

平成 21 年 5 月 20 日現在

研究種目：基盤研究(A)  
 研究期間：2007年～2008年  
 課題番号：19204052  
 研究課題名(和文) 浮遊させたハイパークールド・メルトからのコンドリュール形成  
 研究課題名(英文) Chondrule Formation from A Levitated Hypercooled Melt Droplet

## 研究代表者

塚本 勝男(TSUKAMTO KATSUO)  
 東北大学・大学院理学研究科・教授  
 研究者番号：60125614

## 研究成果の概要：

コンドリュールメルトは徐冷状態で数日～数ヶ月で結晶化すると考えられていた。これに対し、新開発のメルト浮遊実験では、特有のコンドリュール組織の形成には数百度の超過冷却状態が必要で、その結果、数秒の短時間で結晶化が完了しなければならないことを明らかにした。この結果は、天文理論で発展している衝撃波加熱によるコンドリュール形成を強く支持する。同時に天然に近い惑星間塵も作られる環境が実現しうる。

## 交付額

(金額単位：円)

	直接経費	間接経費	合計
2007年度	27,600,000	8,280,000	35,880,000
2008年度	6,900,000	2,070,000	8,970,000
年度			
年度			
年度			
総計	34,500,000	10,350,000	44,850,000

## 研究分野：数物系科学

科研費の分科・細目：地球惑星科学・岩石・鉱物・鉱床学

キーワード：惑星起源・進化，結晶成長，宇宙科学，その場観察，干渉計

## 1. 研究開始当初の背景

コンドリュールが19世紀後半に発見され1世紀以上経過したが、最近の20年で始原隕石の研究は大きく進展した。その結果、ほとんどの種類の始原隕石において主要な構成物質であるコンドリュールが、隕石ごとに大きさ、組織、鉱物組み合わせや同位体比が異なることが判明した。このことは、太陽系形成期の原始太陽系星雲に普遍的に存在していたコンドリュールが、さまざまな前駆物質から多様な物理条件で形成されたことを強く示唆する。したがって、コンドリュールの形成条件を再現実験により絞込むことにより、

太陽系の物質進化を理解するのは惑星科学の第一級の課題である。しかしながら、これまでのコンドリュールメルトの結晶化実験では、結晶化過程の観察やそれに基づいた形成条件の決定、及び、結晶成長速度の正確な測定はなされていない。また、コンドリュール形成時の浮遊環境をも再現していないため、物理的な結晶成長モデルで検証に耐えうるコンドリュールの形成条件を導いた研究はなかった。しかしながら、このように宇宙空間を模擬していない従来の結晶化実験に基づいて得られていた「コンドリュール形成には数時間から数ヶ月必要」という形成条件が

通説であった。

## 2. 研究の目的

超過冷却(数100-1000 Kの過冷却)状態のコンドリュールメルトからのコンドリュール形成速度を、結晶の核形成速度、メルトの冷却速度、コスミックダストとの衝突頻度、結晶組織との関係から明らかにし、原始太陽系での結晶物質の形成環境を物理的に明らかにする。

再現実験でのコンドリュールメルト球内部の結晶化プロセスを温度分布との関連で求めるために、3次元シュリーレン装置を開発し、それにより結晶化過程を“その場”観察する。これにより、メルト近傍での熱、物質の収支を明らかにでき正しいモデル化が可能となる。

## 3. 研究の方法

### (1)コンドリュール再現実験

新規作製したガスジェット浮遊装置により、mmサイズの珪酸塩ダスト試料を浮かせ、CO<sub>2</sub>レーザーによる加熱によりダスト試料を加熱・溶融させて急冷させることで、宇宙空間(浮遊・非接触環境)における溶融ダスト結晶化実験を行なう。また、実験によって得られた凝固組織と天然のコンドリュールとの比較を行なう。次年度は浮遊しているメルト球内での核形成を3次元的に微細な屈折率変化としてとらえる3次元シュリーレン、3次元干渉計を開発して使用する予定。

### (2)珪酸塩蒸気からの固体物質凝縮実験

珪酸塩ダスト試料をCO<sub>2</sub>レーザー、もしくはマイクロ赤外集光炉によって加熱させて蒸気を生成、その急冷に伴う固体物質凝縮実験を行なう。また、凝縮物(μmサイズの微結晶、非晶質ダスト)の形態、サイズ、結晶構造、化学組成を観察し、隕石に含まれる試料との比較を行なう。

## 4. 研究成果

### (1)浮遊実験によるコンドリュールのガラス/結晶化条件の決定

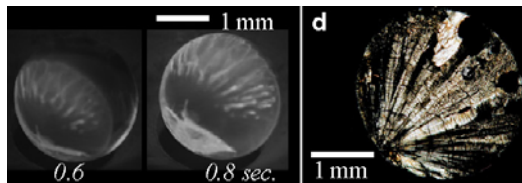


図1 成長中のEnコンドリュール(左)、と放射状組織(右、薄片偏光)。

これまでコンドリュールの結晶化実験は金属線などのホルダーを使って行われてきたが、実際の宇宙空間でのコンドリュール結晶化は非接触浮遊環境である。そこで、コンドリュールメルトを空間に浮遊させ、非接触状態での結晶化を世界に先駆けて開始した(図1)。実験はガスジ

ェット浮遊法によって行った。非接触状態のため、不均質核形成が抑制され、1000 K以上の超過冷却状態が容易に得られるが、一方、結晶の核形成は非常に困難になる(図2)。これにより非晶質のフォルステライト(Mg<sub>2</sub>SiO<sub>4</sub>)とエンスタタイト(MgSiO<sub>3</sub>)を得ることに成功し、ガラス/結晶化、図3、のための臨界温度(図4)と冷却速度を求

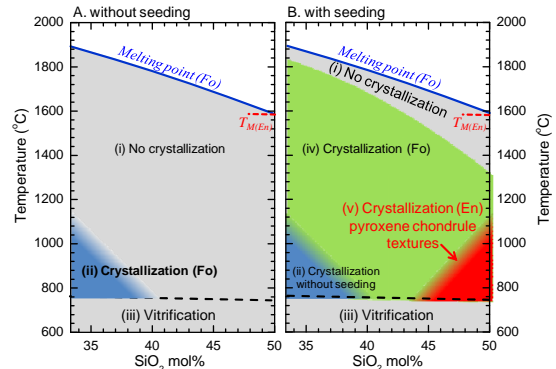


図2 超過冷却でのみ結晶化。左は種結晶無し、右は種結晶あり。

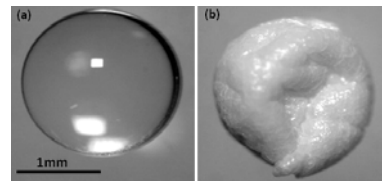


図3 Enガラス(左)を加熱して結晶化(右)。

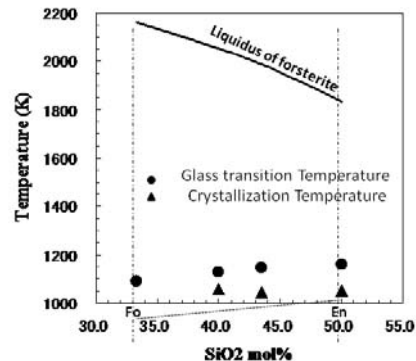


図4 ガラス化温度と結晶化温度。

めた。エンスタタイトに着目すると、従来法である非浮遊法では1000 K/sという極めて速い冷却速度においてもメルトは結晶化し得るが、浮遊法の場合は0.1 K/sという遅い冷却速度でも結晶化せずにガラス化した。これは、接触部による結晶化の促進の影響が無視できないことを意味する。従来のコンドリュールメルト結晶化実験では、コンドリュールが形成する際の冷却速度の上限値はおおよそ1 K/sであると考えられてきた。しかし、この冷却速度では、宇宙空間で完全溶融したダストは自発的に結晶化しない。これらの結果より、コンドリュールメルト結晶化時には、宇

宙塵との衝突が結晶化を引き起こす重要な役割を果たしたことが結論された。

(2) 結晶/メルト界面エネルギーと拡散の活性化エネルギーの測定法の提案

実験室での実験のタイムスケールはせいぜい1時間程度のオーダーであるが、惑星科学においては非常に長いタイムスケールでの議論が求められることも多い。そこで、得られた実験結果から物性値を求め、結晶化条件を推測するというシミュレーションを行った。コンドリュールメルトを浮遊状態で急冷させると、数100 Kという大きな過冷却状態になって急速に結晶化し、潜熱の解放によって温度が急上昇する。我々は、メルト内部の結晶化過程、及び、潜熱解放過程をモデル化することで、浮遊メルト結晶化の際の温度変化を定量的に導出することに初めて成功した。我々のモデルを用いて実験データをフィッティングすることで、結晶/メルト界面エネルギー  $\sigma$

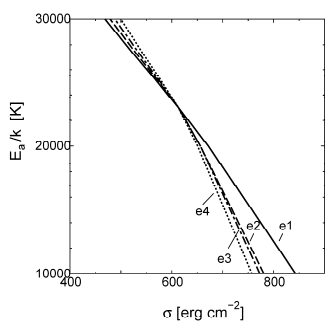


図5 界面エネルギーと活性化エネルギーの独立した新しい測定。

と拡散の活性化エネルギー  $E_a$  を、それぞれ独立に求めることが可能である(図5)。これにより、フォルステライト( $Mg_2SiO_4$ )メルトの場合に、 $\sigma = 613 \pm 30 \text{ erg cm}^{-2}$ 、 $E_a/k_B = (2.3 \pm 0.2) \times 10^4 \text{ K}$ を得た( $k_B$ はボルツマン定数)。この両者を独立に決定できる本手法は、コンドリュールメルトのみならず、様々な物質の物性値を精度良く求める手法として今後の応用が期待できる。

(3)コンドリュールメルトの結晶化“その場”観察

従来、コンドリュールメルト結晶化の“その場”観察は、メルト表面のみに対して行なわれていた。これは、結晶化が起こる温度での熱放射が可視光の波長でも十分なエネルギーを持っているため、照明を使わずに観察していたからである。今回は、さらに高分解能を得るために、自発光よりもより短い波長の光を照明光として使用した。また球内部の光の屈曲を補正する特別な光学系を組むことで、高温メルト内部の結晶化の様子を二次元の投影図として高速度測定できる高解像度シ

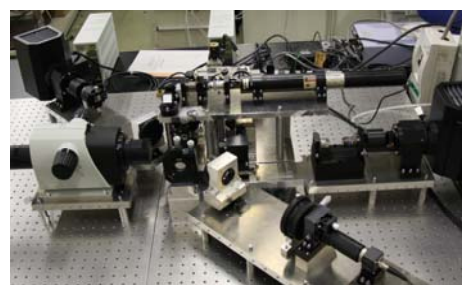


図6 新しく作製した3次元シュリーレン“その場”観察装置。

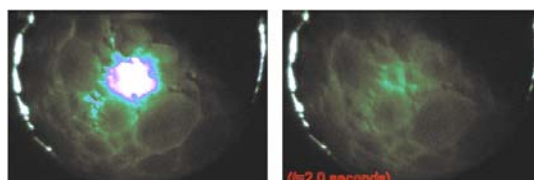


図7 コンドリュールメルト球内の温度勾配。六角状のセル構造が見える。これがポルフィリティック組織になる。

リーレン“その場”観察装置の作製に成功した(図6)。この装置により、メルト内部での結晶成長化や、対流などを詳しく可視化できるようになった。この多方向の二次元画像(図7)を解析することで、メルト内部の屈折率の三次元再構築画像が得られ、メルト内部の温度や濃度の三次元分布を得ることができる。これは、コンドリュール核形成や凝固組織の形成過程の解明に繋がるだろう。その準備として、水溶性結晶成長過程3次元構築法を完成させた(図8)。

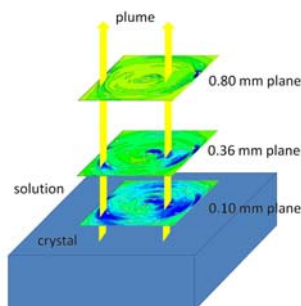


図8 シュリーレン像の3次元再構築。

(4)コンドリュールメルト結晶化のフェーズフィールド・シミュレーション

コンドリュールメルト結晶化における潜熱の影響を、フェーズフィールド法に基づいた数値シミュレーションを用いて定量的に調べた。フォルステライト( $Mg_2SiO_4$ )メルトの場合、メルト全体の結晶化はわずか0.1秒程度で完了する。その際に発生する潜熱によって、メルト内部には数100 Kもの温度不均一性が生じる。メルト表面が結晶化すると表面から内部に向かって急激な温度勾配が生じ、結晶/メルト界面が形態不安定を起

して多数の突起を形成する。この結晶化パターンは、コンドリュールに見られる barred-olivine 凝固組織の特徴と類似しており(図9)、結晶化潜熱の解放がコンドリュール凝固組織形成において重要な役割を果たしていることが明らかとなった。

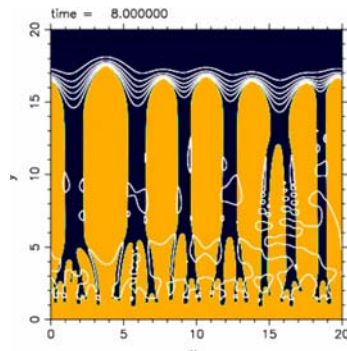


図 9 フェーズフィールド法によるバー構造のシミュレーション。

#### 5. 主な発表論文等

(研究代表者、研究分担者及び連携研究者には下線)

[雑誌論文] (計 23 件)

1. Uesugi M., Sekiya M., and Nakamura T., Kinetic stability of a melted iron globule during chondrule formation I. Non-rotating model. *Meteoritics and Planetary Sciences*, 43, 717-730, 2009, 査読あり.
2. Maruyama, M., Tsukamoto, K., Sazaki, G., Nishimura, Y. & Vekilov, P. G., Chiral and achiral mechanisms of regulation of calcite crystallization, *Crystal Growth & Design*, 9, 127-135, 2009. 査読あり
3. Hitoshi Miura, Taishi Nakamoto, and Masao Doi, Origin of three-dimensional shapes of chondrules. I: Hydrodynamics simulations of rotating droplet exposed to high-velocity rarefied gas flow. *ICARUS*, 197, 269-281, 2008. 査読あり
4. A.E.S. Van Driessche, F. Otalora, G. Sazaki, M. Sleutel, K. Tsukamoto, J.A. Gavira, "Comparison of different experimental techniques for the measurement of crystal growth kinetics", *Crystal Growth & Design*, 8, 4316-4323, 2008. 査読あり
5. Yada T., Frank J. Stadermann F. J., Floss C., Zinner E., Nakamura T., Noguchi T., and Lea A. S., Stardust in Antarctic Micrometeorites. *Meteoritics and Planetary Sciences*. 43, 1287-1298, 2008, 査読あり.
6. Nakato A., Nakamura T., Kitajima F., and Noguchi T., Evaluation of dehydration mechanism during heating of hydrous asteroids based on mineralogical and chemical analysis of naturally and experimentally heated CM chondrites. *Earth, Planets and Space*, 60, 855-864, 2008, 査読あり.
7. Suzuki A., Yamanoi Y., Nakamura T. and Nakashima S., Micro-spectroscopic characterization of organic and hydrous components in weathered Antarctic micrometeorites. *Earth, Planets and Space*, accepted, 2008, 査読あり.
8. Hidekazu Kobatake, Katsuo Tsukamoto, Jun Nozawa, Ken Nagashima, Hisao Satoh, Peter Dold, Crystallization of cosmic dust from highly supersaturated silicate vapor in a rapidly cooled environment. *Icarus*, Volume 198, Issue 1, 208-217, 2008, 査読あり.
9. K.K. Tanaka, T. Yamamoto, K. Nagashima, K. Tsukamoto, A new method of evaluation of melt/crystal interfacial energy and activation energy of diffusion. *Journal of Crystal Growth*, 310, 1281-1286, 2008, 査読あり.
10. K. Nagashima, Y. Moriuchi, K. Tsukamoto, K.K. Tanaka, H. Kobatake, Critical cooling rates for glass formation in levitated  $Mg_2SiO_4$ - $MgSiO_3$  chondrule melts. *Journal of Mineralogical and Petrological Science*, 108, 204-208, 2008, 査読あり.
11. 丸山美帆子, 塚本勝男, キラリティがつくる惑星環境. *日本結晶成長学会誌*, Vol.35, No.1, 17-23, 2008, 査読なし.
12. H. Satoh, Y. Nishimura, K. Tsukamoto, A. Ueda, Koichi Katoh, and Shinzo Ueta, In-situ measurement of dissolution of anorthite in Na-Cl-OH solutions at 22°C using phase-shift interferometry. *American Mineralogist*, Vol.92, 503-509, 2007. 査読あり
13. H. Miura, and T. Nakamoto, Shock-Wave Heating Model for Chondrule Formation: Hydrodynamic Simulation of Molten Droplets exposed to Gas Flows. *Icarus*, 188, 246-265, 2007. 査読あり
14. A.E.S. Van Driessche, G. Sazaki, F. Otalora, F.M. Gonzalez-Rico, P. Dold, K. Tsukamoto, K. Nakajima, Direct and Noninvasive observation of Two-dimensional Nucleation Behavior of Protein Crystals by Advanced Optical Microscopy. *Crystal Growth & Design*, Vol.7, No.10, 1980-1987, 2007. 査読あり
15. M. C. R. Heijna, P. W. G. Poodt, K. Tsukamoto, W. J. de Grip, P. C. M. Christianen, J. C. Maan, J. L. A. Hendrix, W. J. P. van Enkevort, E. Vlieg, Magnetically controlled gravity for protein crystal growth. *APPLIED PHYSICS LETTERS*, 90, 264105, 2007. 査読あり

16. M. Sorai, T. Oshumi, M. Ishikawa, K. Tsukamoto, Feldspar Dissolution rates measured using phase-shift interferometry: Implications to CO<sub>2</sub> underground sequestration. Applied Geochemistry, 22, 2795-2809, 2007. 査読あり

[学会発表](計 52 件)

1. E. Yokoyama, K. Tsukamoto, K. Nagashima, H. Miura, T. Irisawa, Formation of solidification texture in a melt droplet during rapid cooling using a three dimensional phase field model, The 2nd "Interface Mineralogy", Miyagi, Japan, March 9-12, 2009.
2. Y. Inatomi, J. Yamada, T. Maki, K. Nagashima, A. Srivastava, K. Tsukamoto, In situ observation for crystallization of undercooled silicate droplet, The 2nd "Interface Mineralogy", Miyagi, Japan, March 9-12, 2009.
3. Yasuda, S., Nakamoto, T., Collision Condition for Compound Chondrule Formation Planet Formation and Evolution, The Solar System and Extrasolar Planets, Tuebingen, Germany, March 2 - 6, 2009,
4. Doi, M., Nakamoto, T., Origin of Cavities in Cosmic Spherule Exoplanets and Disks, Their Formation and Diversity, Hawaii, USA, March 9 - 12, 2009,
5. 三浦均, 横山悦郎, 塚本勝男, 長嶋剣, 数値計算を用いたコンドリュール凝固組織の再現: リムとバーの同時形成に向けて. 『結晶成長の数理』第三回研究会 - パターン形成と構造の制御 -, 東京, 12月26-27日, 2008.
6. J. Yamada, K. Tsukamoto, H. Kobatake, H. Miura, K. Nagashima, Condensation experiment of enstatite whiskers from highly supersaturated silicate vapor. The 1st International Workshop "Crystallization in The Early Solar Nebula 4.6 Billion Years Ago", Miyagi, Japan, November 19-20, 2008.
7. J. Nozawa, K. Tsukamoto, H. Kobatake, J. Yamada, H. Satoh, K. Nagashima, Formation mechanism of matrix fine particles revealed by surface nanotopography. The 1st International Workshop "Crystallization in The Early Solar Nebula 4.6 Billion Years Ago", Miyagi, Japan, November 19-20, 2008.
8. 三浦均, 横山悦郎, 塚本勝男, 長嶋剣, 宇宙空間での結晶成長: 数値計算に基づく棒状凝固組織の再現. 第23回日本マイクログラビティ応用学会学術講演会, 京都, 11月25-26日, 2008.
9. 三浦均, 横山悦郎, 塚本勝男, 長嶋剣, フェーズフィールド法によるコンドリュール棒状凝固組織の再現. 第38回結晶成長国内会議, 宮城, 11月4-6日, 2008.
10. 山田淳也, 塚本勝男, 小島秀和, 三浦均, 長嶋剣, 隕石中に見られる針状エンスタタイト結晶の実験的再現. 第38回結晶成長国内会議, 宮城, 11月4-6日, 2008.
11. 三浦均, 横山悦郎, 塚本勝男, 長嶋剣, フェーズフィールド法によるコンドリュール棒状凝固組織の再現. 第38回結晶成長国内会議, 宮城, 11月4-6日, 2008.
12. 田中今日子, 山本哲生, 長嶋剣, 塚本勝男, エンスタタイトの液体-結晶間の界面エネルギーの導出: エンスタタイトコンドリュールの結晶化過程. 日本惑星科学会2008年秋季講演会, 福岡, 11月1-3日, 2008.
13. 三浦均, 横山悦郎, 塚本勝男, 長嶋剣, コンドリュールに見られる棒状凝固組織の再現: フェーズフィールド法に基づく数値実験. 日本惑星科学会2008年秋季講演会, 福岡, 11月1-3日, 2008.
14. 山田淳也, 塚本勝男, 小島秀和, 三浦均, 長嶋剣, anhydrous IDPsに存在する Enstatite Whiskersの形成環境. 日本惑星科学会2008年秋季講演会, 福岡, 11月1-3日, 2008.
15. H. Miura, E. Yokoyama, K. Tsukamoto, K. Nagashima, Formation of barred olivine texture 4.6 billion years ago. JANE2008, Hokkaido, Japan, October 20-23, 2008.
16. H. Miura, E. Yokoyama, K. Tsukamoto, K. Nagashima, Formation of barred olivine texture 4.6 billion years ago. XXI Congress and General Assembly of the International Union of Crystallography, Osaka, Japan, August 23-31, 2008.
17. H. Miura, E. Yokoyama, K. Tsukamoto, K. Nagashima, Dynamic crystallization simulation of barred olivine textures. Shimane, Japan, July 28-August 1, 2008.
18. Doi, M., Nakamoto, T., Nakamura, T., Yamauchi, Y. Three-Dimensional Shapes of Cosmic Spherules: Deformation of Dust Particles Molten in the Earth Atmosphere. 71st Annual Meeting of the Meteoritical Society, Shimane, Japan July 28-August 1, 2008.
19. Yasuda, S., Nakamoto, T. Conditions for Compound Chondrule Formation. 71st Annual Meeting of the Meteoritical Society, Shimane, Japan July 28-August 1, 2008.
20. J. Yamada, K. Tsukamoto, H. Kobatake, H. Miura, K. Nagashima, Crystallization of enstatite whiskers from highly supersaturated silicate vapor. Workshop on silicate dust in protostars, Tokyo, Japan,

- July 25-26, 2008.
21. 野澤純, 塚本勝男, 長嶋剣, 三浦均, Surface nano-topography of matrix olivines in the Allende carbonaceous chondrite: Evidence of shock-wave heating? 日本地球惑星科学連合 2008 年大会, P137-006, 千葉, 5 月 25-30 日, 2008.
  22. 長嶋剣, 森内善伸, 塚本勝男, 浮遊メルト結晶化実験によるコンドリュール形成環境の検討. 科研費特定「系外惑星」ダスト班 第四回研究会, 北海道, 1 月 10-12 日, 2008.
  23. 山田淳也, 長嶋剣, 塚本勝男, フォルステライトの凝縮係数測定. 第 37 回結晶成長国内会議, 06PS23, 北海道, 11 月 5-7 日, 2007.
  24. 長嶋剣, 森内善伸, 塚本勝男, 田中今日子, 山本哲夫, 横山悦郎, 微粒子付着による浮遊した珪酸塩メルトの核形成制御. 第 37 回結晶成長国内会議, 06aC06, 北海道, 11 月 5-7 日, 2007.
  25. 田中今日子, 山本哲夫, 長嶋剣, 塚本勝男, 浮遊法による液体-結晶間の界面エネルギーと拡散の活性化エネルギーの導出. 第 37 回結晶成長国内会議, 07aC07, 北海道, 11 月 5-7 日, 2007.
  26. 長嶋剣, 塚本勝男, 46 億年昔のメルト成長. 第 32 回結晶成長討論会, 北海道, 11 月 3-4 日, 2007.
  27. K. Nagashima, Y. Moriuchi, K. Tsukamoto, K. K. Tanaka, Reproduction of meteoritic silicate spherules from hypercooled levitated melts. Third International Symposium on Physical Sciences in Space, P-46, Nara, Japan, October 22-26, 2007.
  28. 長嶋剣, 森内善伸, 田中今日子, 塚本勝男, 浮遊したコンドリュールメルトの結晶化その場観察. 日本惑星科学会 2007 年秋季講演会, 319, 高知, 9 月 25-27 日, 2007.
  29. 森内善伸, 長嶋剣, 田中今日子, 塚本勝男, 浮遊したメルトからのアモルファスフォルステライト形成. 日本惑星科学会 2007 年秋季講演会, 318, 高知, 9 月 25-27 日, 2007.

〔図書〕(計 1 件)

1. K. Tsukamoto and P. Dold, Interferometric Techniques for Investigating Growth and Dissolution of Crystals in Solutions, pp. 329-341, in: Perspectives on Inorganic, Organic, And Biological Crystal Growth: From Fundamentals to Applications, ed. A. Skowronski, et al., American Institute of Physics, 2007.

〔産業財産権〕

出願状況 (計 0 件)  
取得状況 (計 0 件)

〔その他〕

・受賞

- (1) 第 37 回結晶成長国内会議講演奨励賞 (2007), 長嶋剣, 森内善伸, 塚本勝男, 田中今日子, 山本哲夫, 横山悦郎, 微粒子付着による浮遊した珪酸塩メルトの核形成制御.
- (2) 第 6 回日本結晶成長学会奨励賞 (2008), 長嶋剣, ガスジェット浮遊法による隕石結晶組織の再現. 2008.

・テレビ報道等

- (1) 2008 年 7 月 29 日 NHK BS-Hi “アイシユタインの眼”
- (2) 2007 年 3 月 15 日 NHK News Watch 9
- (3) 2007 年 1 月 5 日 読売新聞掲載

6. 研究組織

(1) 研究代表者

塚本 勝男(TSUKAMOTO KATSUO)  
東北大学・大学院理学研究科・教授  
研究者番号: 60125614

(2) 研究分担者

なし

(3) 連携研究者

- ・中村 智樹(NAKAMURA TOMOKI)  
九州大学・理学研究科・准教授  
研究者番号: 20260721
- ・中本 泰史(NAKAMOTO TAISHI)  
東京工業大学・理工学研究科・准教授  
研究者番号: 60261757
- ・小畠 和秀(KOBATAKE HIDEKAZU)  
東北大学・多元物質科学研究所・助教  
研究者番号: 10400425
- ・長嶋 剣(NAGASHIMA KEN)  
大阪大学・工学研究科・研究員  
研究者番号: 60436079
- ・横山 悦郎(YOKOYAMA ETSURO)  
学習院大学・計算機センター・教授  
研究者番号: 40212302
- ・三浦 均(MIURA HITOSHI)  
東北大学・理学研究科・助教  
研究者番号: 50507910