HOKKAIDO UNIVERSITY

Title	紫外線照射を受けた模擬星間氷の液体的ふるまいとその惑星科学・天文学的意義
Author(s)	橘, 省吾
Citation	低温科学, 78, 1-9
Issue Date	2020-03-24
DOI	https://doi.org/10.14943/lowtemsci.78.1
Doc URL	https://hdl.handle.net/2115/77761
Type	departmental bulletin paper
File Information	04_p001-010.LT78.pdf

Hokkaido University Collection of Scholarly and Academic Papers : HUSCAP

低温科学 78 （2020） 1-9
doi: 10.14943/lowtemsci. 78. 1

紫外線照射を受けた模擬星間氷の液体的ふるまいとその惑星科学・天文学的意義

橘　省吾[1,2)*]

2019 年 11 月 27 日受付，2019 年 12 月 2 日受理

分子雲に存在する星間氷を模した紫外線照射非晶質氷（水・メタノール・アンモニアの混合氷）が 60–150 K の温度範囲で，従来考えられてきた固体状態ではなく，液体的にふるまうことが発見された．また，純粋な水からなる氷も低温での紫外線照射により，50–140 K で液体状になり，紫外線照射で現れる液体的なふるまいが水氷に特徴的な現象であることが明らかとなった．液体は化学反応を促進するため，星間氷の液体的なふるまいは，生命材料有機物にも関連する複雑有機物の形成を助長する可能性がある．また，液体状の氷は塵の効率的な付着を助ける可能性もあり，惑星形成の第一歩である塵の集積過程の理解にもつながると期待される．

Liquid-like behavior of UV-irradiated interstellar ice analog and its implications for astronomy and planetary science

Shogo Tachibana[1]

The recent discovery of the liquid-like behavior of water-dominated interstellar ice analog suggests that the ice analog may enhance the formation of organic compounds, including prebiotic molecules, as well as the accretion of icy dust, to form icy planetesimals under certain interstellar conditions.

キーワード：星間氷，紫外線，非晶質，液体，粘性
Interstellar ice, ultraviolet light, amorphous, liquid, viscosity

1. 恒星・惑星形成の場

恒星は誕生し，やがて死を迎える．恒星内部の核融合でつくられた元素は星の死とともに，銀河に放出され，新たな恒星や惑星を生み出す材料となる．恒星は，分子雲とよばれる高密度の星間ガスの雲の中で誕生する．分子雲自体は超新星爆発の衝撃波などで星間ガスが掃き寄せられてつくられると考えられている．分子雲の気体分子の数密度は 10^4–10^6 cm^{-3} 程度で，地上の空気（～10^{19} cm^{-3}）に比べると，ずっと希薄なガスの雲である．しかし，それほど希薄でも，雲が光年スケールの大きさになれば，塵（ガスに対して 1% 程度存在する）が背後の光を遮り，真っ黒な雲（暗黒星雲）として観測される．分子雲の一部が何らかの原因で圧縮されるなどして，密度が高くなると，重力で周囲のガスを集め始め，それにより重力が強まり，ガスをさらに集める．このような正のフィードバックが働くことで，恒星が誕生する．

誕生した恒星の周囲には，角運動量の大きなガス成分が回転する円盤構造（原始惑星系円盤）を形成する．原始惑星系円盤の中で塵が合体成長し，微惑星とよばれる 10 km 程度の大きさの天体となり，微惑星が集積して，惑星ができる．太陽系もそのようにして，45 億 6700 万年前に誕生した．太陽系初期に形成された微惑星の名残が小惑星や彗星などの太陽系小天体である．

*連絡先
橘　省吾
東京大学　大学院理学系研究科　宇宙惑星科学機構
〒113-0033　東京都文京区本郷 7-3-1
e-mail：tachi@eps.s.u-tokyo.ac.jp

1）東京大学　大学院理学系研究科　宇宙惑星科学機構
UTokyo Organization for Planetary and Space Science (UTOPS), University of Tokyo, Tokyo, Japan
2）宇宙航空研究開発機構　宇宙科学研究所
ISAS, JAXA, Sagamihara, Japan

2. 分子雲での化学過程

分子雲を電波観測すると，その名の通り，水素分子を主とし，多様な分子が見つかる．宇宙の元素存在度を反映し，水素，酸素，炭素，窒素からなる H_2O，CO，NH_3 などが観測される他，不安定なラジカル種も，気相での衝突頻度が低いために長い寿命をもつようになり，発見されている．また，原子数が 6 を超えるような複雑有機分子も観測される．また，分子雲ごとに分子存在度に多様性があり，飽和した有機分子が卓越する分子雲，不飽和な炭素鎖分子が卓越する分子雲などが知られており，分子雲の物理進化と関連して，議論されている（e.g., Yamamoto, 2017 and references therein）．

これらの観測される分子は，気相での反応（主として，イオン分子反応）や塵表面での反応で形成される．光の届かない分子雲の中は冷たく，10–30 K 程度であるため，吸熱反応やエネルギー障壁のある反応は起こらない．また，気相での衝突頻度が小さく，生成分子が余剰エネルギーを他の気相分子との衝突で捨てられないため，H + H→H_2 としてつくられる水素分子は余剰エネルギーのために解離してしまう．一方，塵表面は分子形成で生じる余剰エネルギーを受け取ることができ，また，吸着原子・分子の衝突頻度は気相に比べて高いため，気相反応では効果的に起きない分子の形成も起こる．実際，水素分子は塵表面で効果的に形成される（e.g., Hama and Watanabe, 2013）．

形成された分子は，低温の塵表面に吸着し，やがて H_2O，CO，CH_4，CH_3OH，NH_3 などからなる氷マントルを形成する．この氷マントルに宇宙線によって励起された水素分子が放射する紫外線が照射される．紫外線は氷マントル中の分子を解離させ，ラジカルを形成する．この氷マントルが，分子雲の中でも密度の低い希薄な領域や原始惑星系円盤で温度上昇によって，昇華する際に，ラジカルや分子の重合が起こり，難揮発性の複雑有機物が形成される．これらの有機物はやがて微惑星の材料となる．塵がどのように合体成長して，微惑星になったのかはいまだに明らかにされていない．有機物が塵の合体成長の糊の役割を果たしたのではないかという議論もおこなわれている（Kudo et al., 2002）．

微惑星にとりこまれた有機物は，現在，隕石などの地球外物質中に発見される（Botta and Bada, 2002; Sephton, 2002; Pizzarello et al., 2006; Schmitt-Kopplin et al., 2010; Gilmour, 2014;）．小惑星サンプルリターン探査「はやぶさ 2」，OSIRIS-Rex 計画でも，小惑星有機物の理解が目標のひとつともなっている（Tachibana et al., 2014; Lauretta et al., 2017）．これらの地球外物質中の有機物には分子雲起源の有機物が残っていると期待される．特に分子雲では重水素に濃集した分子が多数観測されているが，地球外物質中の有機物にも重水素濃集が見られるものがあり（Busemann et al., 2006, 2009; Duprat et al., 2010），それらは分子雲で形成された有機物ではないかと考えられている．また，地球外有機物からはアミノ酸や核酸塩基，糖などを含む様々な有機分子が発見されており（e. g., Cooper et al., 2001; Martins et al., 2008; Callahan et al., 2011; Gilmour, 2014; Furukawa et al., 2019），生命前駆有機物の宇宙での形成，進化を考える上でも分子雲での有機物形成は興味が持たれる．実際，分子雲を模擬した条件で，氷の光化学反応実験をおこない，氷昇華後に形成される有機物中からアミノ酸や糖，核酸塩基が発見されている（e.g., Muñoz Caro et al., 2002; Meinert et al., 2016; Oba et al., 2019）．

このように分子雲で起こる氷マントル中の光化学反応で形成される有機物は，惑星系形成最初期に存在する始原的有機物といえる．光化学反応でつくられる有機物の性質を調べる室内実験はこれまで数多くおこなわれてきたが，有機物形成の場となる星間氷そのものの性質については充分には理解されていなかった．本稿では．太陽系をつくった分子雲の化学条件を制約することを目的とした非晶質氷の光化学反応実験の中で発見された非晶質氷の新たな物性（Tachibana et al., 2017）について，紹介・解説する．

新たに発見された非晶質氷の物性は，紫外線照射を受けた非晶質氷が，惑星形成以前の太陽系での分子進化を効率的に起こす反応場を提供しうることを示唆し，また，効果的な塵集積に貢献する可能性もあり，天文学，惑星科学において，非常に興味深いものであると考えている．

3. 実験

3.1. 紫外線を照射した模擬分子雲氷のその場光学観察

Piani et al.（2017）の開発した光化学反応実験装置（PICACHU：Photochemistry in Interstellar Cloud for Astro-Chronicle in Hokkaido University）を用いて実験をおこなった．真空チャンバー（～10^{-7} Pa）内で 10–15 K 程度に冷やした基板（金，銅，または酸化アルミニウム）の上に H_2O，CH_3OH，NH_3 を（10～2）：1：1 の割合で混合したガスを吹き付け（～(3–6) × 10^{14} molecules $cm^{-2} s^{-1}$），同時に重水素ランプから紫外線（～(1–1.2) × 10^{14} photons $cm^{-2} s^{-1}$）を照射し，数 μm 程度の厚みの模擬分子雲氷を作成した．その後，ガス吹き付け，紫外線

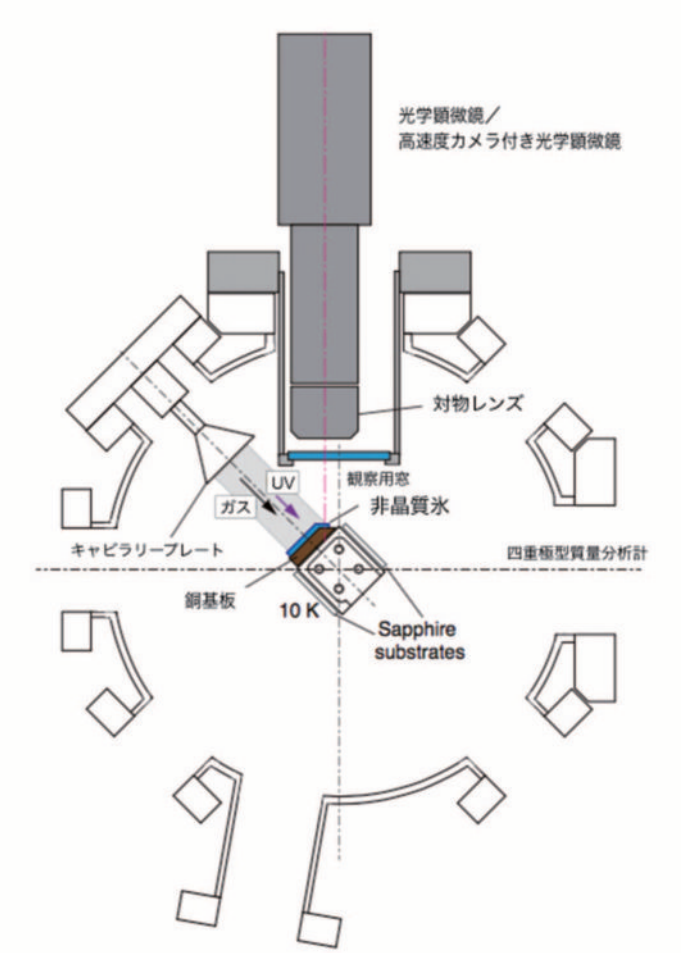


図 1：光化学反応実験装置 PICACHU を用いた紫外線照射非晶質 H_2O-CH_3OH-NH_3 氷の光学観察セッティング．Tachibana et al.（2017）を改訂．

照射をやめ，冷凍機を停止し，温度を上げながら，非晶質氷の状態をチャンバー外部から，光学顕微鏡（Nikon CM-10L）または高速度カメラ付き光学顕微鏡（Keyence VW-Z2）で観察した（図 1）．また，温度上昇中に氷から昇華してくるガスを四重極型質量分析計で分析した．比較のために紫外線を照射しない実験もおこなった．実験装置の詳細や内容は Tachibana et al.（2017）を参照されたい．

本条件で形成される非晶質氷の分光学的特徴は，赤外分光装置を備えた光化学反応実験装置（SAMRAI; Oba et al., 2016）で確認をおこなった．H_2O，CH_3OH，NH_3 混合ガス（H_2O：CH_3OH：NH_3 = 5：1：1）を 10 K に冷却したアルミ基板に～10^{13} molecules cm^{-2} s^{-1} で蒸着し，同時に重水素ランプから紫外線（～7×10^{13} photons cm^{-2} s^{-1}）を照射し，分光分析をおこなった．また，基板を 1 K min^{-1} で加熱し，加熱中のスペクトル変化も観察した．紫外線を照射しない実験も比較のためにおこなった．

3.2. 透過電子顕微鏡による紫外線照射水氷のその場観察

液体ヘリウムを用いた低温その場観察が可能な透過型電子顕微鏡（JEOL JEM-2100VL）内で，6-8 K に冷やした非晶質シリコン膜上に 5 nm min^{-1} の速度で水氷の非晶質膜（厚さ～25 ± 5 nm）を生成した（6-8 K）（図 2）．その後，非晶質膜の温度を 145 K まで上げ，氷を結晶化させた．結晶化によって，基板上に島状の結晶水氷が現れる（図 2）．その島状組織の結晶水氷を再度 10 K まで冷やし，重水素ランプからの紫外線（$(2 \pm 1)\times10^{13}$ photons cm^{-2} s^{-1}）を 10-60 分照射し，非晶質水氷の島を作成した（非晶質化の完了は電子線回折で確認）（図 2）．その後，温度を上昇させながら，もしくは 60 K に固定して，島状非晶質氷の形状変化を電子顕微鏡でその場観察をおこなった．その際，電子線による氷試料へのダメージを最小限にするために，低倍（5 万倍）で加速電圧を 80 kV に抑えて，観察を実施した．

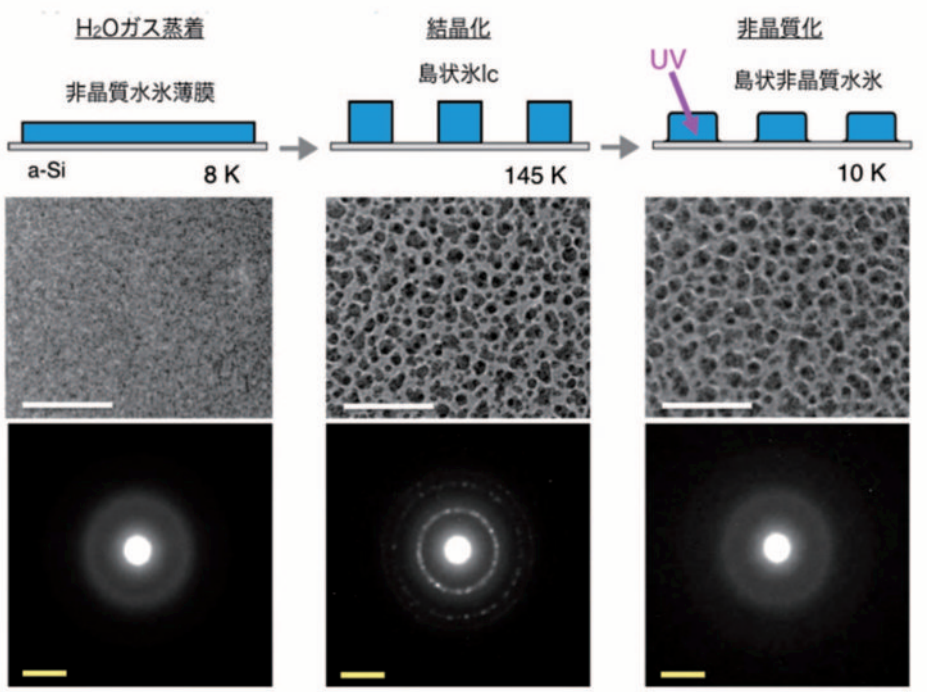


図 2：低温透過型電子顕微鏡（JEOL JEM-2100VL）を用いた島状構造の非晶質水氷作成手順（上）および各手順における透過電子顕微鏡像（スケールバー 500 nm）（中）・電子線回折パターン（スケールバー 5 nm^{-1}）（下）．Tachibana et al.（2017）を改訂．

4. 結果

4.1. 紫外線を照射した模擬分子雲氷の状態変化

温度上昇時，～60–150 K の温度範囲で沸騰する水のように氷が発泡する現象が見られた（図 3）．泡のサイズは直径数から数十 μm であった．発泡した箇所の多くは跡が残り，泡の跡には固体有機物がほとんど残っておらず，泡の破裂によって，氷膜が失われたものと考えられる．Piani et al.（2017）による実験でも，光化学反応でつくられた有機物層に同様の円形構造が確認されている．発泡現象は H_2O，CH_3OH，NH_3 の混合比（10～2）：1：1 の範囲ではすべて観察されたが，H_2O の割合が増えるほど，観察される泡の量が減るという相関が見られた．

また，発泡時に放出される主要ガスは，四重極型質量分析計による分析により，水素分子であることがわかった（図 4）．発泡が続く温度範囲では，水素分子を示す

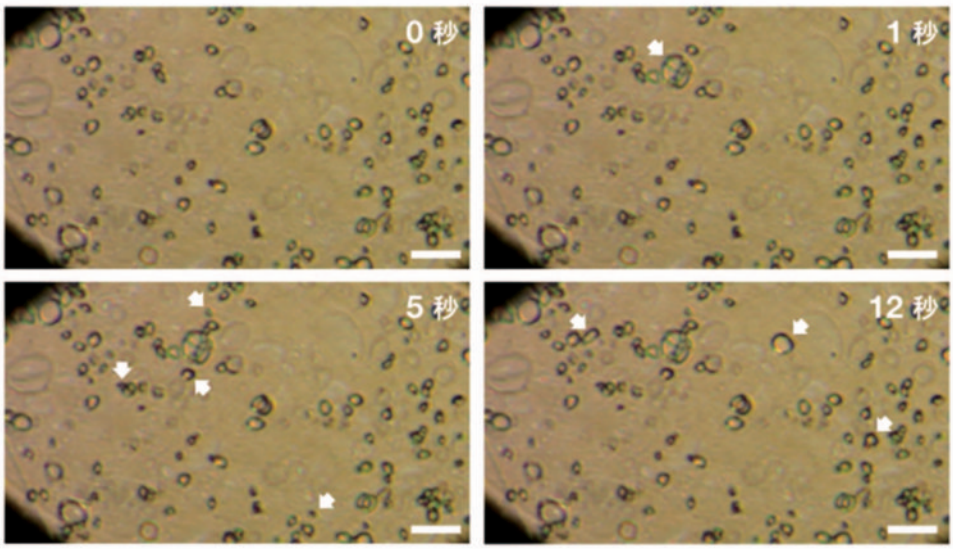


図 3：～10 K で紫外線を照射した非晶質 H_2O-CH_3OH-NH_3 氷の温度上昇時（128–129 K）に観察された発泡現象．矢印が新しく出現した泡を示す．氷の初期組成は H_2O：CH_3OH：NH_3＝5：1：1，スケールバーは 200 μm．Tachibana et al.（2017）を改訂．

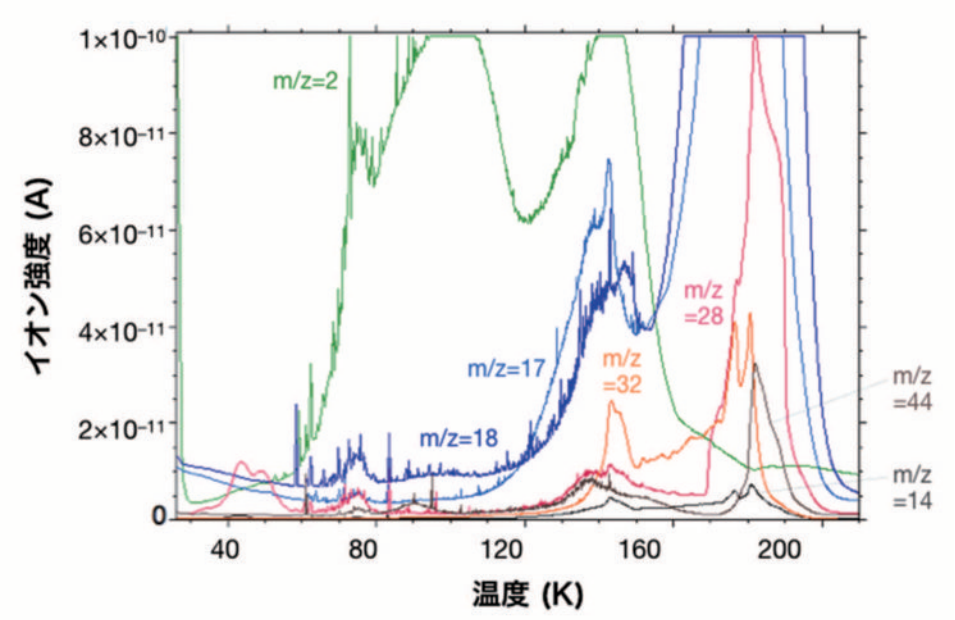


図 4：～10 K で紫外線を照射した非晶質 H_2O-CH_3OH-NH_3 氷から温度上昇時に放出されたガス成分．水素分子と考えられる m/z＝2 のシグナルが発泡時に他の分子に卓越し，また間欠的に上昇することもわかる．Tachibana et al.（2017）を改訂．

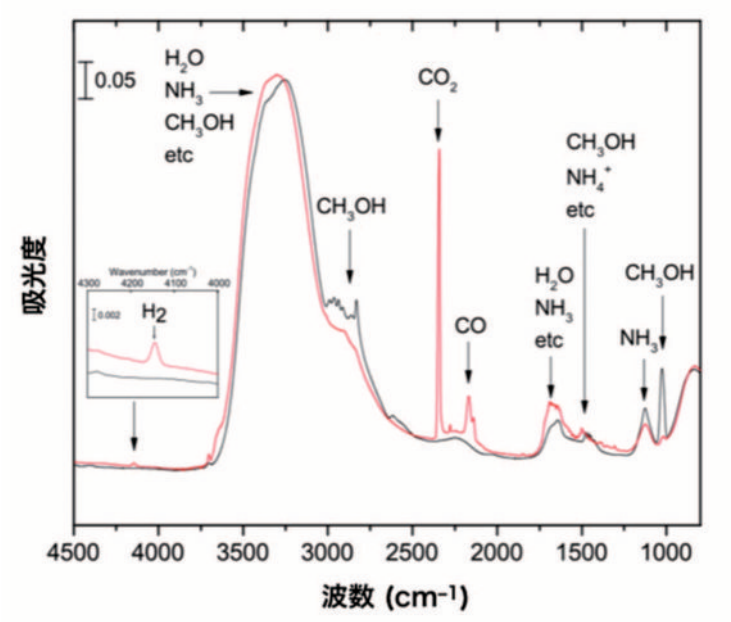


図 5：～10 K で紫外線を照射した非晶質 H_2O-CH_3OH-NH_3 氷（赤）および紫外線を照射していない非晶質 H_2O-CH_3OH-NH_3 氷（黒）の赤外スペクトル．H_2 に由来する 4150 cm^{-1} のピークが紫外線照射をおこなった氷にのみ確認される．氷の初期組成は H_2O：CH_3OH：NH_3＝5：1：1．Tachibana et al.（2017）を改訂．

m/z＝2 のシグナルが間欠的に上昇することが確認される（図 4）．

紫外線照射を受けた非晶質氷の赤外スペクトルには 10 K で H_2 に起因するピークが確認され，また，CH_3OH 由来のピークがほぼ消失し，NH_3 由来のピークの強度が弱くなっていることもわかる（図 5）．

4.2. 紫外線照射水氷の形状変化

紫外線照射を受けた島状の非晶質水氷は温度上昇中，50 K を超えると，変形し始め，高さが減少し，水平方向に広がる様子が観察された（図 6）．また，およそ 140 K で結晶化が起こった．この形状変化は非晶質氷作成のための紫外線照射が 30 分以上おこなった氷のみで観察され，10 分間照射の非晶質氷では観察されなかった．同様

に，結晶水氷の島でも観察されなかった．温度を 60 K に固定し，形状の時間変化を観察したところ，紫外線照射を 30 分以上おおこなって非晶質化させた氷では 60 分の間に形状変化が確認された（図 6）．しかし，紫外線照射 10 分の非晶質水氷や結晶水氷では形状は変化しなかった（Tachibana et al., 2017）．

5. 考察

5.1. 紫外線照射非晶質氷の液体的ふるまい

紫外線照射を受けた非晶質 H_2O-CH_3OH-NH_3 氷，非晶質水氷の温度上昇時の発泡ならびに変形は，これらの非晶質氷が低粘性状態にあること，また水を含む氷の特徴であることを示唆する．

高速度カメラで撮影した複数の泡の成長速度から，発泡時の非晶質 H_2O-CH_3OH-NH_3 氷（H_2O：CH_3OH：NH_3 = 5:1:1）の粘性を見積もると（Proussevich et al., 1993），88 K で約 400 Pa s，112 K で約 700 Pa s であった（Tachibana et al., 2017）．液体のガラス転移点での粘性が約 10^{12} Pa s であることを考えると，かなり低い粘性であり，発泡時の氷が液体的なふるまいを示していることがわかる．また，H_2O の割合の増加とともに泡の量が減

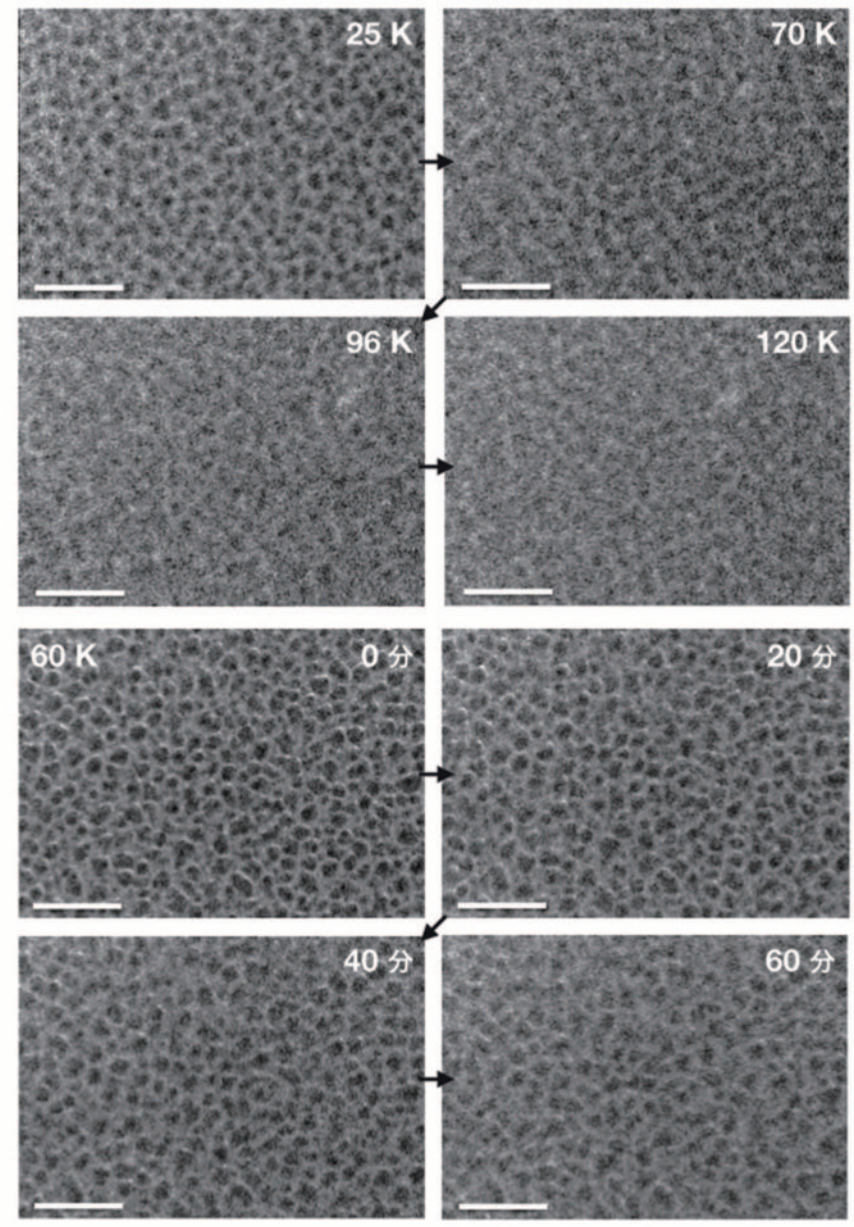


図 6：紫外線を照射した非晶質水氷の形状変化．上四枚の写真は温度上昇時に観察したもの．島（暗く見える部分）が広がり，画像のコントラストが下がる様子がわかる．下四枚の写真は 60 K に固定して，60 分観察したもの．同様に島が広がる様子がわかる．スケールバー 500 nm．Tachibana et al.（2017）を改訂．

ることから，発泡する水素分子は，CH_3OH や NH_3 が壊れ，氷中に蓄えられた水素からつくられた分子であると考えられる（図 7）．

島状非晶質水氷についても，その変形時間から粘性を見積もると（Tanner, 1979），60 K での粘性は 4×10^7 Pa s であった（Tachibana et al., 2017）．この粘性は，上述の非晶質 H_2O-CH_3OH-NH_3 氷の粘性に比べると，五桁大きいが，ガラス転移点での粘性に比べて，五桁近く小さく，やはり液体的にふるまっているといえる．実際，～10^7 Pa s 程度の粘性はケイ酸成分を多く含むマグマ程度であり，液体的であることがわかる．

これらの液体的ふるまいは，いずれも低温で紫外線を照射して作成した非晶質氷が温度上昇の過程で，結晶化が起こるより低温（50–150 K 程度）で見られるものであった．これは紫外線照射によって，非晶質氷中でのラジカル形成や欠陥形成が進み，氷内の水素結合が切られた状態となり，温度上昇に従って，分子，原子，ラジカルが動ける状態となったときに再結合が進む過程で生じる遷移的な状態であると考えられる（図 7）．

5.2. 非晶質氷の液体的ふるまいの惑星科学・天文学的意義

これまで，分子雲を模した低温条件で紫外線を照射した氷での有機物形成実験により，高分子有機物や糖，アミノ酸といった生命関連有機物の形成などが調べられてきたが，有機物形成の場となる星間氷そのものが液体のようにふるまう可能性が初めて示された．

液体は化学反応を促進するため，星間氷が液体的なふるまいをすれば，生命材料有機物にも関連する複雑有機物の形成を手助けしている可能性がある．実際，本研究で液体状態が発現することが示された温度条件での光化学反応実験で H_2O-CH_3OH-NH_3 氷から糖の形成が報告されている（Meinert et al., 2016）．

さらには，液体状の氷は，原始惑星系円盤において，塵が衝突する際の衝撃の吸収剤として働き，氷星間塵の効率的な付着を助ける可能性もある．この場合，惑星形成の第一歩である塵の集積がどのようにして起こるのかという問題の理解につながると期待される．

留意すべき点は，この液体的ふるまいの発現条件が，紫外線の照射総量であるのか，時間あたりの照射量（フラックス）であるのかが現状はわからないことである．実験中に数日程度の照射された紫外線の単位体積あたりの総量は，分子雲での 10 万年から 100 万年の紫外線照射に相当する．照射総量が液体的ふるまいの発現条件である場合，分子雲の寿命の範囲内の照射時間で，液体的氷の条件を満たしうることになる．一方，紫外線の照射

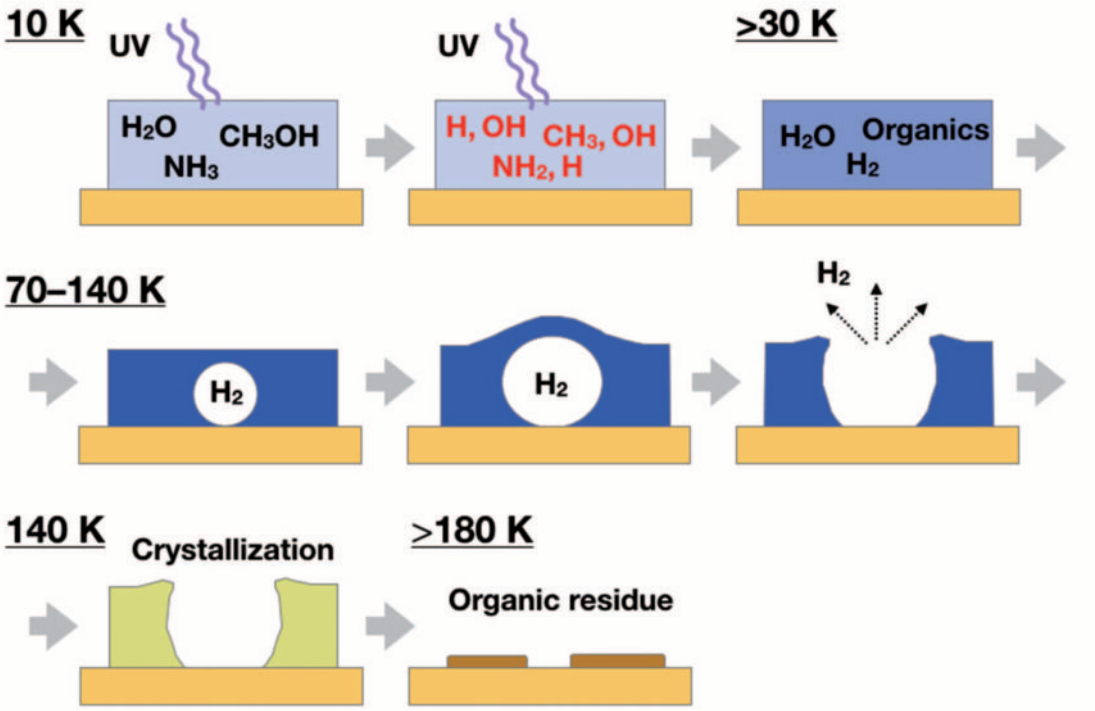


図 7：紫外線を照射した非晶質 H_2O-CH_3OH-NH_3 氷に見られた温度上昇時の水素発泡現象．紫外線照射によって，非晶質氷中でのラジカル形成や欠陥形成が進み，氷内の水素結合が切られた状態となり，分子，原子，ラジカルの移動が可能な温度になった時点で再結合が進む際に液体的低粘性状態になると考えられる．

フラックスが発現条件である場合には，紫外線フラックスが桁違いに小さい分子雲の条件では，液体状氷は現れないことになる．この場合には原始惑星系円盤が周囲の恒星から照らされるような場合（e.g., Ciesla and Sandford, 2012）に限り，円盤中の氷が短時間に充分な紫外線照射を受け，液体状の氷が現れる可能性がある．

液体条件の発現条件がいずれの場合でも，星・惑星系形成領域において，非晶質氷が液体的にふるまう条件が存在しうる．新たに発見された星間氷の物性が星・惑星系形成領域での化学進化，構造形成にどの程度貢献するか，今後調べていきたいと考えている．

謝辞

本研究で紹介した研究（Tachibana et al., 2017）は文部科学省科学研究費補助金（新学術領域研究）「宇宙における分子進化：分子雲から原始惑星系へ」の支援を受けて実施されました．論文の共著者の皆さんには装置開発，実験，観察など様々な点で協力いただきました．特に低温科学研究所の香内晃教授には，これまで低温実験の経験のなかった筆者に実験装置開発から指導いただき，また，透過型電子顕微鏡での低温その場観察実験をおこなっていただきました．ここに記して，感謝申し上げます．

参考文献

Busemann, H., A. F. Young, C. M. O'D. Alexander, P. Hoppe, S. Mukhopadhyay and L. R. Nittler (2006) Interstellar chemistry recorded in organic matter from primitive meteorites. *Science*, **312**, 727–730.

Busemann, H., A. N. Nguyen, G. D. Cody, P. Hoppe, A. L. D. Kilcoyne, R. M. Stroud, T. J. Zega and L. R. Nittler (2009) Ultra-primitive interplanetary dust particles from the comet 26P/Grigg-Skjellerup dust stream collection. *Earth Planet. Sci. Lett.*, **288**, 44–57.

Botta, O. and J. L. Bada (2002) Extraterrestrial organic compounds in meteorites. *Surv. Geophys.*, **23**, 411–467.

Callahan, M. P., K. E. Smith, H. J. Cleaves II, J. Ruzicka, J. C. Stern, D. P. Glavin, C. H. House and J. P. Dworkin (2011) Carbonaceous meteorites contain a wide range of extraterrestrial nucleobases. *Proc. Natl. Acad. Sci. U.S.A.*, **108**, 13995–13998.

Ciesla, F. and S. A. Sandford (2012) Organic synthesis via irradiation and warming of ice grains in the solar nebula. *Science*, **336**, 452–454.

Cooper, G., N. Kimmich, W. Belisle, J. Sarinana, K. Brabham and L. Garrel (2001) Carbonaceous meteorites as a source of sugar-related organic compounds for the early Earth. *Nature*, **414**, 879–883.

Duprat, J., E. Dobrica, C. Engrand, J. Aléon, Y. Marrocchi, S. Mostefaoui, A. Meibom, H. Leroux, J.-N. Rouzaud, M. Gounelle and F. Robert (2010) Extreme deuterium excesses in ultracarbonaceous micrometeorites from central Antarctic snow. *Science*, **328**, 742–745.

Furukawa, Y., Y. Chikaraishi, N. Ohkouchi, N. O. Ogawa, D. P. Glavin, J. P. Dworkin, C. Abe and T. Nakamura (2019) Extraterrestrial ribose and other sugars in primitive meteorites. *Proc. Natl. Acad. Sci. U.S.A.*, **116**, 24440–24445.

Gilmour, I. (2014) Structural and isotopic analysis of organic matter in carbonaceous chondrites. In: Davis A. M. (ed) *Meteorites and Cosmochemical Processes*, 215–233, Elsevier.

Hama, T. and N. Watanabe (2013) Surface processes on interstellar amorphous solid water: Adsorption, diffusion, tunneling reactions, and nuclear-spin conversion. *Chem. Rev.*, **113**, 8783–8839.

Kudo, T., A. Kouchi, M. Arakawa and H. Nakano (2002) The role of sticky interstellar organic material in the formation of asteroids. *Meteorit. Planet. Sci.*, **37**, 1975–1983.

Lauretta, D. S., S. S. Balram-Knutson, E. Beshore, W. V. Boynton, C. Drouet d'Aubigny, D. N. DellaGiustina, H. L. Enos, D. R. Golish, C. W. Hergenrother, E. S. Howell, C. A. Bennett, E. T. Morton, M. C. Nolan, B. Rizk, H. L. Roper, A. E. Bartels, B. J. Bos, J. P. Dworkin, D. E. Highsmith, D. A. Lorenz, L. F. Lim, R. Mink, M. C. Moreau, J. A. Nuth, D. C. Reuter, A. A. Simon, E. B. Bierhaus, B. H. Bryan, R. Ballouz, O. S. Barnouin, R. P. Binzel, W. F. Bottke, V. E. Hamilton, K. J. Walsh, S. R. Chesley, P. R. Christensen, B. E. Clark, H. C. Connolly, M. K. Crombie, M. G. Daly, J. P. Emery, T. J. McCoy, J. W. McMahon, D. J. Scheeres, S. Messenger, K. Nakamura-Messenger, K. Righter and S. A. Sandford (2017) OSIRIS-REx: Sample Return from Asteroid (101955) Bennu. *Space Sci. Rev.*, **212**, 925–984.

Martins Z., O. Botta, M. L. Fogel, M. A. Sephton, D. P. Glavin, J. S. Watson, J. P. Dworkin, A. W. Schwartz and P. Ehrenfreund (2008) Extraterrestrial nucleobases in the Murchison meteorite. *Earth Planet. Sci. Lett.*, **270**, 130–136.

Meinert, C., I. Myrgorodska, P. De Marcellus, T. Buhse, L. Nahon, S. V. Hoffmann, L. L. S. d'Hendecourt and U. J. Meierhenrich (2016) Ribose and related sugars from ultraviolet irradiation of interstellar ice analogs. *Science*, **352**, 208–212.

Muñoz Caro, G. M., U. J. Meierhenrich, W. A. Schutte, B. Barbier, A. Arcones Segovia, H. Rosenbauer, W. H.-P. Thiemann, A. Brack and J. M. Greenberg (2002) Amino acids from ultraviolet irradiation of interstellar ice analogues. *Nature*, **416**, 403–406.

Oba, Y., Y. Takano, N. Watanabe and A. Kouchi (2016)

Deuterium fractionation during amino acid formation by photolysis of interstellar ice analogs containing deuterated methanol. *Astrophys. J. Lett.*, **827**, L18.

Oba, Y., Y. Takano, H. Naraoka, N. Watanabe and A. Kouchi (2019) Nucleobase synthesis in interstellar ices. *Nature Commun.*, **10**, 4413.

Piani L., S. Tachibana, T. Hama, H. Tanaka, Y. Endo, I. Sugawara, L. Dessimoulie, Y. Kimura, A. Miyake, J. Matsuno, A. Tsuchiyama, K. Fujita, S. Nakatsubo, H. Fukushi, S. Mori, T. Chigai, H. Yurimoto and A. Kouchi (2017) Evolution of morphological and physical properties of laboratory interstellar organic residues with ultraviolet irradiation. *Astrophys. J.*, **837,** 35–45.

Pizzarello, S., G. Cooper and G. Flynn (2006) The nature and distribution of the organic material in carbona- ceous chondrites and interplanetary dust particles. In: Lauretta D. S. and H. Y. McSween (eds) *Meteorites and the Early Solar System II*, 625–651, University of Arizona Press.

Proussevich, A. A., D. L. Sahagian and A. T. Anderson (1993) Dynamics of diffusive bubble growth in magmas: isothermal case. *J. Geophys. Res.*, **98**, 22283–22307.

Schmitt-Kopplin, P., Z. Gabelica, R. D. Gougeon, A. Fekete, B. Kanawati, M. Harir, I. Gebefuegi, G. Eckel and N. Hertkorn (2010) High molecular diversity of extraterrestrial organic matter in Murchison meteor- ite revealed 40 years after its fall. *Proc. Natl. Acad. Sci. U.S.A.*, **107**, 2763–2768.

Sephton, M. A. (2002) Organic compounds in carbonaceous meteorites. *Nat. Prod. Rep.*, **19**, 292–311.

Tachibana, S., M. Abe, M. Arakawa, M. Fujimoto, Y. Iijima, M. Ishiguro, K. Kitazato, N. Kobayashi, N. Namiki, T. Okada, R. Okazaki, H. Sawada, S. Sugita, Y. Takano, S. Tanaka, S. Watanabe, M. Yoshikawa, H. Kuninaka and the Hayabusa2 project team (2014) Hayabusa2: Scientific importance of samples returned from C-type near-Earth asteroid (162173) 1999 JU_3. *Geochem. J.*, **48**, 571–587.

Tachibana, S., A. Kouchi, T. Hama, Y. Oba, L. Piani, I. Sugawara, Y. Endo, H. Hidaka, Y. Kimura, K. Murata, H. Yurimoto, N. Watanabe (2017) Liquid-like behavior of UV-irradiated interstellar ice analog at low temperatures. *Sci. Adv.*, **3**, eaao2538.

Tanner L. H. (1979) The spreading of silicone oil drops on horizontal surfaces. *J. Phys. D: Appl. Phys.*, **12**, 1473–1484.

Yamamoto, S. (2017) *Introduction to Astrochemistry: Chemical Evolution from Interstellar Clouds to Star and Planet Formation*. Springer.