

平成 21 年 5 月 8 日現在

研究種目：基盤研究 (B)
 研究期間：2007～2008
 課題番号：19340167
 研究課題名 (和文) 星間分子の新しい重水素濃集メカニズム：極低温星間塵表面反応
 研究課題名 (英文) Role of cosmic-grain surface reactions in the deuterium fractionation of interstellar molecules
 研究代表者
 渡部 直樹 (WATANABE NAOKI)
 北海道大学・低温科学研究所・准教授
 研究者番号：50271531

研究成果の概要：

星間分子の重水素濃集プロセスとして研究代表者らが提唱している極低温星間塵表面反応を、実験により定量的に評価した。特に、高度な重水素濃集が観測で確認されているホルムアルデヒド、メタノールの重水素化表面反応に焦点をあて、重要な反応経路について実効的な反応速度定数を決定し、上記分子種に関する重水素濃集の星間塵表面反応ネットワークを完成させた。

交付額

(金額単位：円)

	直接経費	間接経費	合計
2007年度	8,800,000	2,640,000	11,440,000
2008年度	5,100,000	1,530,000	6,630,000
年度			
年度			
年度			
総計	13,900,000	4,170,000	18,070,000

研究分野：宇宙化学物理

科研費の分科・細目：地球惑星科学・地球宇宙化学

キーワード：重水素濃集，星間塵，極低温表面反応

1. 研究開始当初の背景

分子雲や彗星で観測される星間分子や、隕石中に存在する有機分子の中には、重水素が高度に濃集したものが数多く存在する。重水素濃集のシナリオとして、分子雲で高度に濃集したものが、分子雲→原始太陽系星雲→太陽系に至る進化過程で、徐々に濃集度を減少させていったと考えるのが一般的だが、具体的な機構はよく分かっていない。

我々は、 H_2CO および CH_3OH が極低温の星間塵表面原子付加反応で非常に効率的に生成され

ることを、これまでの実験で明らかにした。この研究から、星間塵表面で生成される分子種では、重水素濃集も表面反応で起こり得ると考えるに至った。実際、これまでに高度の重水素濃集が認められた分子種はいずれも塵表面反応によって生成されると考えられているものばかりである。分子雲で生成された分子は隕石に見られるような複雑な有機分子の起源でもある。その意味でも星間塵表面における濃集プロセスは極めて重要と考えている。

2. 研究の目的

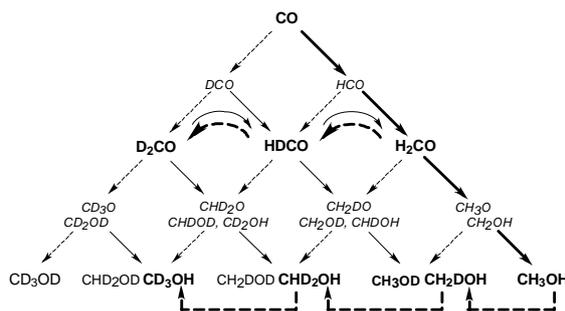
本研究では、表面原子反応実験を星間塵で生成される重要な星間分子、特にホルムアルデヒド、メタノールを中心に行い、分子雲における H/D 分別機構の全容解明をめざす。具体的には、対象とする分子の重水素体を生成する反応経路を明らかにし、それぞれの実効的な反応速度定数を求める。得られたデータと天文観測とを比較し、各分子種における重水素濃集への表面反応の寄与を定量化する。

3. 研究の方法

超高真空槽に設置した極低温基板に疑似星間塵表面(アモルファス H₂O 氷)を作製し、その上に反応に関わる親分子を蒸着する。本研究では、H₂CO、D₂CO を主として用いた。この試料表面にマイクロ波放電で生成した H もしくは D 原子を照射し、試料組成の変化を反射型赤外吸収分光計で観測する。原子は冷凍機により並進温度 100K まで冷却されており、フラックスは四重極質量分析計によりモニターされる。親分子、生成分子の柱密度の時間変化から反応経路と実効的な反応速度定数を求める。

4. 研究成果

ホルムアルデヒドにおける H-D (D-H) 置換反応、H,D 原子付加反応の実効的な反応速度を求めた。これまでの研究成果と併せると、CO-ホルムアルデヒド-メタノールを含めた反応系のうち、主要な反応経路の実効反応速度がすべて明らかになったことになる。本研究により構築された星間塵表面反応ネットワークを下図 ([雑誌論文] ①より) に示す。



ホルムアルデヒド、メタノールは星間塵表面で CO 分子から生成する。実線は H 原子反応、破線は D 原子反応を意味する。測定から得られた反応速度定数から、ホルムアルデヒド、メタノールの重水素濃集は破線を含む太矢印の経路 (三角形の辺および H₂CO-D₂CO の平行移動) で進むことが分かった。つまり、H, D の交互逐次付加 (三角形内部の上から下への経路) ではなく、CO への H 原子逐次付

加で H₂CO, CH₃OH が生成し、その後 H-D 置換反応する経路が重要である。シミュレーション実験を行ったところ、この星間塵表面反応ネットワークで天文観測をうまく説明できることが分かった。

水分子の重水素濃集過程に関して予備的な実験も行った。O₂ 分子への H, D 原子逐次付加反応を調べた。水分子における H-D (D-H) 置換反応は観測されなかったが、CO-ホルムアルデヒド-メタノール反応系と比較して反応可能温度域は 10K ほど高く、反応速度は 10~100 倍大きいことが分かった。D 付加反応により重水は速やかに生成されるが、H₂O からの重水素化 (交換) が無いので、宇宙空間では比較的濃集が抑えられるのかもしれない ([雑誌論文] ④)。

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)

下記掲載はすべて査読有り

1. Naoki Watanabe & Akira Kouchi, "Ice surface reactions: A key to chemical evolution in space", *Prog. Surf. Sci.*, **83**, 439-489 (2008)

2. A. Yabushita, T. Hama, D. Iida, N. Kawanaka, M. Kawasaki, N. Watanabe, M. N. R. Ashfold, & H-P. Loock, "Release of hydrogen molecules from the photodissociation of amorphous solid water and polycrystalline ice at 157 and 193 nm", *J. Chem. Phys.*, **129**, 044501 (2008)

3. A. Yabushita, T. Hama, D. Iida, N. Kawanaka, M. Kawasaki, N. Watanabe, M. N. R. Ashfold, & H-P. Loock, "Measurements of energy partitioning in H₂ formation by photolysis of amorphous water ice", *Astrophys. J.* **682**, L69-L72 (2008)

4. N. Miyauchi, H. Hidaka, T. Chigai, A. Nagaoka, N. Watanabe & A. Kouchi: "Formation of hydrogen peroxide and water from the reaction of cold hydrogen atoms with solid oxygen at 10 K", *Chem. Phys. Lett.* **456**, 27-30 (2008)

5. H. Hidaka, N. Miyauchi, A. Kouchi & N. Watanabe, "Structural effects of ice grain surfaces on the hydrogenation of CO at low temperatures", *Chem. Phys. Lett.* **456**, 36-40 (2008)

6. N. Watanabe, O. Mouri, A. Nagaoka, T. Chigai, A. Kouchi & V. Pirronello "Laboratory Simulation of Competition between Hydrogenation and Photolysis in the Chemical Evolution of H₂O-CO Ice Mixtures", *Astrophys. J.*, **668**, 1001-1011 (2007)

7. H. Hidaka, A. Kouchi & N. Watanabe, "Temperature, composition, and hydrogen isotope effect in the hydrogenation of CO at 10 - 20 K", *J. Chem. Phys.*, **126**, 204707 (2007)

8. A. Nagaoka, N. Watanabe, & A. Kouchi, "Effective rate constants for the surface reaction between solid methanol and deuterium atoms at 10 K", *J. Phys. Chem. A*, **111**, 3016-3028 (2007)

9. 渡部直樹, 香内晃, 毛利織絵, 長岡明宏, 日高宏, 「アモルファス氷星間塵：宇宙における化学進化の舞台」 *J. Vac. Soc. Jpn. (真空)*, **50**, 282-290 (2007)

[学会発表] (計 25 件)

1. 香内晃, 渡部直樹 他, 「分子雲における表面原子反応による分子進化」, アストロバイオロジーワークショップ2008, 2008.12.20-12.21, 葉山, 神奈川

2. 宮内直弥, 日高宏 他, 「水素原子付加反応による水分子生成機構 -アモルファス氷の触媒的効果-」, 第7回水素量子アトムクス研究会, 2008.11.21, 新潟大

3. 日高宏 他, 「低温ホルムアルデヒド表面における水素・重水素原子交換反応」, 第7回水素量子アトムクス研究会, 2008.11.21, 新潟大

4. 大場康弘, 宮内直弥, 日高宏 他, 「極低温表面原子反応 O₂+H による水分子生成 -アモルファス氷の触媒効果-」, 日本惑星科学会秋季講演会, 2008.11.1-11.3, 九州大学

5. N. Watanabe, "Experimental approach to grain surface reactions of hydrogenation and deuterium atoms", International Lorentz Center Workshop: Interstellar Surfaces: From Laboratory to Models, 2008.10.5-10.10, Leiden Univ., The Netherlands

6. N. Watanabe et al., "Effective rate constants for H-D substitution reactions in

methanol on the surface at 10 K", Workshop for Interstellar Matter 2008, 2008.9.4-6, Hokkaido Univ.

7. N. Watanabe et al., "Laboratory simulation of competition between hydrogenation and photolysis in the chemical evolution of H₂O-CO ice mixtures", Workshop for Interstellar Matter 2008, 2008.9.4-6, Hokkaido Univ.

8. H. Hidaka et al., "Structural effects of icy grain surfaces in CO hydrogenation at a low temperature", Workshop for Interstellar Matter 2008, 2008.9.4-6, Hokkaido Univ.

9. H. Hidaka et al., "H-D substitution reactions of formaldehyde on icy grain surfaces at low temperatures", Workshop for Interstellar Matter 2008, 2008.9.4-6, Hokkaido Univ.

10. Y. Oba, N. Miyauchi, H. Hidaka et al., "H-D substitution reactions of formaldehyde on icy grain surfaces at low temperatures", Workshop for Interstellar Matter 2008, 2008.9.4-6, Hokkaido Univ.

11. 渡部直樹, 「星間空間における化学進化と低温氷表面反応」, 原子衝突研究協会第33回研究会, 2008年8月6日, 北海道大

12. 日高宏 他, 「低温固体表面におけるホルムアルデヒドの H-D 交換反応」, 原子衝突研究協会第33回研究会, 2008年8月6日, 北海道大

13. 宮内直弥, 日高宏 他, 「低温アモルファス氷上表面原子反応による水分子生成機構」, 原子衝突研究協会第33回研究会, 2008年8月6日, 北海道大

14. 宮内直弥, 大場康弘, 日高宏 他, 「星間塵氷マントル生成：水素原子-酸素分子表面反応」, 日本地球惑星科学連合大会, 2008年5月25日, 幕張メッセ

15. N. Watanabe, "Grain surface chemistry fractionation routes", The Molecular Universe: an International Meeting on Physics and Chemistry of the Interstellar Medium, 2008.5.8, Arcachon, France

16. H. Hidaka et al., "The effects of ice morphology in hydrogenation of CO at low temperature ice surface", The Molecular

Universe: an International Meeting on Physics and Chemistry of the Interstellar Medium, 2008.5.8, Arcachon, France

17. 日高 宏 他, 「低温氷表面での水素原子付加反応 - アモルファスと結晶による違い - 」, 日本物理学会, 2008.3.24, 近畿大, 大阪

18. 宮内直弥, 大場康弘, 日高 宏 他, 「低温酸素固体表面への水素原子付加反応」, 日本物理学会, 2008.3.24, 近畿大, 大阪

19. 高遠徳尚, 長岡明宏, 渡部直樹, 香内晃, 「UV 光による H₂O 氷のアモルファス化」, 日本天文学会, 2007 年 9 月 28 日, 岐阜大

20. N. Watanabe et al., “Laboratory study of chemical processes on interstellar ice grains”, Extraterrestrial ice, IUGG General Assembly, 2007 年 7 月 1 日, Perugia, Italy

21. 高遠徳尚, 長岡明宏, 渡部直樹, 香内晃, 「UV 光による氷のアモルファス化の温度依存性」, 日本地球惑星科学連合大会, 2007 年 5 月 24 日, 幕張メッセ

22. 日高宏 他, 「H₂O 氷表面における CO 分子 - 水素原子反応 : アモルファス氷 vs. 結晶氷」, 日本地球惑星科学連合大会, 2007 年 5 月 24 日, 幕張メッセ

23. 長岡明宏, 渡部直樹 他, 「Chemical evolution of CO molecule on interstellar grain surfaces: Photolysis vs. Hydrogenation」, 日本地球惑星科学連合大会, 2007 年 5 月 24 日, 幕張メッセ

24. N. Watanabe, “Evolution of CO molecule on ice covered grains”, International Astrophysics and Astrochemistry Meeting: Molecules in Space & Laboratory, 2007 年 5 月 14 日, Paris, France

25. H. Hidaka et al., “The structural effects of ice grain surfaces on the hydrogenation at low temperatures”, International Astrophysics and Astrochemistry Meeting: Molecules in Space & Laboratory, 2007 年 5 月 14 日, Paris, France

6. 研究組織

(1) 研究代表者

渡部 直樹 (WATANABE NAOKI)

北海道大学・低温科学研究所・准教授

研究者番号 : 50271531

(2) 研究分担者

日高 宏 (HIDAKA HIROSHI)

北海道大学・低温科学研究所・助教

研究者番号 : 00400010