

Physique-Chimie sur des surfaces froides : simulation des données expérimentales



M. Minissale et F. Dulieu
 Université de Cergy Pontoise and Observatoire de Paris
 G. Manicò et V. Pirronello
 Dipartimento di Fisica e Astronomia, Università di Catania

Qui nous sommes, quoi nous faisons

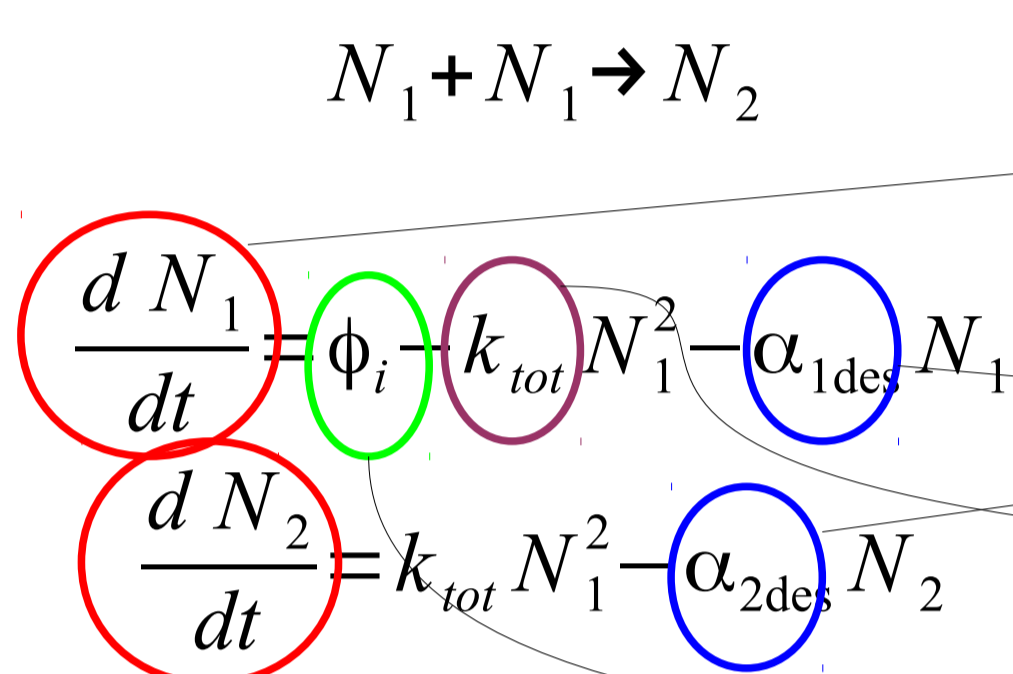
L'équipe du LERMA (Laboratoire d'Etude du Rayonnement et de la Matière en Astrophysique) – LAMAP (Laboratoire atomes et molécules en astrophysique) est située à l'Université de Cergy Pontoise, site de Neuville. Nous cherchons à comprendre un grand nombre d'observations astronomiques (de la haute atmosphère terrestre jusqu'aux objets galactiques les plus lointains) et de donner une interprétation astrophysique en utilisant de données atomiques et moléculaires de base. Ces données résultent d'études et d'expériences de laboratoire réalisées dans des conditions simulées, en les simplifiant, les conditions physico-chimiques des milieux observés. Nous étudions principalement les processus qui se passent dans la phase solide de ces milieux (par exemple dans la poussière interstellaire) et nous cherchons à coupler la phase solide avec celle gazeuse

Doctorant en troisième année à l'UCP

Dans ce poster nous présentons un modèle qui simule les données expérimentales obtenus au laboratoire LERMA-LAMAP à l'université de Cergy Pontoise. En s'inspirant du modèle présenté dans Katz et al 1999 ; ce modèle utilise des équations maîtresse (notamment des équations différentielles) pour décrire l'évolution temporelle d'un système. La Physique-Chimie sur les surfaces froides (10-60 K) est modélisée en utilisant une équation de taux pour chacun des états du système (c'est-à-dire les espèces atomiques ou moléculaires envoyées sur la surface et celles formées). Il y a principalement deux types de paramètres que nous cherchons : la barrière de diffusion des atomes (or molécules) et la barrière d'activation pour chaque réaction. D'autres paramètres, notamment l'énergie de désorption des molécules, sont modélisés indépendamment comme montré dans Amiaud et al 2007 ou Noble et al 2011.

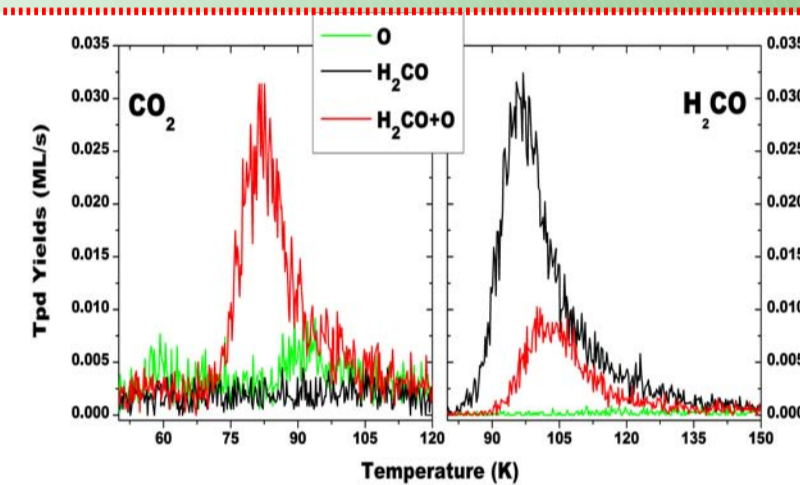
La Physique-Chimie et la formation des molécules à très basses températures (10 K environ) est principalement régulée par deux facteurs principaux : la diffusion des atomes et l'énergie d'activation des réactions. La première facilite le rencontre des espèces, alors que la deuxième décrit la vitesse de réaction chimique : les données expérimentales, c'est-à-dire la densité superficielle des espèces formées ou disparues, contiennent donc les informations sur ces deux paramètres physico-chimiques.

Un exemple de réaction



Un exemple de modèle

Données expérimentales



Autres paramètres

Paramètre du modèle $k_{tot} = k_{diff} * k_{reac}$

Paramètres expérimentales

En principe, une infinité de couples k_{diff} et k_{reac} donnent le même k_{tot} . Le sens physique ou bien des données déjà établies nous donnent des contraintes pour choisir le bon couple de k_{diff} et k_{reac} .

La diffusion des espèces (atomes ou molécules) sur les surfaces froides est très importantes lorsque on veut étudier la formation des molécules : à basse température la totalité des espèces est fixée à la surface, sauf pour quelques cas. En fait, les atomes comme H ou O, sont capables de diffuser à la surface, de rencontrer d'autres espèces et donc réagir. La diffusion peut être soit thermique soit quantique.

Vu que la diffusion est très fortement dépendante de la température de la surface (Ts), l'étude des réactions sans barrière en changeant la Ts nous offrira assez de restrictions pour étudier la diffusion.

PRL 111, 053201 (2013) PHYSICAL REVIEW LETTERS week ending 2 AUGUST 2013

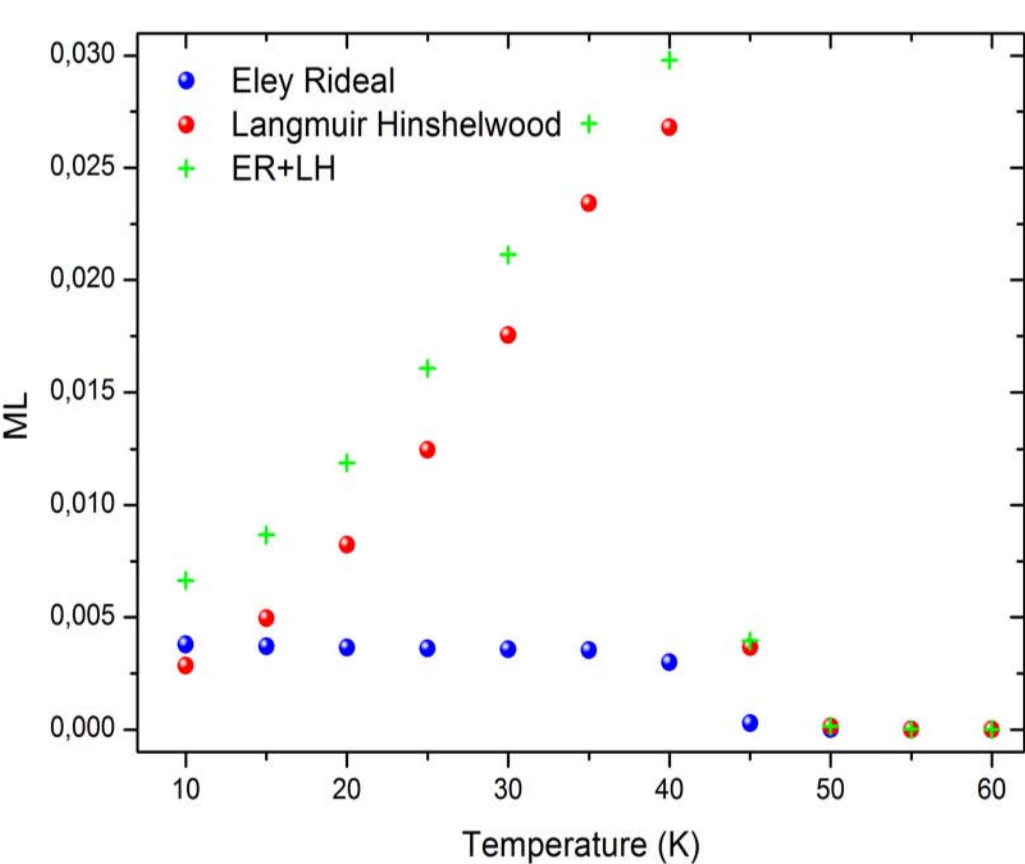
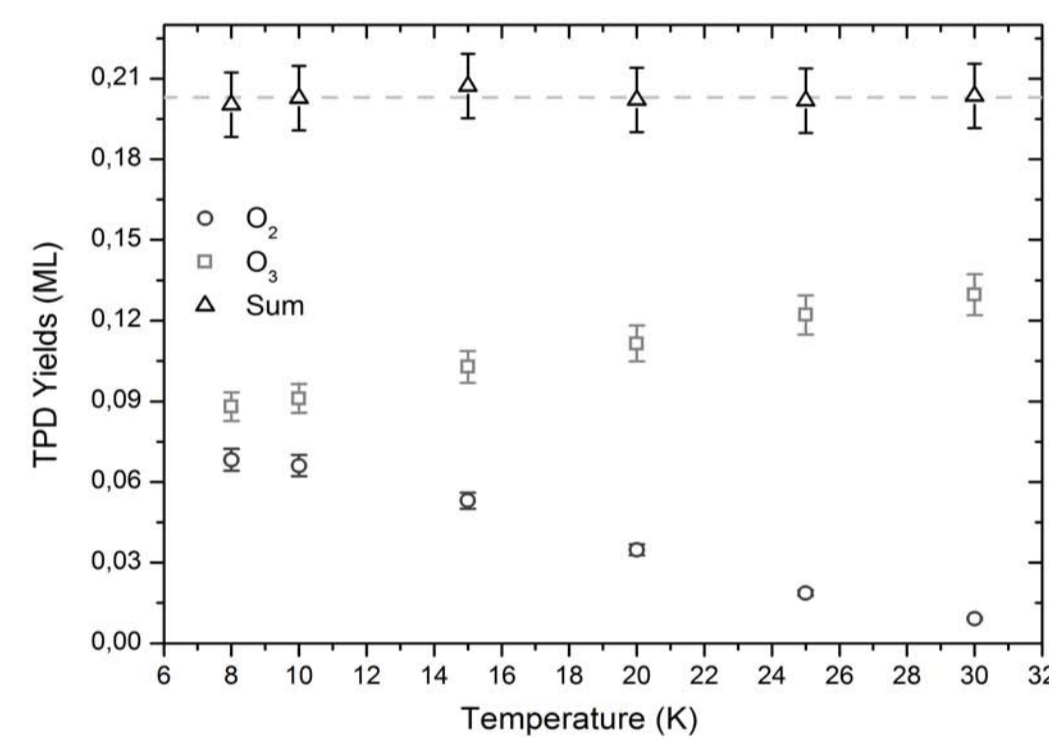
Quantum Tunneling of Oxygen Atoms on Very Cold Surfaces

M. Minissale¹, E. Congiu¹, S. Baouche¹, H. Chaabouni¹, A. Moudens¹, F. Dulieu²
 Université de Cergy Pontoise and Observatoire de Paris, ENS, UPMC, UMR 8112 du CNRS 5, mail Guy Lussac, 95000 Cergy Pontoise cedex, France

M. Accolla
 Dipartimento di Scienze Applicate, Università degli Studi di Napoli Parthenope, Centro Direzionale Isola 4/4, 80143 Napoli, Italy
 S. Cazaux
 Kapteyn Astronomical Institute, Post Office Box 800, 9700 AV Groningen, Netherlands

G. Manicò and V. Pirronello
 Dipartimento di Fisica e Astronomia, Università di Catania, via Santa Sofia 64, 95123 Catania, Sicily, Italy
 (Received 12 December 2012; published 31 July 2013)

Any evolving system can change state via thermal mechanisms (hopping a barrier) or via quantum tunneling. Most of the time, efficient classical mechanisms dominate at high temperatures. This is why an increase of the temperature can initiate the chemistry. We present here an experimental investigation of O-atom diffusion and reactivity on water ice. We explore the 6–25 K temperature range at submonolayer surface coverages. We derive the diffusion temperature law and observe the transition from quantum to classical diffusion. Despite the high mass of O, quantum tunneling is efficient even at 6 K. As a consequence, the solid-state astrochemistry of cold regions should be reconsidered and should include the possibility of forming larger organic molecules than previously expected.



Ce modèle est aussi capable de reconnaître les mécanismes qui prennent lieu sur la surface pour la formation des molécules. Les réactions en phase solide peuvent se faire par deux mécanismes : Eley-Rideal ou Langmuir-Hinshelwood.

Les particularités physiques de ses deux mécanismes nous donnent la possibilité de les diviser et distinguer, et donc de nous offrir les informations utiles pour comprendre comment chaque mécanisme a contribué à la formation des molécules. Finalement, comme déjà dit, les paramètres expérimentaux utilisés nous offre un puissant moyen pour contenir les solutions du modèle.

Trouver l'énergie d'activation pour chaque réaction est fondamental pour bien comprendre comment la formation des molécules peut passer dans notre expérience comme dans les milieux que nous cherchons de reproduire. Par exemple dans des milieux peu denses et froids, la vitesse des réactions (qui dépend de l'énergie d'activation), ainsi que l'abondance des espèces déterminent la composition finale de la glace adsorbée dans la poussière (sauf si il y a beaucoup de photon et rayons cosmiques). La vitesse de réaction suit la loi d'Arrhenius :

$$k_{reac} = v \exp(-E_a/T_{eff})$$

$$T_{eff} = \mu (T_1/m_1 + T_2/m_2)$$

et E_a est l'énergie d'activation

Astronomy & Astrophysics manuscript no. CO2Paper_final October 16, 2013

CO₂ formation on interstellar dust grains: a detailed study of the barrier of the CO+O channel

M. Minissale¹, E. Congiu¹, G. Manicò², V. Pirronello², and F. Dulieu^{1*}

¹ LERMA, UMR5172 du CNRS, de l'Observatoire de Paris et de l'Université de Cergy Pontoise, 5 mail Guy Lussac, F-95000 Cergy Pontoise Cedex, France
 e-mail: marco.minissale@obspm.fr
² Dipartimento di Fisica e Astronomia, Università degli Studi di Catania, Via Santa Sofia 64, I-95123 Catania, Italy

Received March, 2013.

ABSTRACT

Context. The formation of carbon dioxide in quiescent regions of molecular clouds has not yet been fully understood, even though CO₂ is one of the most abundant species in interstellar ice.

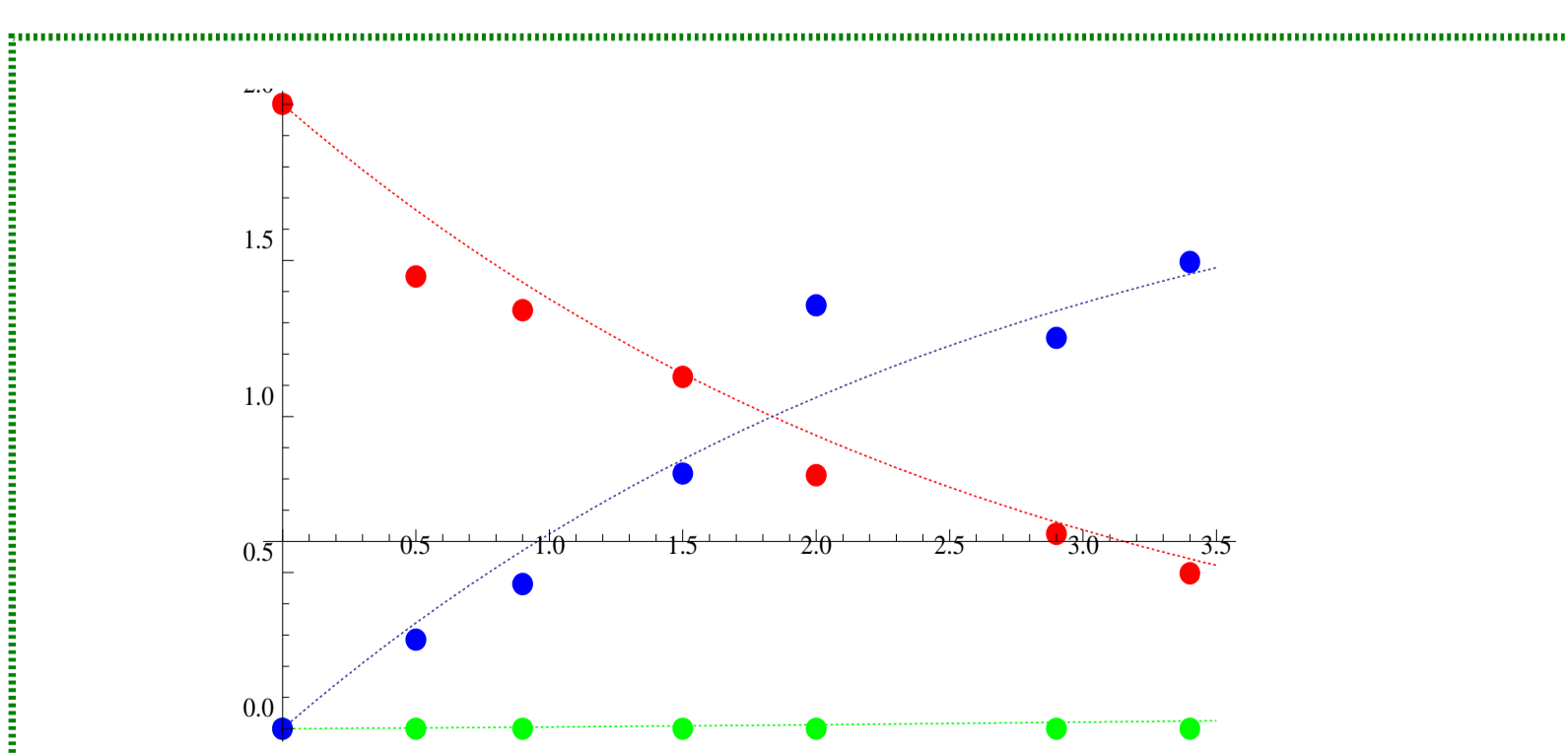
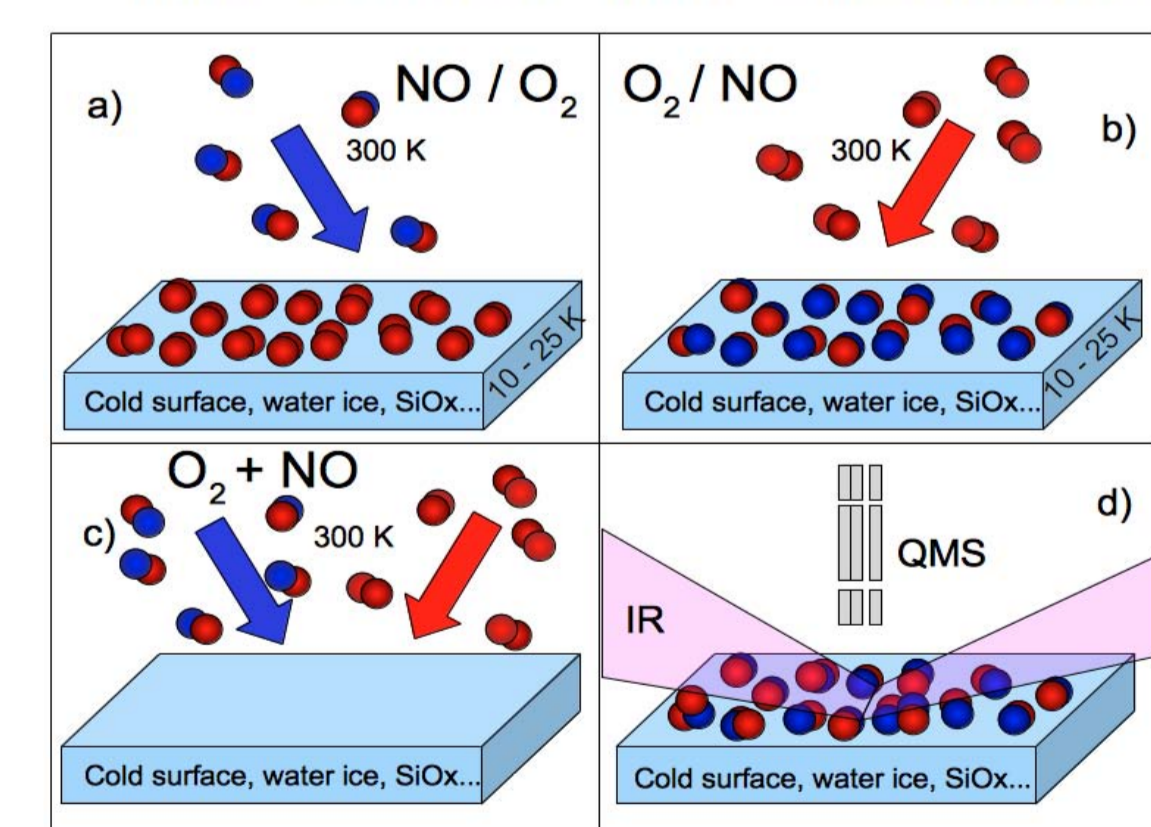
Aims. CO₂ formation is studied via oxidation of CO molecules on cold surfaces under conditions close to those encountered in quiescent molecular clouds.

Methods. Carbon monoxide and oxygen atoms are coproduced using two differentially pumped beam lines on two different surfaces (amorphous water ice or oxidized graphite) held at given temperatures between 10 and 60 K. The products are probed via mass spectrometry by using the temperature-programmed desorption technique.

Results. We show that the reaction CO+O can form carbon dioxide in solid phase with an efficiency that depends on the temperature of the surface. The activation barrier for the reaction, based on modelling results, is estimated to be in the range of 780–875 Kcal. Our model also allows us to distinguish the mechanisms (Eley-Rideal or Langmuir-Hinshelwood) at play in different temperature regimes. Our results suggest that competition between CO₂ formation via CO+O and other surface reactions of O is a key factor in the yields of CO₂ obtained experimentally.

Conclusions. CO₂ can be formed by the CO+O reaction on cold surfaces via processes that mimic carbon dioxide formation in the interstellar medium. Astrophysically, the presence of CO₂ in quiescent molecular clouds could be explained by the reaction CO + O occurring on interstellar dust grains.

Key words. ISM – Interstellar grains – Oxygen atoms – Carbon dioxide – Surface temperature



Conclusions

Grâce à ce modèle nous pouvons mieux comprendre les expériences. En particulier nous sommes capable de mieux comprendre les processus qui se passent sur la surface, déduire à partir de données expérimentales les énergies d'activation pour les réactions et aussi celles de diffusion. Les mécanismes de formation des molécules (ER ou LH) peuvent être distinguer dans chaque cas.

Rejoignez nous

<http://www.u-cergy.fr/fr/laboratoires/labo-lerma-lamap.html>

Ou sur Facebook

<https://www.facebook.com/pages/LERMA-Cergy/136091676532069?ref=ts>

REFERENCES

- Katz et al, ApJ, 522, 305 (1999)
- Minissale et al, PRL, 111, 053201 (2013)
- Minissale et al, CPL, 565, 52 (2013)
- Minissale et al, A&A (2013)
- Minissale et al, submitted to JCP

