokyo/ENS, Paris, France, 2016年10月16日–18日

(3) Onaka, T. 2016, AKARI results and PAH emission (招待講演) The Past and Future of AstroPAH Research, Noordwijk, The Netherlands, 2016年10月30日–11月4日

(4) Onaka, T., Mori, T., and Sakon, I. 2016, Deuterated organic dust in space, The 9th meeting on Cosmic Dust, 東北大学 (宮城県仙台市), 2016年8月15日–19日

(5) Onaka, T. 2016, AKARI mid-infrared all-sky survey: A New PAH emission map, AME workshop 2016, ESTEC, Noordwijk, The Netherlands, 2016年6月22日–23日

(6) 尾中 敬 2016, 星間ダストサイズ分布, サイズ分布ビッグピクチャー研究会 (招待講演) 千葉工業大学スカイツリータウンキャンパス (東京都墨田区) 2016年2月11日–12日

(7) Onaka, T. 2015, Organic dust in galaxies (招待講演), The 11th Pacific Rim Conference on Stellar Astrophysics, Physics and Chemistry of the Late Stages of Stellar Evolution, Hong Kong, PR China, 2015年12月14日–17日

(8) Buragohain, M., Pathak, M., Sarre, P., Onaka, T., and Sakon, I. 2015, Mid-infrared vibrational study of substituted PAHs: implications to aromatic infrared bands, Cosmic Dust VIII, 千葉工業大学スカイツリータウンキャンパス (東京都墨田区) 2015年8月17日–21日

(9) Onaka, T., Mori, T. I., Sakon, I., and Shimonishi, T. 2015, Interstellar ices as revealed by AKARI near-infrared spectroscopy, Cosmic Dust VIII, 千葉工業大学スカイツリータウンキャンパス (東京都墨田区) 2015年8月17日–21日

(10) Onaka, T., Mori, T., Sakon, I., Shimonishi, T. 2015, AKARI near-infrared spectroscopy of interstellar ices (招待講演), Focused Meeting 12, Bridging Laboratory Astrophysics and Astronomy, IAU General Assembly, Honolulu, Hawaii, U.S.A. 2015年8月3日-5日

(11) Onaka, T., Nakamura, T., Sakon, I., Ohsawa, R., Mori, T., Wu, R., Kaneda, H. 2015, AKARI observations of dust processing in merger galaxies: NGC2782 and NGC7727, IAU Symposium 315, From Interstellar Clouds to Star-forming Galaxies: Universal Processes? IAU General Assembly, Honolulu, Hawaii, U.S.A., 2015年8月3日-7日

(12) Onaka, T., Mori, T., Sakon, I., Bell, A., Ohsawa, R., Shimonishi, T., and Ishihara, D. 2015, Near-infrared spectroscopy of galactic PDRs with AKARI, 30 years of PhotoDissociation Regions, A symposium to honor David Hollenbach's lifetime in science, Asilomar, U.S.A., 2015年6月28日-7月3日

[その他]

ホームページ等

<http://komatta.astron.s.u-tokyo.ac.jp>

## 6. 研究組織

### (1) 研究代表者

尾中 敬 (ONAKA, Takashi)

東京大学・大学院理学系研究科・教授

研究者番号：30143358

### (2) 研究協力者

Christine Joblin

Institute de Recherche en Astrophysique (IRAP)

・主任研究員

Amit Pathak

Tezpur University・物理学科・准教授

Roni Wu

Paris Observatory・研究員

Mahadevappa Naganathappa Swami

Gitam University・物理学科・助教