

# 論文審査の結果の要旨

氏名 関根康人

本論文は、イントロダクションに続き4つのパートと総合結論の章からなる。この4つのパートは、それぞれ相互に関連した別々の実験及び数値計算の結果を記載している。まず、パート1では、実験に用いる最適なタイタンの有機物エアロゾルの模擬物質（ソリン）の種類を決定した。ソリンをコールドプラズマと長波長の紫外線照射という2種類の異なるエネルギー源を用いて生成し、それぞれ熱分解によって発生したガスを GCMS により分析している。これらの実験結果と、ホイヘンス探査機によるタイタンエアロゾルの熱分解 GCMS の観測結果とを比較した結果、コールドプラズマによって生成されたソリン（タイタンソリン）が観測結果と調和的であるとの結果を得ている。コールドプラズマによる反応は、タイタンの上層大気（高度 500 km 以上）での荷電粒子などによる化学反応を模擬しており、これらの実験結果は、タイタンのエアロゾルは、上層大気で生成され、荷電粒子や短波長紫外線が主たる生成のエネルギー源であることを示唆する。

パート2では、大気上層で生成したソリンの表面における水素原子の不均一反応機構についての実験を行っている。有機物エアロゾルは、大気中を沈降し中層大気で濃密なエアロゾル層を形成する。過去の理論的研究によると、大気中を沈降するソリンのエアロゾルは、光化学反応によって生成した活性な水素原子と反応し、水素分子を生成するという可能性が提案されている。しかしながらこれまで、このエアロゾル表面での水素原子との不均一反応が実験的に調べられた例はない。本研究では、タイタンソリンに重水素原子を照射する実験を行い、生成するガス種を分析し、照射中のタイタンソリンの赤外スペクトルと化学組成の変化を測定した。その結果、水素原子とエアロゾルとの素反応は、(1) エアロゾル内の水素のはぎ取りによる水素分子の生成 ( $H_2$  生成) (2) 水素原子のエアロゾル内への取り込み (水素化) (3) エアロゾル内の炭素や窒素のはぎ取り (エッチング) の3つのプロセスからなっていることが分かった。

パート3では、これら素反応の反応率の温度依存性を定量的に測定する実験を行っている。実験の結果、室温 (300 K) からタイタン中層大気温度 (160 K) の範囲において調べた結果、水素化反応は  $P_{hydro} = 2.08 \times \exp(-1000/T)$  で進行し、 $H_2$  生成反応は  $P_{abst} = 0.0019 \times \exp(-300/T)$  で進行することがわかった。また、エッチングは、タイタン大気の温度条件では、ほとんど進行しないことがわかった。

パート4では、エアロゾル表面での不均一反応が大気全体の物質循環や大気組成に与える影響を調べるため、実験によって求められた反応率をタイタン大気の鉛直1次元光化学モデル計算を行った。その結果、有機物エアロゾル層が存在する中層大気では、水素原子の大部分 (約 60 - 70%) がこの不均一反応によって消費されることがわかった。また、不均一反応によって、効率的に水素原子が大気中から除去されることにより、大

気中の不飽和炭化水素の濃度が1桁以上上昇し、反対に飽和炭化水素の濃度が低下することがわかった。このことは、有機物エアロゾルの存在が、現在の複雑な有機化合物が安定に存在できるタイタンの大気組成を維持するための鍵となっていることを示唆する。太陽の進化モデルによると、過去の太陽の紫外線フラックスは現在よりも数倍程度大きかったと考えられる。本研究の結果は、この強い紫外線により有機物エアロゾルの生成が活発におきた場合、エアロゾル表面での活発な不均一反応により、大気中ではより不飽和化合物の存在量が多くなることを示唆する。不飽和化合物濃度の上昇により、さらなるエアロゾル生成が引き起こされ、その遮蔽効果で表面温度は低下すると考えられる。この不均一反応によるフィードバック効果を考えると、タイタン大気は、これまでの放射モデルが予想するよりも低温状態（凍結状態）が長期間続いたことが示唆される。この結果は、タイタン表面に、45億年の間、現在の大気化学反応が継続していた場合に予想される数100 m 数 kmの反応生成物の堆積が発見されなかったという探査結果と調和的かもしれない。

なお、本論文のPart 1は、今中宏、杉田精司、B. N. Khare, C.P. McKay, 松井孝典（敬称略）との共同研究であり、Part 2と3は、上記共同研究者およびE. L. O. Bakesとの共同研究であり、Part 4はさらにS. Lebonnoisを加えた形での共同研究である。しかし、いずれの研究も、論文提出者が主体となって発案、実験、計算を行ったもので、論文提出者の寄与が十分であると判断する。

したがって、博士（理学）の学位を授与できると認める。