

表面原子反応におけるアモルファス氷の触媒効果  
Evaluation of catalytic effect of amorphous ice on  
the surface atomic reactions

香内 晃 (Kouchi, Akira)

北海道大学・低温科学研究所・教授



研究の概要

アモルファス氷星間塵上での表面原子反応は、分子雲における分子進化の鍵となるプロセスである。これまでの研究により、始原的な有機分子（ホルムアルデヒド、メタノール）が水素原子トンネル表面反応で生成される際、アモルファス氷が触媒的な働きをすることが分かった。本研究はその触媒効果の詳細を実験的に明らかにする。

研究分野：数物系科学

科研費の分科・細目：地球惑星科学／岩石・鉱物・鉱床学

キーワード：地球惑星物質

1. 研究開始当初の背景・動機

分子雲に存在するアモルファス氷星間塵上における分子進化の研究は、太陽系の起源を研究する上でも極めて重要である。アモルファス氷星間塵は極低温であるため、熱的な化学反応は極めて起こりにくく、そこでの分子進化プロセスには不明な点が多い。私たちは分子進化プロセスとして極低温特有のトンネル反応に着目し以下のことを実験的に明らかにした。①始原的な有機分子であるホルムアルデヒド ( $\text{H}_2\text{CO}$ ) やメタノール ( $\text{CH}_3\text{OH}$ ) は極低温アモルファス氷表面における CO 分子と水素原子のトンネル反応により効率よく生成される。②アモルファス氷表面は上記生成反応に対し触媒的な働きを持つ。

2. 研究の目的

CO 分子-水素原子トンネル表面反応における反応速度定数を測定することにより、アモルファス  $\text{H}_2\text{O}$  氷の触媒効果を定量的に評価する。そのために、アモルファス  $\text{H}_2\text{O}$  氷表面への水素原子付着率および氷の表面構造による吸着過程や反応速度の違いを調べる。

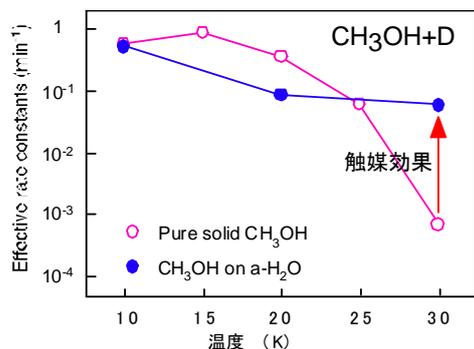
3. 研究の方法

アモルファス氷の触媒効果を評価するためには、様々な反応系における反応速度定数を正確に測定する必要がある。その際重要になるのが表面への原子の吸着係数である。平成17年度は吸着係数測定の実験に不可欠なパルス原子源を製作した。平成18年度には波長可変レーザーシステムを導入した。これは吸着係数の高精度な測定と、反応場ポテンシャルの情報を反映する生成分子のエネルギー測定に用いる。平成19年度までに、レーザーシステムを立ち上げ、吸着係数、生成分子の振動・回転励起状態などの測定が可能になった。この間平行して、アモルファス氷表面における水素原子-分子反応の実験を行った。

4. これまでの成果

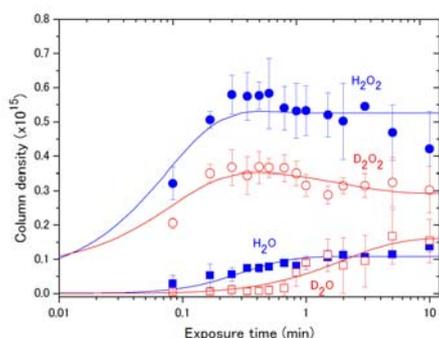
極低温下での  $\text{CH}_3\text{OH} + \text{D}$  反応を、純  $\text{CH}_3\text{OH}$  固体だけの場合とアモルファス氷表面に  $\text{CH}_3\text{OH}$  がある場合の2通りについて調べた。その結果、図に示すように、アモルファス氷表面では、D 原子の吸着係数が急激に減少する温度 20K を超えても実効反応速度が落ちていないことがわかった。これまで調べた反応系では、反応速度は

20K 付近で急激に減少していた。これは、これまでに例のない著しい触媒効果を表している。



CO+H 反応では、アモルファス氷表面での実効的な反応速度が、結晶氷表面に比べ、一桁程度大きくなることも明らかになった。

当初の研究計画にはなかったが、理論的モデルから水分子生成過程として重要性が指摘されている O<sub>2</sub>+H 反応による水分子生成実験を行った。その結果、水分子が短時間（分子雲の寿命の 10<sup>6</sup> 年と比べて短い 10<sup>4-5</sup> 年）で生成される事が明らかになった。また、生成された水分子は、アモルファス氷になることも確認され、実際の分子雲の観測とよく一致した。さらに、CH<sub>3</sub>OH と同様に、純粋な O<sub>2</sub> だけの時には反応は 23K までしか起きないが、アモルファス氷の上での反応では反応温度が 30K まで上昇することも分かった。



## 5. これまでの進捗状況と今後の計画

上述のように、CH<sub>3</sub>OH+DやO<sub>2</sub>+H反応系でもアモルファス氷の触媒効果が見つ

かった。当初計画ではCO+H反応系にのみ着目していたが、それ以外の系でも触媒効果があることが初めて明らかになった。以上のように、研究計画は概ね順調に進んでいる。

平成20年度以降は「各種表面への水素原子の吸着係数の測定」および「生成分子のエネルギー分析」を行う。これまでの私たちの研究で、氷星間塵中の主要分子(H<sub>2</sub>O、CO<sub>2</sub>、H<sub>2</sub>CO、CH<sub>3</sub>OH、HCOOH)の生成機構はほぼ解明され、残るは、NH<sub>3</sub>、CH<sub>4</sub>だけとなった。分子雲での分子進化の全容解明に相当近づいたと言える。

## 6. これまでの発表論文等

(研究代表者は太字, 研究分担者には下線)  
 Miyauchi, N., Hidaka, H., Chigai, T., Nagaoka, A., Watanabe, N. and **Kouchi, A.** (2008) Formation of hydrogen peroxide and water from the reaction of cold H atoms with solid O<sub>2</sub> at 10 K, Chem. Phys. Lett., 456, 36-40.  
Watanabe, N., Mouri, O., Nagaoka, A., Chigai, T. and **Kouchi, A.** (2007) Laboratory simulation of competition between hydrogenation and photolysis in the chemical evolution of H<sub>2</sub>O-CO ice mixture, Astrophys. J., 668, 1001-1011.  
渡部直樹, **香内晃**, 毛利織絵, 長岡明宏, 日高宏 (2007) アモルファス氷宇宙塵: 宇宙における化学進化の舞台, 真空, 50, 282-290.  
 Nagaoka, A., Watanabe, N., & **Kouchi, A.**, (2007) Effective rate constants for the surface reaction between solid methanol and deuterium atoms at 10 K, J. Phys. Chem. A 111, 3016-3028.

渡部直樹, 長岡明宏, 日高宏, **香内晃** (2006) 星間塵表面での低温水素原子反応による分子進化, 固体物理, 41, 59-68.

ホームページ等

<http://risu.lowtem.hokudai.ac.jp>