

Cover Page



Universiteit Leiden



The handle <http://hdl.handle.net/1887/21863> holds various files of this Leiden University dissertation.

Author: Fayolle, Edith Carine

Title: From ice to gas : constraining the desorption processes of interstellar ices

Issue Date: 2013-10-01

Nederlandse samenvatting

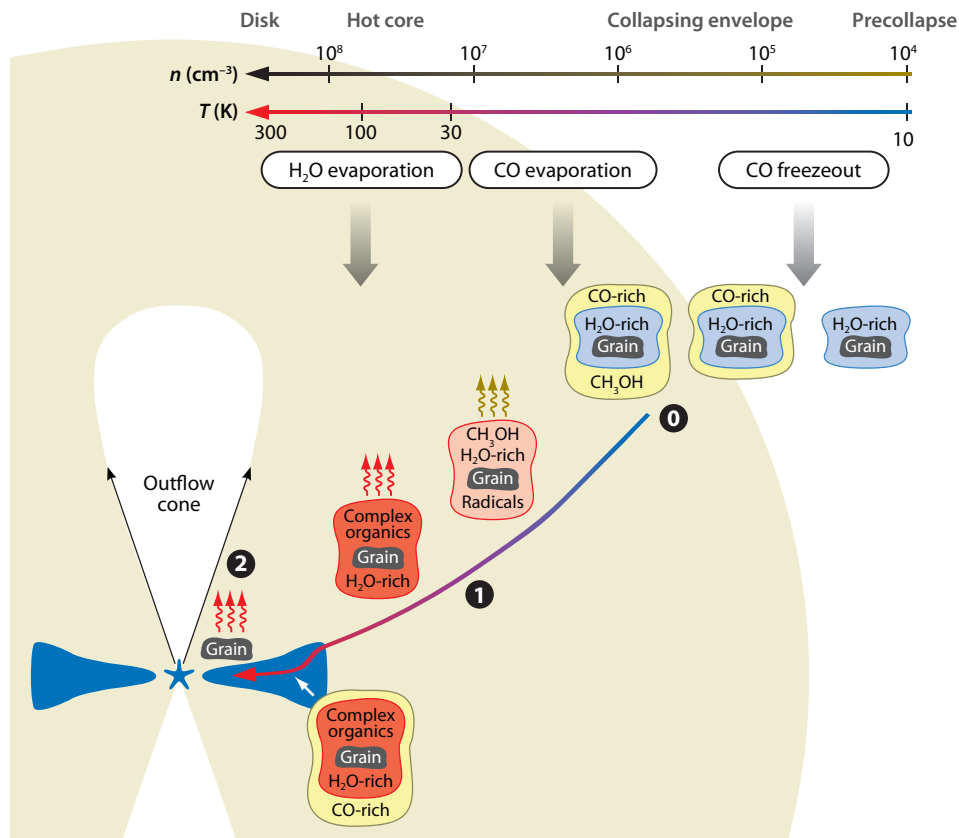
Van ijs tot gas Het onderzoek naar desorptieprocessen van interstellair ijs

Ijs in stervormingsgebieden

Moleculen zijn overal in het heelal aanwezig. In het inter- en circumstellaire medium - de ijle ruimte tussen en rondom de sterren - is een grote diversiteit van moleculen waargenomen, variërend van diatomen tot organische moleculen, grote polycyclische aromatische koolwaterstoffen (PAKs), ionen en radicalen. Door de processen die verantwoordelijk zijn voor hun vorming en afbraak te bestuderen kunnen we meer te weten komen over de fysische omgeving waarin ze worden gevonden. Dit vormt een van de hoofddoelen van de astrochemie, de wetenschap die zich bezig houdt met chemische processen in de ruimte.

Stervormingsgebieden bestaan gewoonlijk uit moleculair gas en stofdeeltjes van submicrometergrootte. In koude omgevingen zoals prestellare kernen, de buitenste delen van een protostellare wolk en het middenvlak van een protoplanetaire schijf kunnen moleculen vormen of vastvriezen op stofdeeltjes en zo een ijsmantel vormen. De ijssamenstelling in verscheidene stervormingsgebieden kan worden vastgesteld m.b.v. mid-infrarood spectroscopie, en deze toont aan dat ijs in de ruimte vooral uit H₂O bestaat, gevolgd door CO and CO₂, evenals NH₃, CH₄, OCN⁻ en CH₃OH. Grotere organische moleculen moeten nog steeds geïdentificeerd worden. Waardevolle informatie over de mogelijke vorming van deze moleculen kan verkregen worden door de veranderingen in de abundantie en de ijscompositie gedurende de verschillende fases van stervorming. Het zwaartepunt van dit proefschrift ligt op de fysische in chemische processen die plaatsvinden in interstellair ijs, en die middels laboratorium experimenten worden gekarakteriseerd.

Figuur 8.1 toont schematisch dat ons huidige begrip van de ijsvorming en -evolutie tijdens het stervormingsproces. Eenvoudige soorten ijs vormen in donkere wolken in



Figuur 8.1: Schematische voorstelling van de ijsevolutie in opeenvolgend een prestellaire kern, een instortende gas wolk en een protoplanetaire schijf. In de prestellaire fase zien we de vorming van de eerste door H₂O gedomineerde ijsmantel, gevolgd door het vastvriezen van gasvormige moleculen tijdens de ineenstorting van de wolk, waardoor een CO-rijke mantel ontstaat. In de protostellaire fase, bewegen de ijzige stofdeeltjes richting de ster. De ijslagen ondergaan dan hydrogenatiereacties als ook hitte en UV straling. Het grootste deel van de ijsmantel verdampt wanneer de stofdeeltjes gebieden van 100 K bereiken. Daarnaast zullen sommige stofdeeltjes richting het middenvlak van protoplanetaire schijf bewegen waar planeten en kometen ontstaan. Deze illustratie is gemaakt door E. van Dishoeck en R. Visser.

de prestellaire fase door het vastvriezen van atomen en kleine moleculen op de stofdeeltjes. CO₂ wordt gevormd in deze fase, naast de hydrogenatie van O, C, en N waaruit H₂O, CH₄, en NH₃ ontstaan. Wanneer de kern onder zijn eigen zwaartekracht instort en de protoster ontstaat, gaat de temperatuur omlaag en zullen de moleculen die nog in de gasfase zaten (voornamelijk CO) vastvriezen bovenop de eerste waterrijke laag en zo een apolaire ijsmantel vormen. Gedurende de protostellaire fase voedt de pasgeboren ster zich met materiaal uit omringende schijf van gas en stof, wat resulteert in de opwarming van de met ijs bedekte stofdeeltjes. In deze fase worden complexere moleculen gevormd door thermisch gedreven reacties en door de toename in mobiliteit van radicalen die zijn gevormd tijdens energetische reacties. De relatie

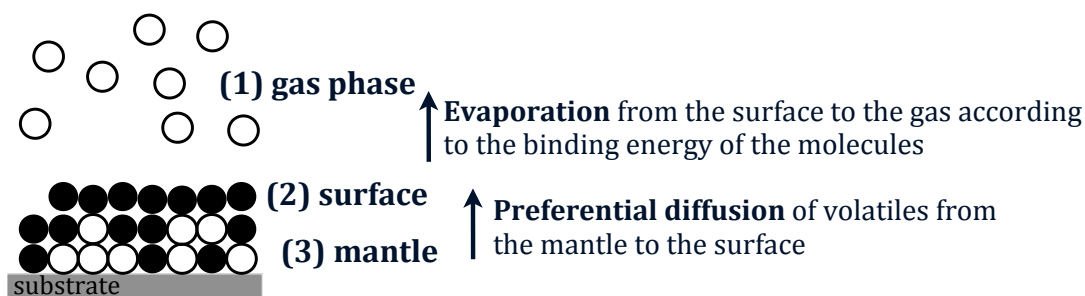
tussen ijssamenstelling en waarnemingen van complexe organische moleculen rond massieve sterren is het onderwerp van hoofdstuk 7. Het ijs op de stofdeeltjes verdampt dichter bij de ster. Bij temperaturen van 100 K zijn de meeste moleculen terug in de gasfase en nemen deel aan gasfase reacties. Daarnaast bewegen sommige ijzige stofdeeltjes richting de protoplanetaire schijf, en mogelijk staan de moleculen die al in eerdere stadia gevormd zijn aan het begin van de route naar moleculaire complexiteit zoals die wordt waargenomen in planetaire systemen. In gebieden zonder thermische desorptie kunnen ook energetische deeltjes en met name UV-fotonen zorgen voor verdamping van ijs. Dit is het geval in prestellaire wolken, in de buitenste delen van protostellaire wolken en in het middenvlak van protoplanetaire schijven.

De studie van thermische en niet-thermische desorptieprocessen is cruciaal voor het begrijpen van gas-stof interacties in stervormingsgebieden. Moleculen in de gasfase worden veelal gebruikt door radioastronomen als indicatoren van fysische omstandigheden. Daarom is het belangrijk om te begrijpen bij welke druk, temperatuur, stralingsveld, enzovoorts, de moleculen van de vaste naar de gasfase overgaan. Vanuit chemisch oogpunt is een goede inschatting van de ijs tot gas verhouding cruciaal doordat chemische reacties drastisch verschillen in beide fases; van sommige reactieproducten wordt meer gevormd in de ene fase in vergelijking tot de andere. Het hoofddoel van dit proefschrift is het experimenteel vaststellen van de thermische en foton-gëinduceerde desorptie processen voor omstandigheden die relevant zijn voor het interstellair medium.

Thermische desorptie van ijs

Thermische desorptie van ijs is een belangrijk proces in de protostellaire fase wanneer de jonge ster groeit door de ineenstorting van haar wolk. De ijzige stofdeeltjes van de wolk warmen op terwijl ze richting ster bewegen en moleculen gaan van de vaste naar de gasfase afhankelijk van hun bindingsenergie aan het ijsoppervlak. Experimenten in het laboratorium die de sublimatie van de ijsmantel simuleren laten zien hoe de desorptie van de interstellair ijs analogen plaatsvindt. Hoofdstuk 2 focust op de vraag hoe H_2O , de hoofdcomponent van interstellair ijs, de thermische desorptie van meer vluchtige moleculen beïnvloedt. $\text{H}_2\text{O}:\text{CO}_2$ ijsmengsels van verschillende diktes en mengverhoudingen worden gegroeid op een koud substraat, dat het stof oppervlak nabootst. Dit wordt gedaan onder ultrahoog vacuum om de dichtheidsomstandigheden in stervormingsgebieden zo goed mogelijk te simuleren. Het gevormde ijs wordt vervolgens in een specifiek tempo opgewarmd en de gedesorbeerde moleculen worden gemeten met een quadrupool massa spectrometer als functie van de temperatuur. Puur CO_2 ijs desorbeert rond 70 K, maar wanneer het gemengd is met H_2O verdampt maar een fractie bij 70 K. De rest desorbeert rond 140 K samen met de watermoleculen. Dit 'vasthoudt' fenomeen wordt beschreven in hoofdstuk 2 m.b.v. een uitgebreid 3-fase model van een ijsanaloog (zie Figuur 8.2).

De laboratorium experimenten worden gebruikt om de migratie van vluchtige moleculen van de ijsmantel naar het oppervlak te begrijpen, omdat dit geen statistisch proces is maar samenhangt met de soort-afhankelijke diffusie in de watermatrix. Met dit model kan de hoeveelheid vluchtige moleculen die vast blijft zitten in het waterijs worden voorspeld voor verschillende ijsdiktes, mengverhoudingen en opwarmings-



Figuur 8.2: Principe van het 3-fase desorptiemodel voor vluchtige moleculen (rode cirkels) in waterrijk ijs (groene cirkels). Desorptie van moleculen naar de gasfase gebeurt aan het oppervlak als functie van de bindingsenergie van de moleculen. Moleculen dieper uit de mantel vullen het oppervlak weer aan na elk desorptie evenement. De aanvulling hangt af van het vermogen van de moleculen om te diffunderen van de bulk naar het oppervlak en is dus gunstiger voor vluchtige soorten omdat deze minder sterk gebonden zijn aan hun omgeving.

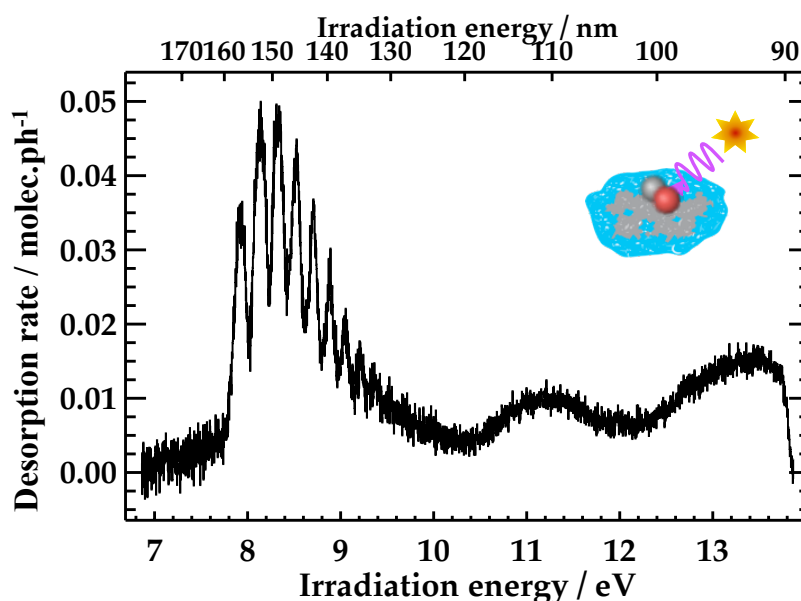
snelheden die specifiek zijn voor protosterren. Door dit model te combineren met huidige gas-stof simulaties kan de overgang van ijs naar gas beter worden benaderd en daarmee ook de chemie beter worden beschreven.

Foton-geïnduceerde desorptie

In koude inter- en circumstellaire omgevingen waar men verwacht dat moleculen volledig uitgevoren zijn, kunnen sommige moleculen nog steeds in de gasfase worden waargenomen a.g.v niet-thermische desorptie processen. Bijvoorbeeld niet-thermische desorptie geïnduceerd door UV fotonen biedt een mogelijke verklaring voor moleculaire abundanties in protoplanetaire schijven. Er zijn laboratorium experimenten gedaan om zowel de efficiëntie als de betrokken mechanismes van fotodesorptie te meten. De meeste fotodesorptie studies gebruiken een H_2 microgolven-ontladingslamp om desorptie te veroorzaken, omdat deze voornamelijk Lyman-alpha straling produceert. De emissieprofielen van deze lampen zijn echter erg gevoelig voor de omstandigheden en de fotodesorptie efficiëntie hangt sterk af van het lamp-specifieke emissieprofiel.

Een nieuwe aanpak, gebruikt in hoofdstuk 3 t/m 6, is daarentegen gebaseerd op afstembare Vacuum-UV straling om de fotodesorptie van interstellaire ijsanalogen te bestuderen. De DESIRS lichtbron bij de SOLEIL synchrotron (Saint-Aubin, Frankrijk) zendt fotonen uit in het astronomisch interessante 7-14 eV spectrale venster, met hoge intensiteit en goede spectrale resolutie. Op deze manier is het mogelijk om de golflengte afhankelijke fotodesorptie te meten. Zulke studies resulteren in kwantitatieve fotodesorptie snelheden voor verschillende energieën, wat bijdraagt aan een betere benadering van fotodesorptie in gebieden in het heelal met verschillende UV stralingsprofielen. Het belangrijkste is echter dat een spectraal opgeloste analyse van fotodesorptie waardevolle inzichten geeft in de onderliggende moleculaire mechanismes, wat boeiend is vanuit een fysisch-chemisch standpunt en bovendien helpt om dit pro-

ces te beschrijven met astrochemische simulaties die gas-stof interacties meenemen.



Figuur 8.3: CO fotodesorptie spectrum voor een 10 ML ijs dik bij 18 K. De vibrationale progressie onder 10 eV komt overeen met de excitatie van de niet-dissociatieve $A^1\Pi$ toestand van CO.

Als eerste is de fotodesorptie van CO-ijs onderzocht, omdat CO een veel bestudeerd molecuul is en CO-rijk ijs aan het oppervlak van interstellaire stofdeeltjes wordt gevonden (zie Figuur 8.1). CO-ijs wordt in ultrahoog vacuum bij 18 K gegroeid en vervolgens bestraald met fotonen met energieën tussen 7 en 14 eV. De gedesorbeerde moleculen worden gemeten met massa spectrometrie als functie van foton energie en dit resulteert in het spectrum in Figuur 8.3. De duidelijke golflengte afhankelijkheid van de fotodesorptie komt door de elektronische structuur van het CO-ijs; dit is Desorptie geïnduceerd door Elektronische Transitie (DIET) (hoofdstuk 2). Door het gebruik van isotopologisch-gelabelde lagen van $^{12}\text{CO}/^{13}\text{CO}$ en een klein verschil in frequentie van de vibratie niveaus van de geëxciteerde toestanden tussen deze twee isotopologen, is het mogelijk om dieper dan ooit op het fotodesorptiemechanisme in te gaan. Het is de energetische excitatie van moleculen in het suboppervlak die op hun beurt energie overdragen aan de moleculen aan het oppervlak, waarmee de desorptie uiteindelijk wordt geïnduceerd (hoofdstuk 3). N_2 fotodesorptie door de niet-dissociatieve elektronische excitatie naar de $A^1\Pi_u$ toestand (boven 12.4 eV) vindt op dezelfde manier plaats als voor CO onder 10 eV. In het geval van O_2 , induceert de VUV straling dissociatie, waardoor zuurstof radicalen ontstaan. Deze radicalen kunnen er voor zorgen dat andere moleculen van de vaste naar gas fase kunnen overgaan, de radicalen zelf kunnen recombineren of chemie induceren die de fotodesorptie kanalen beïnvloedt (hoofdstuk 5). Tenslotte is de energieoverdracht in het niet-dissociatieve fotodesorptiemechanisme onderzocht voor twee verschillende moleculen: CO en N_2 . Het begrijpen van fotodesorptie in ijsmengsels is cruciaal omdat interstellair ijs altijd gemengd is. Hoewel de absorptiespectra van deze moleculen in de vaste fase compleet verschillen,

zijn hun fotodesorptiespectra hetzelfde in een 1:1 mengsel. Wanneer een van de soorten elektronisch geëxciteerd is door een energetisch foton zal het zijn energie naar het oppervlak overdragen ongeacht de aard van het molecuul en zo resulteren in gelijke fotodesorptie profielen. Dit heeft belangrijke astrofysische consequenties aangezien de fotodesorptiesnelheid niet alleen afhangt van de aard van het soort molecuul maar ook van zijn omgeving. Het exacte karakter van de energieoverdracht blijft nog steeds een open vraag die hopelijk in de komende jaren wordt opgelost door het gebruik van laser spectroscopie van desorberende moleculen en de meting van ijsfluorescentie tijdens bestraling. Verder moeten de fotodesorptie mechanismes van organische moleculen nog verder worden onderzocht. Dit is ongetwijfeld het onderwerp van toekomstig onderzoek.