

平成 21 年 5 月 18 日現在

研究種目：若手研究（B）
 研究期間：2007 ～ 2008
 課題番号：19740301
 研究課題名（和文） 極低温星間塵表面における励起水素分子生成ダイナミクスの解明
 研究課題名（英文） Study for the energy partition process in H₂ formation by the H-H recombination on interstellar grain surface
 研究代表者
 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

研究成果の概要：極低温星間塵表面上で生成・脱離した水素分子の反応熱分配過程を実験的に明らかにするため、低温基板表面で水素原子の結合反応により水素分子を生成し、脱離した水素分子の運動・振動・回転エネルギー分布を測定する実験装置を構築した。

交付額

(金額単位：円)

	直接経費	間接経費	合計
2007 年度	1,700,000	0	1,700,000
2008 年度	1,600,000	480,000	2,080,000
年度			
年度			
年度			
総計	3,300,000	480,000	3,780,000

研究分野：星間化学

科研費の分科・細目：地球惑星・超高層物理学

キーワード：惑星間空間・星間化学

1. 研究開始当初の背景

(1) 水素分子は宇宙空間で最も存在量が多く始原的な分子である。また、宇宙で生じる化学反応の出発物質であることや、星間水素分子の内部エネルギー状態（回転準位や振動準位分布等）が観測対象の環境（温度、宇宙線や紫外線量等）を探るプローブとして用いられ、非常に重要な分子であると言える。しかしながら、その生成過程は未だに明らかになっていない。

2 個の水素原子の結合により水素分子が生成されるとき、約 4.5 eV の余剰エネルギー（反応熱）を光放出で逃がすことができない（禁制遷移）ために、気相反応による水素原子の二体衝突では生成されない。そこで、宇宙空間に存在する星間塵表面での結合反応

が注目された。表面がエネルギーを逃がす第三体として効率よく働くと考えられるためである。

(2) 90 年代に入り、先行研究により、擬似星間塵表面上での水素分子生成実験が行われ始め、塵表面における水素分子生成の有効性が実験的に示されてきた。しかし、これらの研究は水素分子の生成率を測定しているだけであり、水素分子生成時の膨大な反応熱に関する情報は全く得られていない。

(3) これまで、水素分子生成時に発生する膨大な反応熱は星間化学や天文学ではほとんど考慮されていない。実際には、放出される反応熱は塵表面に吸収されるだけでなく、

生成分子の並進・振動励起・回転励起エネルギーにも分配され、励起水素分子が生成される。励起分子は、化学反応における反応性を飛躍的に増加させ、また塵に逃がしたエネルギーは塵を温め、吸着分子の蒸発を引き起こす。水素分子生成時の反応熱余剰分配過程の解明は、物理化学的な興味のみならず、星間化学・天文学等にも大きく寄与するテーマである。

2. 研究の目的

本研究の目的は、室内実験により、極低温表面原子反応により生成された水素分子の反応熱分配過程を明らかにすることである。

具体的には、極低温擬似星間塵表面に水素分子を照射し、表面で生成・脱離した水素分子の内部励起（振動、回転）状態分布の測定および、それぞれの内部励起状態に対応した脱離水素分子の運動エネルギー測定を行う。

上記測定を行うための実験装置を構築することも合わせて本研究課題の目的としている。

3. 研究の方法

実験は以下に示す手順にて執り行う。

(1) 超高真空槽に設置された冷凍機により、真空槽内の擬似星間塵表面固体を 10-20K に冷却する。表面物質としてアモルファス氷を用いる場合には、金属基板を冷却後、 H_2O ガスを蒸着することによりアモルファス氷を作成する。

(2) H_2 ガスをマイクロ波によって放電させ、 H 原子を解離生成する。本研究は分子雲内で生じる反応のシミュレーション実験であるため、生成された水素原子は数十 K 程度の並進運動エネルギー程度に冷却する必要がある。そのため、生成された H 原子を 50K に冷却された H 原子冷却管に入射させ、冷却管との衝突により H 原子の運動エネルギーを 50K 程度に冷却する。

(3) 連続ビームを用いると試料基板が設置されている水素原子結合反応領域の真空度が著しく悪くなる。よって、反応領域の高い真空度を保つために、原子ビームチョッパー（真空内で高速回転しているスリットの入ったディスクで、原子ビームをパルス化する装置）を用いて H 原子ビームのパルス化を行う。

(4) パルス化された H 原子は極低温基板表面に吸着し、表面での再結合により H_2 分子が形成される。形成された H_2 分子は反応熱により表面から脱離する。表面から脱離した H_2 分子を、波長可変色素レーザーを用いた、多光子共鳴イオン化法（特定の振動回転状態の分子を選択的にイオン化）によってイオン化する。イオン化された水素分子は飛行時間型質量分析器で飛行時間測定され、検出器（二

次電子増倍管）によって検出される。脱離した水素分子の運動エネルギーは、後述（次節）の遅延時間から求められる。

上述した測定を行うためには、既存の実験装置に新たに、原子ビームチョッパーと飛行時間型質量分析器を製作・導入することが必要とされる。（下図の青色部）

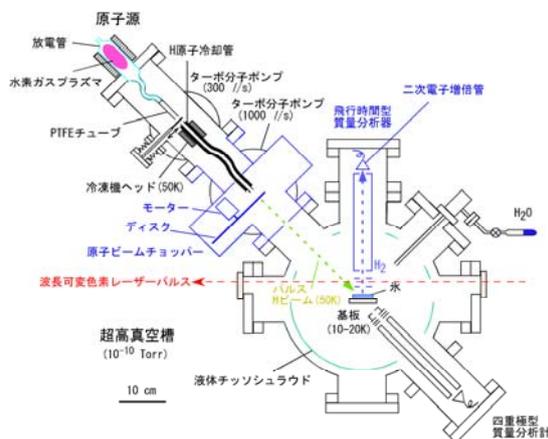


図 1. 実験装置図

4. 研究成果

極低温擬似星間塵表面に水素分子を照射し、表面で生成・脱離した水素分子の内部励起（振動、回転）状態分布の測定および、それぞれの内部励起状態に対応した脱離水素分子の運動エネルギー測定を行うために、原子ビームチョッパーと飛行時間型質量分析器開発を含む測定システムの構築を行った。

(1) 原子ビームチョッパーシステムの開発

スリットの入った回転ディスクを用いて原子ビームをパルス化する方法を採用した。回転を駆動するモーターは外部パルスで制御するように設定し、回転速度の一定性を実現するために、ディスクの軽量化・回転を制御する制御式の定数の最適化を行った。その結果、原子ビームパルスの揺れはおよそ 40 μs 程度になり、実験を行う上で許容できるレベルであるが、このパルスビームの揺れは今後より改善される必要がある。

(2) 飛行時間型質量分析器の開発

イオン起動計算ソフトを用いて、飛行時間型質量分析器の設計・制作を行った。 H_2 ガスを用いた予備実験にて良好な動作を確認した。

(3) 外部パルスによる測定システムの確立

ビームチョッパーにより原子をパルス化した後、波長可変色素レーザーで水素分子をイオン化するまでには、原子および生成水素分子の飛行時間分の遅延が必要である（図 2）。

そこで、デジタルディレイを用いて遅延時間を設定し、レーザーイオン化のトリガーとする。つまり、イオンのパルス化、イオン化レーザーの動作など高精度な装置間の連携が必要になる。

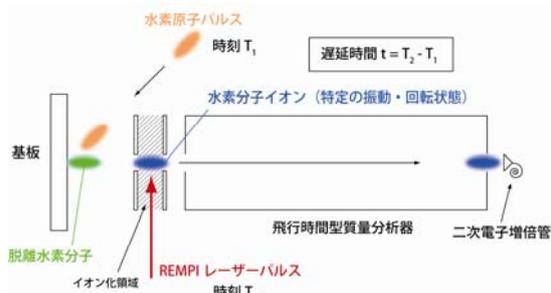


図2. イオン化までの概略図

本研究では、複数の装置を連続的に操作する必要があり、高精度なタイミング操作が要求されるため、すべての装置が一つの外部パルスで動作するようにシステムを構築した(図3)。構築した測定システムの前準備的な動作チェックのために、原子源の代わりにパルスバルブを用いた分子線源と吸着分子を脱離させるための脱離用レーザーをシステムに組み込んでいる(図3参照)。

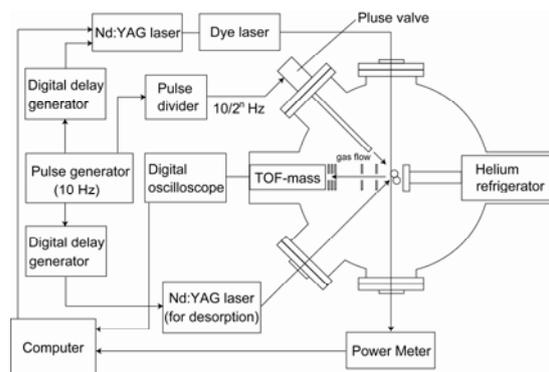


図3. 構築した測定システムの概略図

構築した測定システムを用いて、水素分子線のパルス化から、吸着水素分子の脱離およびその脱離分子のイオン化、検出までの動作を確認し、実験装置の開発が完了した。

図4に波長可変色素レーザーパルスの動作チェックのために測定した、水素分子の回転状態スペクトルを示す。本研究課題において開発した実験装置を用いることで、低温基板表面で生成・脱離する水素分子を各振動・回転状態について測定を行い、図4に示すような内部エネルギー状態分布スペクトルを得ることにより、水素分子生成における反応熱分配過程を実験的に明らかにすること可能になった。

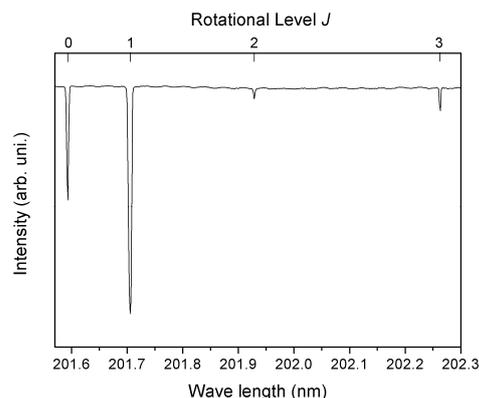


図4. 電子・振動基底状態にある水素分子の回転状態分布

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 4 件)

すべて査読あり

① 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)

② 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)

③ H. Hidaka, A. Kouchi, N. Watanabe, Temperature, composition, and hydrogen isotope effect in the hydrogenation of CO on amorphous ice surface at 10-20 K, *J. Chem. Phys.*, **126**, 204707 (2007)

④ 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.*, **50**, 282-290 (2007)

[学会発表] (計 19 件)

① 宮内直弥, 大場康弘, 日高宏, 千貝健, 渡部直樹, 香内晃, 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効果 -, 第7回水素量子アトムクス研究会, 2008年11月21日, 新潟大学

② 日高宏, 渡辺元浩, 香内晃, 渡部直樹, 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年11月21日, 新潟大学

③大場康弘, 宮内直弥, 千貝健, 日高宏, 渡部直樹, 香内晃, 極低温表面原子反応 O_2+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 2008 年秋季講演会, 2008 年 11 月 3 日, 九州大学

④大場康弘, 宮内直弥, 千貝健, 日高宏, 渡部直樹, 香内晃, 極低温表面原子反応による水分子生成, 日本地球化学会第 55 回年会, 2008 年 9 月 19 日, 東京大学

⑤H. Hidaka, N. Miyauchi, A. Kouchi, N. Watanabe, Structural effects of icy grain surfaces in CO hydrogenation at a low temperature, Work shop for Interstellar Matter 2008, 4-5 Sep.2008, Hokkaido Univ.

⑥H. Hidaka, M. Watanabe, A. Kouchi, N. Watanabe, H-D substitution reactions of formaldehyde on icy grain surfaces at low temperatures, Work shop for Interstellar Matter 2008, 4-5 Sep.2008, Hokkaido Univ.

⑦Y. Oba, N. Miyauchi, T. Chigai, H. Hidaka, N. Watanabe, A. Kouchi, Effective formation of H_2O by the H-addition to solid O_2 on amorphous D_2O ice, Work shop for Interstellar Matter 2008, 4-5 Sep.2008, Hokkaido Univ.

⑧日高宏, 渡辺元浩, 渡部直樹, 香内晃, 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, 第 33 階原子衝突研究会, 2008 年 8 月 7 日, 北海道大学

⑨宮内直弥, 日高宏, 千貝健, 渡部直樹, 香内晃, 極低温アモルファス氷上表面原子反応による水素分子生成機構, 第 33 階原子衝突研究会, 2008 年 8 月 7 日, 北海道大学

⑩大場康弘, 宮内直弥, 日高宏, 渡部直樹, 香内晃, 極低温表面原子反応によるアモルファス H_2O 氷生成, 日本地球惑星科学連合同大会, 2008 年 5 月 20 日, 幕張メッセ

⑪A. Kouchi, N. Miyauchi, H. Hidaka, T. Chigai, A. Nagaoka, N. Watanabe, H_2O ice formation from the reaction of cold H atoms with solid O_2 at 10 K, Solar System Ices, 6 May 2008, California

⑫N. Watanabe, H. Hidaka, N. Miyauchi, A. Kouchi, Grain surface chemistry: fractionation routes, The Molecular Univers: An international meeting on the Physics and Chemistry of the Interstellar Medium, 7 May 2008, Arcahon

⑬H. Hidaka, N. Miyauchi, A. Kouchi, N. Watanabe, The effects of ice morphology in hydrogenation of CO at low temperature ice surface, The Molecular Univers: An international meeting on the Physics and Chemistry of the Interstellar Medium, 5-6 May 2008, Arcahon

⑭日高宏, 宮内直弥, 香内晃, 渡部直樹, 低温氷表面での水素原子付加反応-アモルファス氷と結晶による違い-, 日本物理学会第 63 回年会, 2008 年 3 月 24 日, 近畿大学

⑮宮内直弥, 日高宏, 長岡明宏, 渡部直樹, 香内晃, 低温酸素固体表面への水素原子付加反応, 日本物理学会第 63 回年会, 2008 年 3 月 24 日, 近畿大学

⑯日高宏, 宮内直弥, 香内晃, 渡部直樹, 低温氷表面での水素原子反応における氷構造の影響 - アモルファスと結晶の比較 -, 第 6 回水素量子アトムクス研究会, 2007 年 12 月 13 日, 北海道大学

⑰N. Watanabe, A. Nagaoka, H. Hidaka, A. Kouchi, Laboratory study of chemical processes on interstellar ice grains, XXIV International Union of Feodesy and Geophysics (IUGG) General Assembly, 11 Jul. 2007, Perugia

⑱H. Hidaka, N. Watanabe, A. Kouchi, The structural effect of ice grain surfaces on the hydrogenation of CO at low temperatures, International Conference on Molecules in Space and Laboratory, 14 May 2007, Paris

⑲日高宏, 香内晃, 渡部直樹, H_2O 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 2007 年大会, 2007 年 5 月 24 日, 幕張メッセ

6. 研究組織

(1) 研究代表者

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