Nederlandse samenvatting

Interstellair ijs

Waneer je in alle vroegte op een winterse dag naar buiten kijkt, zie je soms de meest prachtige ijsbloemen op de ruit. Deze worden gevormd doordat water uit de lucht condenseert op het koude glasoppervlak. Op een zelfde manier onstaan sneeuwvlokken hoog in de atmosfeer wanneer opstijgende lucht afkoelt zodat water condenseert rond kleine stofdeeltjes.

Ruimte-ijs, of wel interstellair ijs, ontstaat op soortgelijke wijze. Een verschil is echter dat de temperatuur in de ruimte veelal lager is dan op aarde waardoor dit ijs, naast water (H_2O), vaak ook aanzienlijke hoeveelheden moleculen zoals koolstofmonoxide (CO), koolstofdioxide (CO_2) en methanol (CH_3OH), en kleine beetjes stikstof (N_2) en ammonia (NH_3) bevat. De aan- of afwezigheid van deze ijsmoleculen hangt in grote mate af van de specifieke condities van de omgeving (temperatuur, druk en stralingsvelden). Andersom geldt dat de moleculen in een bepaald gebied in de ruimte invloed hebben op de verdere ontwikkeling van dit gebied. Je kunt dus stellen dat de chemische compositie van interstellair ijs waardevolle informatie kan verschaffen over de geschiedenis en de nabije toekomst van deze gebieden. Eén manier om deze informatie te extraheren is door dit ijs na te bootsen in laboratoria, en te kijken naar de fysische en chemische processen die kunnen plaatsvinden wanneer deze ijsanalogen worden blootgesteld aan gesimuleerde interstellaire omstandigheden zoals geleidelijke opwarming en ultraviolette (UV) straling.

In dit proefschift wordt specifiek gekeken naar de interacties tussen moleculen in interstellaire ijsanalogen in het laboratorium als functie van temperatuur en van UV-straling. Tevens bevat het de beschrijving van een nieuwe experimentele ultra hoog vacuüm (UHV) proefopstelling ($\sim 10^{-10}$ mbar, ofwel $\sim 10^{7}$ moleculen cm^{-3} bij 50 K), "The Cryogenic Photoproduct Analysis Device" (CRYOPAD), die als onderdeel van deze promotie is ont-wikkeld. CRYOPAD levert een betere simulatie van de interstellaire ijsomgeving, en maakt het mogelijk om de chemische en fysische interacties tussen ijsmoleculen zowel kwalitatief als kwantitatief te bestuderen. De combinatie van de twee analysetechnieken, Reflectie-absorptie infrarood spectroscopie (RAIRS) en quadrupool massa spectrometrie (QMS), waarover CRYOPAD beschikking heeft, maken dit instrument gevoelig voor kleine (fysische en chemische) veranderingen in het ijs en in de moleculaire compositie van de gasfase. Hiermee draagt CRYOPAD bij aan een verbetering van de bestaande experimentele methoden en aan een meer nauwkeurige analyse van interstellaire ijsanalogen.

Waarom interstellair ijsonderzoek?

Overal in het interstellaire medium (ISM), de ruimte tussen de sterren, treft men moleculen aan. Deze variëren in complexiteit van twee-atomige moleculen zoals waterstof (H_2), en bekende moleculen zoals H_2O, CO, CO_2, NH_3, "lachgas" (N_2O), alcohol (CH_3CH_2OH) en polycyclische aromatische koolwaterstoffen (PAHs), tot exotische koolstofketens ("cyano-polyyenen") zoals $HC_{11}N$. Telescopen nemen deze moleculen waar aan de hand van hun licht-emissie of absorptie karakteristieken. Emissiespectroscopie wordt voornamelijk gebruikt voor de waarnemingen van gasfasemoleculen, en berust op het detecteren van het lichtspectrum dat wordt uitgezonden wanneer energetisch aangeslagen moleculen ontspannen in een lagere energietoestand. Bij het waarnemen van moleculen in de vaste (ijs)fase wordt gekeken naar het specifieke lichtabsorptiespectrum tegen de achtergrondstraling van een verderweg gelegen jonge ster. Het absorptiespectrum van ijsmoleculen ligt typisch in het infrarood (IR) golflengtegebied van het electromagnetische spectrum ($\lambda = 2$–$20\,\mu$m).

Tot op heden wordt interstellair ijs gevonden in zogenaamde interstellaire wolken, op satellieten in ons zonnestelsel, in ("stof") schijven rond jonge sterren, en in kometen. Echter, de grootste variëteit aan moleculen wordt (in de gasfase) aangetroffen in zogenaamde 'hot cores'. Deze gebieden worden geassocieerd met de vorming van veelal hoge massa sterren (meer dan $10\times$ zwaarder dan de zon) en maken onderdeel uit van de dichte interstellaire wolken. Het idee is daarom dat een groot deel van deze hot core moleculen gevormd wordt uit het ijs dat oorspronkelijk in deze wolken aanwezig was. De ontwikkeling van een hot core gaat gepaard met hoge temperaturen (100–200 K) en intense stralingsvelden (waaronder UV-straling). Naar alle waarschijnlijkheid vormen deze factoren de bron van een weelde aan chemische reacties tussen de ijsmoleculen, welke kunnen leiden tot de productie van complexere moleculen zowel in de vaste- als in de gasfase wanneer het ijs verdampt. Dit maakt de studie van interstellaire ijsanalogen een essentieel onderdeel in de zoektocht naar de opheldering van de chemische (en fysische) evolutie van het ISM.

Dit proefschrift

Het grootste gedeelte van dit proefschrift bestaat uit een laboratoriumstudie waarbij twee verschillende experimentele opstellingen zijn gebruikt. Het onderzoek beschreven in de hoofdstukken 2, 3, en 6 is uitgevoerd in een proefopstelling onder hoog vacuüm condities ($\sim 10^{-7}$ mbar) met behulp van de transmissie IR-spectroscopie analysetechniek. Hoofdstukken 4 en 5 beschrijven de eerste twee onderzoeken in de nieuw ontwikkelde UHV proefopstelling CRYOPAD. De hoofdstukken zijn geördend naar oplopende complexiteit van de geïnduceerde processen, beginnend met een studie naar het thermische effect op de interacties tussen CO en CO_2, en eindigend met de quantitatieve analyse van fotochemische processen zoals de productie van OCN^-. Hoofdstuk 7 presenteert de analyse van een grote verzameling van waarnemingen van een interstellaire absorptieband rond een golflengte van $4.62\,\mu$m die (gedeeltelijk) kan worden toegeschreven aan het OCN^- ion dat is bestudeerd in Hoofdstuk 6.

In **Hoofdstuk 2** wordt gekeken naar de spectrale karateristieken van de fysische interacties tussen CO en CO_2 in de vaste fase als functie van de temperatuur. Deze twee moleculen worden na H_2O het meest gevonden in interstellair ijs. Onder interstellaire condities wordt CO_2 naar alle waarschijnlijkheid gevormd uit CO-ijs. Dit kan gebeuren door middel van oppervlaktereacties of door reacties die geïnduceerd worden door straling (bijvoorbeeld UV) wanneer CO zich in een H_2O-rijke ijsomgeving bevindt. CO zelf wordt hoofdzakelijk gevormd in de gasfase, maar wordt tevens geregenereerd uit CO_2 door dezelfde stralingsprocessen die CO_2 opleveren. Het is dus waarschijnlijk dat CO en CO_2 ijs in elkaars nabijheid worden aangetroffen, wat zou moeten blijken uit hun interstellaire IR-spectrum. De vormingsscenario's voor CO_2 suggereren twee mogelijke 'modelstructuren' voor CO-CO_2 ijs: een lagensysteem als CO_2 wordt gevormd door middel van oppervlakte reacties, of een gemengd ijs wanneer stralingsprocessen de hoofdrol spelen. Systematisch onderzoek naar de temperatuursafhankelijkheid van de IR-spectra van deze twee systemen toont aan dat deze spectra zich significant verschillend gedragen. Het aantal mogelijke composities van het interstellaire CO-CO_2 ijs en haar thermische geschiedenis kan hierdoor aanzienlijk worden gereduceerd aan de hand van een combinatie van de aangetroffen spectrale patronen van CO en CO_2. Tevens suggereren de laboratoriumexperimenten dat wanneer interstellaire CO-CO_2 ijsspectra worden waargenomen, deze de oorspronkelijke vorming van CO_2 uit CO reflecteren. Deze resultaten zullen worden toegepast bij de analyse van de interstellaire spectra die momenteel worden verkregen met behulp van de recent gelanceerde ruimtetelescoop Spitzer.

In **Hoofdstuk 3** worden de laboratoriumresultaten uit Hoofdstuk 2 gebruikt om een algemeen geldend model te construëren dat de fysische interacties tussen CO en CO_2 in ijs onder interstellaire condities beschrijft. Dit model verbetert het fundamentele inzicht in het gedrag van CO-CO_2 ijssystemen, waardoor het mogelijk wordt om de interacties tussen deze moleculen te voorspellen in verschillende interstellaire ijsstructuren.

Hoofdstuk 4 beschrijft de eerste experimentele studie naar de thermisch geïnduceerde verdamping van CO en N_2 vanuit een gemengde of gelaagde ijstoestand. De accretie en desorptie van CO en N_2 in de beginstadia van de stervorming zijn een belangrijke maatstaf aan de hand waarvan astrochemische modellen deze vorming bestuderen. De modellen maken gebruik van gasfase-waarnemingen van $C^{18}O$ (een natuurlijke isotoop van CO) en N_2H^+ om de accretie en desorptie van respectievelijk CO en N_2 te simuleren. Belangrijke parameters in deze modellen zijn de bindingsenergiën van CO en N_2 in het ijs. Hoewel de modellen in staat zijn de waarnemingen redelijk te reproduceren blijkt uit de beschreven experimenten dat de bindingsenergiën van CO en N_2 veel minder verschillen dan door de modellen wordt aangenomen. Onder interstellaire condities is het echter waarschijnlijker dat CO en N_2 verdampen vanaf een H_2O ijsoppervlak. Deze studie is daarom een eerste stap in het onderzoek naar dit complexere en astrofysisch meer relevante systeem waarin gekeken zal moeten worden naar de bindingsenergiën van CO en N_2 op H_2O-ijs.

Hoofdstuk 5 beschrijft de constructie en calibratie van de verschillende functies (RAIRS, QMS en UV-bestraling) van CRYOPAD aan de hand van een studie naar

de UV-ge-ïnduceerde verdamping van dunne laagjes CO-ijs. Een eerste analyse van de resultaten wijst erop dat de directe fotodesorptie van CO weinig efficiënt is, maar wel significant kan zijn onder interstellaire condities als gevolg van processen die kunnen worden opgewekt in het onderliggende (ijs)oppervlak. Deze eerste resultaten laten zien dat CRYOPAD de potentie heeft om zowel kwalitatief als kwantitatief informatie te verschaffen over de chemische en fysische effecten van UV- en thermisch geïnduceerde processen in interstellaire ijsanalogen.

In **Hoofdstuk 6** wordt de efficiëntie van de UV-geïnduceerde productie van isocyanaat (OCN^-) vergeleken met de thermisch geïnduceerde productie uit isocyanaatzuur (HNCO) in aanwezigheid van een protonacceptor (H_2O of NH_3). Het laboratoriumspectrum van het OCN^- ion vertoont grote gelijkenis met het interstellaire ijsspectrum dat rond een golflengte van 4.62 μm wordt waargenomen. In eerste instantie werd dit spectrum alleen gezien in de richting van gebieden waar hoge massa sterren gevormd worden (sterren die typisch meer dan 10$\times$ zwaarder zijn dan de zon). De vorming van dit soort sterren gaat veelal samen met de ontwikkeling van intense stralingsvelden. Aangezien verschillende soorten straling (zoals UV-straling of bombardering met hoog energetische deeltjes) in het laboratorium gemakkelijk OCN^- vormen uit ijs dat bestaat uit H_2O, CO en NH_3, werd de 4.62 μm band geassocieerd met interstellair ijs dat zou zijn blootgesteld aan een intense stralingsbron. De resultaten die hier worden gepresenteerd laten echter zien dat de UV-geïnduceerde productie van OCN^- waarschijnlijk niet efficiënt genoeg is om de hoogst waargenomen concentraties in interstellair ijs te verklaren. De vorming uit HNCO middels een zuur-base reactie blijkt echter een goed alternatief. Derhalve wordt voorgesteld dat de productie van HNCO mogelijk voorafgaat aan de vorming van OCN^-, en dat OCN^- daardoor niet noodzakelijkerwijs een indicator voor de aanwezigheid van stralingsprocessen is.

Kort na publicatie van de resultaten beschreven in Hoofdstuk 6, werd er een 4.62 μm band waargenomen in spectra in de richting van 34 verschillende jonge lage massa sterren gelegen in donkere interstellaire wolken. Deze spectra waren de eerste aanwijzingen voor OCN^- rond een grote hoeveelheid lage massa sterren. **Hoofdstuk 7** geeft de resultaten van de analyse van deze spectra. Uit onderlinge vergelijking blijkt dat de 4.62 μm band bestaat uit twee spectrale componenten waarvan er maar één verklaard kan worden met een laboratoriumspectrum van OCN^-. Kwantitatief gezien is het mogelijk om de afgeleidde OCN^- concentraties te produceren door middel van een fotochemisch vormingsmechanisme. Echter, het zwakkere stralingsveld van jonge lage massa sterren, de hoge dichtheid van de wolken die het ijs beschermen tegen externe stralingsvelden, en de plaatselijke concentratieverschillen, wijzen op een alternatief vormingsmechanisme, bijvoorbeeld het mechanisme voorgesteld in Hoofdstuk 6.