

# 論文審査の結果の要旨

氏名 大野 宗祐

本論文は、地球や惑星の起源と進化にとって最も重要な素過程である、天体衝突に伴って発生する衝突蒸気雲の物理と化学について研究したものである。衝突蒸気雲の最終生成物は惑星表層環境の起源と進化に大きな影響を与えたと考えられているが、その推定手法は未だ確立されていない。実際の天体衝突と模擬実験ではスケールに大きな差がある。そのため、実際の天体衝突による蒸気雲では反応のクエンチ点が低温であるのに対し、実験室レベルの蒸気雲では高温になる。この差を埋めるサイズに対するスケール則の確立には蒸気雲内の反応速度が必要である。ところが、衝突蒸気雲のクエンチ温度として想定される数百 K~2000K では、低温（常温付近）や高温（数千 K）と比べて実験が困難なため反応速度の実験データが乏しい。そこで本研究では、蒸気雲内の反応速度を実験的に推定するための新たな手法を提案するとともに、実際の測定に必要な実験システムを構築し、手法の適用例として硫酸カルシウム組成の蒸気雲内の硫黄酸化物の反応速度を推定した。これは、世界で初めての試みであり新しい学問分野の開拓にもつながり、博士論文として評価できる。

本論文は5章からなる。

第一章はイントロダクションであり、衝突蒸気雲内の化学反応とその測定手法を確立することの重要性について紹介している。

第二章では新たな反応速度測定法の原理と枠組みの提案を行っている。一般に、発生直後の衝突蒸気雲内は非常に高温・高圧であり、反応速度は速く、化学平衡が達成されている。ところが、低温・低圧になるにつれて反応が遅くなり、ある点で化学平衡組成の変化についていけなくなる。この現象をクエンチという。クエンチ条件では反応速度と化学平衡組成の変化速度が等しいとみなせる。本研究では、この性質を利用してクエンチ条件における反応速度を推定する。

まず、はじめにレーザー照射により生成させた蒸気雲の温度・圧力条件を発光分光測定により推定する。その結果を初期条件として化学平衡計算を行うことにより、断熱膨張する蒸気雲の温度・圧力・化学平衡組成を推定する。これとクエンチ後の最終化学組成からクエンチ温度・圧力を推定する。クエンチ後の組成は QMS（四重極質量分析器）で測定する。ここまででクエンチ温度における化学平衡組成の温度依存性を求める。さらに蒸気雲の冷却速度を計算すれば化学平衡組成の時間変化率が求まり、これがクエンチ条件にお

いては反応速度と等しいとみなせる。この手法は、論文提出者のアイデアによるもので高く評価できる。

第三章では二章で提案された測定法に基づき、反応速度の実際の測定と解析を行っている。試料を真空チェンバー内に入れ、レーザーを照射して蒸気雲を生成させる。生成した蒸気雲の発光スペクトルを分光器で測定する。多数観測できた輝線のほとんどがCa原子の発光輝線である。これらの輝線の強度と蒸気雲の温度との間の関係式を利用して蒸気雲の温度を推定する。今回は、 $6500 \pm 600$  Kという値を得ている。一方、蒸気雲内の圧力はCa<sup>+</sup>の393.4nmの輝線のシュタルク広がりを利用し測定している。観測された輝線の半値幅から圧力は約30000気圧という値を得ている。

また、蒸気雲の最終的な化学組成はQMSを用いて測定している。ビーム径（蒸気雲サイズに対応する）の増大とともに低温で安定なSO<sub>3</sub>が多く生成することを確認している。これは蒸気雲内の硫黄酸化物の酸化還元反応のクエンチ温度の低下に対応している。

以上の実験データ（初期温度圧力と最終化学組成）からそれぞれの実験条件におけるクエンチ条件での反応速度が求まる。求まった反応速度は低温になるほど大きくなる。また、既存の気相反応速度のデータと比較して非常に大きい。まだ誤差が大きいなどの問題があるが、衝突蒸気雲の温度圧力条件を求める試みはこれが世界で初めてであり評価できる。

第四章では、本研究の手法の適用に関する議論をしている。発光分光とQMSによるガス分析を組み合わせる本研究の手法は、惑星科学上の多くの問題に必要な蒸気雲組成における反応速度推定に適用できる。具体的には、硫黄酸化物の酸化還元反応の反応速度のK/T事件における重要性について議論している。測定された反応速度は非常に大きく、K/Tサイズの衝突蒸気雲内の硫黄酸化物は三酸化硫黄が支配的であることを示唆する。

第五章では結論を述べている。本研究では衝突蒸気雲内の反応速度を実験的に推定する手法を新たに提案したこと、また、その手法に必要な実験システムを構築し、硫黄酸化物に適用して蒸気雲内での反応速度を測定したことを述べている。

なお、本論文第三章は、杉田精司、門野敏彦、長谷川直、五十嵐丈二との共同研究であるが、論文提出者が主体となって企画、実験、解析を行ったもので、論文提出者の寄与が十分であると判断する。

以上から、博士（理学）の学位を授与できると認める。