

平成 30 年 6 月 13 日現在

機関番号：13801

研究種目：基盤研究(C) (一般)

研究期間：2015～2017

課題番号：15K05363

研究課題名(和文) ガス銃衝突で発生する高温ブルームと有機分子合成過程の研究

研究課題名(英文) Study of hot-gas plume and synthesis of organic-molecules in gas-gun impact experiment

研究代表者

三重野 哲 (Mieno, Tetsu)

静岡大学・創造科学技術大学院・教授

研究者番号：50173993

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 3,500,000円

研究成果の概要(和文)：窒素ガス中で飛翔体を固体ターゲットに衝突させ、高温ガスブルームを発生させた。このガスブルームを16 ch 探針で測定した。その結果、電子温度 約1万、プラズマ密度 10の14乗/立方m 程度のプラズマが発生することが分かった。高温ガスブルームの冷却過程で種々の化学反応が起き、合成された炭素ナノ粒子が秒速2 km/sで噴出した。合成炭素ススを液体クロマトグラフ法などで分析し、グリシンなど12種類のアミノ酸が合成されることが分かった。一方、鏡像異性体については、L型アミノ酸が過剰であった。モデル理論の検討により、ブルーム中で多量のCNラジカルが発生し、そこからアミノ酸が合成されると見ている。

研究成果の概要(英文)：By using a 2-stage light gas-gun, a polycarbonate bullet impacts onto a metal target in nitrogen gas and a hot gas plume is generated. Using a 12-ch Langmuir probe array, the plasma parameters are measured in the plume, by which the electron temperature of about 10000 C and the plasma density of about 10 to the power of 14 per cubic meter are obtained. During the cooling process of the plume, a lot of carbon nano-particles are synthesized and jetted out from the reaction chamber with a speed of about 2 km/s. The produced carbon soot is measured by the liquid chromatograph method, and 12 kinds of amino acids are detected. By the chiral isomer analysis, excess amount of L-type amino acid is detected. Reason of this deviation is now under investigation. By a model reaction analysis, we could make the reaction roots from CN radicals to amino acids in the hot gas plume.

研究分野：プラズマ科学の実験的研究 ナノ材料合成の研究 宇宙環境科学の研究

キーワード：小惑星衝突 高温ガスブルーム 有機分子合成 アミノ酸合成 軽ガス銃実験 プラズマ発生 炭素ナノ粒子 タイタン

1. 研究開始当初の背景

研究代表者は、約 6 年間にわたり、2 段式軽ガス銃を用い、高速飛翔体をガス中でターゲットに衝突させ、発生する高温ガスプラズマ中での合成反応を研究してきた。ポリカーボネート弾 (直径 7.1 mm、質量 0.23 g) などを、速度 6.5 km/s (4.5 kJ) で、鉄ターゲット (鉄+氷ターゲット) へ衝突させ、高温気体を発生させる。このプラズマが、窒素 1 気圧のガス中で拡散・冷却する過程で、化学反応が起き、種々のクラスター、分子が合成される。(図 1 参照) これまで、金属ナノ粒子入り炭素カプセル、バルーン状ナノ炭素、フラーレン、ナノチューブの合成が確認されている。[Ref. 1] また、プラズマの寿命は、約 100 μ s、CN 分子回転温度は、約 5000 K であった。

H23-25 年度科学研究費・基盤 (C) に採択され、研究を進め、タイタン衛星 [Ref. 2] などの衛星/惑星表面へ小惑星が衝突した時の衝突反応のモデル実験として、成果を出している。これらは、世界的に新しい成果である。これらの研究成果を基に、研究のさらなる発展を目標とした。

衝突で発生するプラズマの密度、電子温度、イオン種、微粒子帯電量は不明である。衝突で作られるプラズマ状態、プラズマ流、ターゲットの加熱過程の理論も解明したかった。また、宇宙での有機物合成の機構との関係も明らかにしたかった。

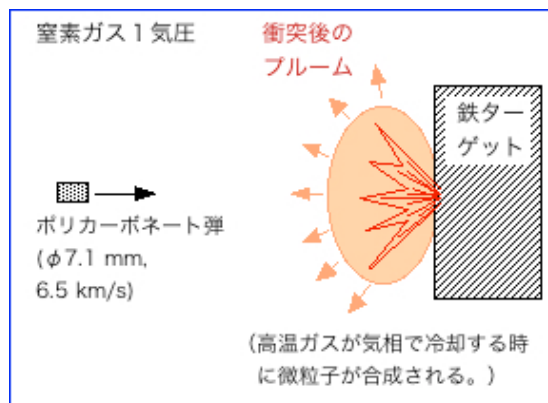


図1 ガス銃衝突反応での合成モデル。(高温プラズマの中で原子が冷却し、新しい分子が発生する)。

2. 研究の目的

宇宙での小惑星衝突反応のモデル実験として、2 段式軽ガス銃を用い、窒素ガス中で飛翔体をターゲットに衝突させ、高温ガスプラズマ中での気相反応実験を行っている。1) 衝突プラズマ内で、プラズマが発生している。衝突でどのようにプラズマが発生し、拡散・消滅するか、解明する。また、プラズマ中に存在する微粒子の帯電状態も解明したい。ここでは、小型多電極リングミュラプローブと平行板電場型電荷測定器、高速度カメラなどを用いて、飛翔体衝突で発生する微粒子プラズマの特性と衝撃現象を明らかにする。

2) 炭素微粒子以外に、アミノ酸のような有機分子の合成が確認された。これは、宇宙における、新たなアミノ酸合成過程と考えられる。ここでは、アミノ酸やニトリル系分子の合成と衝突条件の関係を調べ、どのようにしてアミノ酸等有機分子が合成されるか研究する。

3. 研究の方法

1) これまで、2段式軽ガス銃のターゲット室内に与圧室を置き、窒素 1 気圧中での衝突実験を行ってきた。この与圧室とターゲット室を利用して、実験を進める(図2参照)。

2) リング状に配置した 16 電極小型リングミュラプローブと測定回路を開発する。種々の電位を電極に加えておき、瞬時のプラズマ流に対して、プローブ特性の時間変化を測定する。この測定により、衝突条件とプラズマ(電子密度、電子温度)の関係を調べ、プラズマの発生・消滅モデルを立てる。また、衝撃加熱の様子も調べる。

3) 合成されたアミノ酸分子の分析。合成試料を熱水還流し、濾過し、その後、ダブシル化反応させる。その液体を高速液体クロマトグラフ分析し、合成アミノ酸の種類と量を分析

する。飛行時間型質量分析装置を用い、合成分子の質量分析を行う。FT-IRにより、分子の化学結合(C-Nなど)を調べる。以上より、どのようなアミノ酸がどれだけ合成されたかを明らかにする。試料の加水分解により、重合しているアミノ酸の分析を行う。

4) 衝突ガスプルーム内の微粒子の運動と帯電量を測定する。高速度カメラにより、飛翔体衝突からプルーム拡散までを動画撮影し、プルーム寿命、プルーム拡散の性質を明らかにする。発生微粒子の帯電量(電荷)と速度を測定するため、静電場型荷電粒子偏向装置を開発する。電極間隔 20 cm、長さ40 cm、印加電圧 300 V の平行平板電極にて、粒子軌道偏向を測る。与圧室の前にこの電極を置き、スポットライトを当てる。そして、側面より、高速度カメラ ($\Delta t = 1 \mu s$) で粒子軌跡を観測する。電場内軌跡より電荷を測定する。また、堆積した微粒子の電子顕微鏡観察により、微粒子サイズを分析する。この測定により、微粒子の発生と帯電についてのモデルを立てる。

5) 衝突条件とアミノ酸合成の関係を明らかにする。「どのような条件でアミノ酸分子合成が高効率に起きるか?」を実験的に調べる。ターゲット原料(水+鉄、ヘキササン+鉄、鉄のみなど)、飛翔体条件(材質、速度)とアミノ酸合成量の関係を実験的に調べる。高温プルーム内で発生するラディカル分子から、どのようにアミノ酸が合成されるか、合成過程のモデルを作り、化学ポテンシャルに合う化学反応かを検証する。内外のこれまでの研究と比較する。

6) マルチチャンネル分光器を用い、プルーム発光の分光測定(時間平均値)を行い、CN, C₂, CH などの分子の発生、拡散情報を得る。この発光計算データから、分子の回転温度と密度を得る。次に、ストリークカメラを用い、発光スペクトルの時間分解測定を行う。そして、

分子回転温度と密度の時間変化情報を得る。

7) 成果の公表。国際的な論文誌に投稿し、成果を公表する。関連した国際会議で発表し、討論を行う。

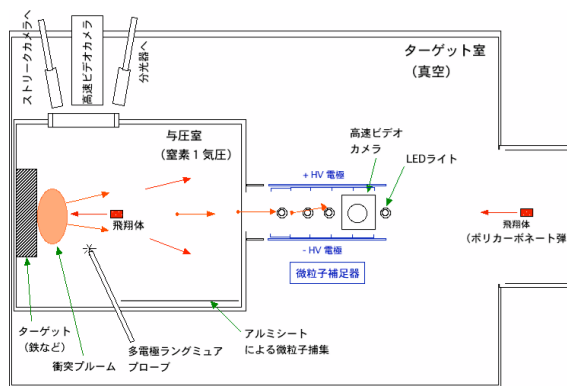


図2 ターゲット室内にセットされた与圧室に、窒素 1 気圧を導入し、右側より飛翔体を入射。窒素ガス中で衝突反応を引き起こす。

4. 研究成果

計画どおり、ガス銃衝突実験を遂行できた。そして、期待される実験データ、合成炭素すす試料を得ることができた。高温ガスプルームの発生においては、高速ビデオカメラにより、高温ガスプルームの発生・成長・消滅過程を記録することができた。そして、CN 分子発光のスペクトル分析より、その回転温度を得ることができた。プラズマ測定においては、多電極ラングミュアプローブ法により、電子密度を測定することができた。

与圧室入り口部に置かれた平行板電極を用いて、噴出する微粒子の流れや電流を測定することができた。直径約 20 nm の微粒子が、速さ約 2 km/s で噴出する様子を記録することができた。この速さは、流体計算値と合う。飛翔体衝突時の圧力発生、高温発生について、ランキン・ユゴニオの式を用いて計算した。その結果、ターゲット上で、約 75 GPa の圧力と 4600 K の温度発生が得られた。この計算結果は、発光スペクトルより求めた温度や高速カメラ測定とほぼ一致した。流体シミュレーションを行うと、実験と合う形で、高温

ガスプルームが、ターゲットに対し、垂直前方へと吹き出して行く。

合成炭素すずの分析においては、純水還流抽出法、ダブル化反応、および、液体クロマトグラフ法を用いた定量分析に成功した。種々のアミノ酸の測定を正確に行うことができた。今後、より多くのアミノ酸分析について、分析方法を改良して行う予定である。外部からのアミノ酸不純物混入を防ぐ為、実験装置部品の高温度処理を行っている。また、予備分析を行い、この実験方法で混入する不純物がほとんど無い結果を得ている。一方、赤外分析法においても、アミノ酸の吸収スペクトルを再現性良く得ることができた。一方、合成炭素すずを化学処理し、液体クロマトグラフ分析することにより、12種類のアミノ酸の合成を確認した。また、光学異性体分析により、D体・L体の両方が、非生物的に合成されることが見出された。[Ref. 3]これらは、期待される成果であった。しかし、L体過剰は予測外の結果であり、その原因を調査する必要がある。「L型アミノ酸を合成する鑄型分子が存在する可能性がある。」と考えている。

合成炭素試料をTEM-EDS元素分析した。その結果、炭素ナノ粒子上に有機物が存在し、炭素と窒素原子の分布がほぼ重なることを見出した。これは、窒素を含む有機物が、微粒子上に多く存在することを示している。合成炭素試料をFT-IR分析した。その結果、アミノ酸に特有な窒素や炭素の結合を再現性良く検出した。これもアミノ酸合成の傍証となる。

ガス銃実験結果より、アミノ酸合成過程を検討した。高温ガスプルーム中で、 $C_2+N_2 \rightarrow 2CN$ の反応が起き、CN活性分子が合成され、冷却過程で、それらの分子の重合が進む。アミノ酸の安定化温度は、約250℃であるので、ガス相でのアミノ酸合成が起きにくい。そこで、「炭素ナノ粒子上の活性ラジカルが、表面拡

散し、粒子上でアミノ酸が合成を起こしている。」と考えている。これらの実験結果を元に論文を準備している。

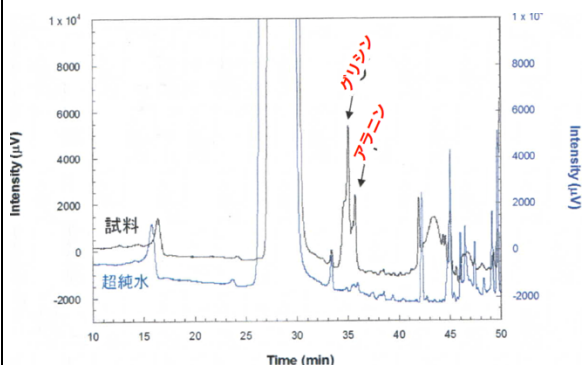


図3 合成すずを液体クロマトグラフで分析した結果。水+鉄ターゲットを用いた場合。

<引用文献>

- (1) T. Mieno, S. Hasegawa, K. Mitsuishi, "Production of various carbon nanoclusters by impact reaction using light-gas gun as simulation of asteroid collisions in space", *Jpn. J. Appl. Phys.* **50** (2011) 125102-1-6.
- (2) Eds. R. H. Brown, J-P. Lebreton, J. H. Waite, "Titan from Cassini-Huygens", Springer, 2009.
- (3) M. H. Engel, S. A. Macko, "Isotopic evidence for extraterrestrial non-racemic amino acids in the Murchison meteorite", *Nature* **389** (11997) 265-268.

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) T. Mieno, K. Ookouchi, K. Kondo, S. Hasegawa, K. Kurosawa, "Production of Carbonaceous Molecules by the Impact Reaction in Nitrogen Gas by Use of a Gas-Gun", *Advanced Materials Research*, 査読有り, **1117** (2015) 31-14
DOI:10.4028/www.scientific.net/AMR.1117.31
- (2) K. Okouchi, T. Mieno, K. Kondo, S. Hasegawa, K. Kurosawa, "Possibility of Production of Amino Acids by Impact Reaction Using a Light-Gas Gun as a Simulation of Asteroid Impacts", *Org Life Evol Biosph*, 査読有り, **45** (2015) 195-205
DOI: 10.1007/s11084-015-9419-4

[学会発表] (計18件)

- (1) 三重野哲, 「衝突現象での高温ガスプルームの

発生と有機分子の合成」, 静岡大・核融合科学研究所連携研究フォーラム(招待講演)

2018

- (2) 三重野哲、関口俊介、中村悟之、長谷川直、柴田裕実、癸生川陽子、小林憲正, 「小惑星の惑星/衛星への衝突によるアミノ酸合成(ガス銃を用いた模擬実験)」, 宇宙科学に関する室内実験シンポジウム, 2018
- (3) 三重野哲、関口俊介、中村悟之、長谷川直、柴田裕実、癸生川陽子、小林憲正, 「タイタンへの小惑星衝突によるアミノ酸合成(ガス銃を用いた模擬実験)」, 生命の起源および進化学会の第43回学術講演会, 2018
- (4) 三重野哲、関口俊介、長谷川直、柴田裕実、小林憲正, 「窒素ガス中衝突実験において気相合成されるアミノ酸の分析(小惑星衝突模擬実験)」, 日本物理学会第73回年次大会, 2018
- (5) S. Nakamura, T. Mieno, “Measurement of nano-particle flow in an impact-produced plasma and simulation of gas flow of gas gun experiment”, 18th Workshop on Fine Particle Plasmas (国際学会), 2017
- (6) 三重野哲、関口俊介、中村悟之、長谷川直、柴田裕実、阿部仁美、癸生川陽子、小林憲正, 「窒素ガス中ガス銃衝突反応で合成されるアミノ酸の分析」, 平成28年度宇宙科学に関する室内実験シンポジウム, 2017
- (7) 三重野哲、大河内一輝、関口俊介、長谷川直、阿部仁美、癸生川陽子、小林憲正, 「小惑星衝突によるアミノ酸合成の模擬実験(ガス銃実験)」, 日本物理学会第72回年次大会, 2017
- (8) T. Mieno, K. Okochi, S. Hasegawa, “Impact synthesis of amino acids on carbon nano-particles in nitrogen gas”, 第52回フラーレン・ナノチューブ・グラフェン総合シンポジウム, 2017
- (9) S. Nakamura, K. Kondo, T. Mieno, “Measurement of CN rotational temperature and blackbody temperature for a hot gas plume generated by gas-gun experiment”, 17th Workshop on Fine

Particle Plasmas / Japan-Korea Workshop on Dust Plasmas (国際学会), 2016

- (10) 三重野哲, 「ガス銃を用いた窒素ガス中飛翔体衝突によるアミノ酸合成(小惑星衝突模擬実験)」, プラズマ科学における分光計測の高度化と原子分子過程研究の新展開/原子分子データ応用フォーラムセミナー合同研究会(招待講演), 2016
- (11) 中村悟之、近藤和彦、三重野哲, 「ガス銃衝突実験で発生する高温プルームのCN分子回転温度と黒体放射温度の測定」, 日本物理学会2016年秋季大会, 2016
- (12) 関口俊介、三重野哲、長谷川直、阿部仁美、癸生川陽子、小林憲正, 「2段式軽ガス銃を用いた小惑星衝突模擬実験によるアミノ酸分子合成」, 日本物理学会2016年秋季大会, 2016
- (13) T. Mieno, H. Abe, K. Okochi, S. Hasegawa, H. Shibata, Y. Kebukawa, K. Kobayashi, “Analysis of amino acids synthesized in a gas plume by projectile-impact in nitrogen gas (Model experiment of asteroid's impacts)”, Japan Geoscience Union Meeting 2016, 2016
- (14) 三重野哲、大河内一輝、柴田裕実、長谷川直、阿部仁美、癸生川陽子、小林憲正, 「窒素ガス中高速飛翔体衝突により合成されるアミノ酸の分析(タイタン模擬実験)」, 平成27年度宇宙科学に関する室内実験シンポジウム, 2016
- (15) 中村悟之、近藤和彦、三重野哲, 「ガス銃衝突実験で発生する高温プルームの分子回転温度測定」, 第7回静岡大・核融合研連携研究フォーラム(招待講演), 2106
- (16) T. Mieno, K. Ookouchi, S. Hasegawa, K. Kurosawa, “Production of Carbon Nano-Particles and Amino Acids by Impact Reactions in Nitrogen Gas by Means of a Gas-Gun”, 8th Astrobiology Workshop, 2015
- (17) T. Mieno, K. Ookouchi, K. Kondo, S. Hasegawa,

K. Kurosawa , “Production of Carbon Nano-
Particles Including Amino Acids by Impact
Reactions in Nitrogen Gas by Use of a Gas-Gun”,
Inter-Academia 2015 (国際学会) ,2015

- (18) 大河内一輝、三重野哲, 「小惑星衝突による有機分子合成(ガス銃を用いたそのモデル実験)」、東北大学電気通信研究所共同プロジェクト研究会(招待講演), 2015

[図書] (計 0 件)
[産業財産権]

- 出願状況 (計 0 件)
○取得状況 (計 0 件)

[その他]

- 1) 報道関連：静岡新聞、H30.6.3 「小惑星衝突 謎に迫る」新聞記事
- 2) サイエンスカフェ講演、H30.5.31 「小惑星衝突による破壊と創造」静岡市 B-nest
- 3) ホームページ等
<https://wpp.shizuoka.ac.jp/plasma/>

6. 研究組織

(1) 研究代表者

三重野 哲 (MIENO, Tetsu)
静岡大学・創造科学技術大学院・教授
研究者番号：50173993

(2) 研究分担者

(3) 連携研究者

長谷川 直 (HASEGAWA, Sunao)
宇宙航空研究開発機構・宇宙科学研究所・
研究員
研究者番号：10399553

(4) 研究協力者

柴田 裕実 (SHIBATA, Hiromi)
大阪大学・産業科学研究所・特任研究員