

# 論文審査の結果の要旨

氏名 今中 宏

本論文は4章からなり、第1章は、大気中の複雑な有機化学（単純な気体から有機物エアロゾルへ）、第2章は有機物エアロゾルの光学・化学特性、第3章は成層圏下層での凝縮雲の性質、第4章は表層での有機物生成反応について述べられている。

第1章においては、土星の衛星タイタンの高層大気における、原子数4以上の複雑な分子の形成についての実験的研究結果が示された。窒素とメタンの1:4の混合ガスにコールドプラズマを照射した結果、低圧では芳香族や窒素を含むヘテロ環など、多重結合を持った不飽和な化合物が、一方高圧では飽和化合物が形成されることを示した。低圧ほど多量のエアロゾルが形成されることから、エアロゾルの形成には、低圧における不飽和化合物の形成が重要であることが初めて示された。原子数4以上の複雑な気相分子の同定、それらの形成に関する圧力依存性、エアロゾル形成量など、すべて、本研究のために装置を作成し、初めて測定されたものである。

第2章は、タイタン大気における複雑な有機化学反応によって生成した有機物エアロゾルの光学特性について述べられている。それらはタイタン大気の温度構造を支配しているが、過去の模擬実験によって生成した有機物エアロゾル（“ソリン”）の光学定数の虚部  $k$  には、10倍程度の不確定性が残っており、それらの化学的性質はほとんど理解されていなかった。本研究では、タイタン大気中の反応の模擬実験から生成したソリンの化学的・光学的性質と、その圧力依存性を系統的に調べた。その結果、ソリンの光学定数  $k$  は圧力によって変化することが初めて明らかにされ、過去の研究における  $k$  の違いが説明された。観測されるタイタンの幾何アルベドや温度構造は、低圧で生成されたソリンの光学的性質により良く説明できる。このことは、低圧で生成されたソリンが、タイタン大気中の有機物をよく模擬しており、タイタン大気中のエアロゾルには、窒素を含んだ多環芳香族化合物が含まれていることを示唆する。

第3章では、コールドプラズマによって生成される気相生成物を様々な温度で凝縮し、その凝縮物を赤外分光法によって測定した。その結果、150 K でシアン化アンモニウムを初めて同定した。この結果から、タイタン大気高度 100 km 付近に  $\text{NH}_4\text{CN}$  の凝縮雲が存在することが示唆された。さらに低温では、HCN や  $\text{C}_2\text{H}_2$ ,  $\text{HC}_3\text{N}$  などの氷が確認された。室内実験では、気相中にアンモニアが検出される。しかしアンモニアは、これまでタイタン大気中では検出されていない。このことは、タイタン大気中では、複雑な有機化学反応によって生成されるアンモニアが、HCN と反応して蒸気圧の2桁小さい  $\text{NH}_4\text{CN}$  として存在している可能性を示唆した。

第4章では、大気中の気相生成物が地表に沈殿してできる有機物に富んだ表層の氷が、衝突現象や火成活動によって暖められた場合に進行する有機化学反応を模擬して、氷混合物をゆっくり暖める実験を行った。この結果、白い氷が温度 200 から 250 K 付近で黒色の有機物固体に変化することが観察された。この黒色有機物の GCMS 分析から、アデニンやピリミジン塩基などの形成に重要な中間体である HCN の4量体などが検出された。以上の結果は、カッシーニ・ホイヘンス探査によって、タイタン表層に黒色のクレーター・火口が発見される可能性を示唆した。

これらの一連の実験をもとに、有機化学反応を水素の挙動に着目して、タイタン大気における元素の挙動を統一的に理解することが可能となった。すなわち、メタンの分解によって生じた余剰な活性水素 H は、炭素と結合せずに、気相生成物では  $\text{NH}_3$  に凝縮して  $\text{NH}_4\text{CN}$  となり、有機物ソリンではアミン基 ( $\text{NH}$ ,  $\text{NH}_2$ ) に含まれることになる。タイタンで観測される不飽和な気相生成物や有機物ソリンの光学的性質はこれに由来する。したがって、活性な水素原子が、タイタン大気上層から散逸するだけでなく、窒素と結合することにより、有機物エアロゾル・凝縮物としてタイタン大気から表層へ運ばれるという新たな物質循環が示された。

なお、本論文第2章は、B. N. Khare, J. E. Elsila, E. L. O. Bakes, C. P. McKay, D. P. Cruickshank, S. Sugita, T. Matsui との共同研究であるが、論文提出者が主著者であり、主体となって実験・解析・検証をおこなったものであり、論文提出者の寄与が十分であると判断する。

したがって、博士（理学）の学位を授与できると認める。