

科学研究費助成事業（学術研究助成基金助成金）研究成果報告書

平成25年5月30日現在

機関番号：10101

研究種目：挑戦的萌芽研究

研究期間：2011～2012

課題番号：23654183

研究課題名（和文）

非平衡凝縮プロセスにおける速度論的同位体分別：惑星物質科学への応用

研究課題名（英文）

Kinetic isotopic fractionation during condensation: Application to planetary materials

研究代表者

橘 省吾 (TACHIBANA SHOGO)

北海道大学・大学院理学研究院・准教授

研究者番号：50361564

研究成果の概要（和文）：

初期太陽系円盤において、固体物質は気相からの凝縮でつくられたと考えられている。凝縮時に速度論的同位体分別が起こる可能性があるが、その理解はこれまで不十分である。主要鉱物である鉄、高温で最初に凝縮する鉱物コランダムに注目し、凝縮時の速度論的同位体分別を初めて定量的に求めることをめざし、凝縮実験をおこない、制御された条件で凝縮の速度論パラメータを得るための手法開発に成功した。

研究成果の概要（英文）：

Kinetic isotopic fractionation might have occurred during condensation of minerals in the early solar system, but no quantitative measurements of isotopic fractionation factor during kinetic condensation of minerals have been done. In order to evaluate the isotopic fractionation factors for condensation of metallic iron and corundum, we developed experimental methods for condensation under controlled protoplanetary disk conditions.

交付決定額

(金額単位：円)

| | 直接経費 | 間接経費 | 合計 |
|-------|-----------|---------|-----------|
| 交付決定額 | 2,700,000 | 810,000 | 3,510,000 |

研究分野：数物系科学

科研費の分科・細目：岩石・鉱物・鉱床学

キーワード：金属鉄 凝縮 同位体分別 コランダム 速度論

1. 研究開始当初の背景

太陽系物質の同位体組成が軽元素を除き、ほぼ均質であるのは、初期太陽系ですべての金属元素が蒸発し、再凝縮したためと考えられる。また、コンドライト中の難揮発性包有物 (CAI) の一部やオリビン集合体は凝縮によって形成され (e.g., MacPherson and Grossman, 1984)、ケイ酸塩融体の急冷物であるコンドリュールにおいても冷却時に揮発性成分の凝縮が起きたと考えられる (e.g., Nagahara et al., 2008)。円盤規模の長い時間スケール、コンドリュール形成の短い時間スケール (数時間～日) といった様々な時間スケールで凝縮が起こり、物質進化を引き起

こしたと考えられるが、凝縮場の物理化学条件も時間変化するため、凝縮による物質進化の議論には、反応速度論的解釈が必要となる。また、速度論的凝縮には同位体分別も伴うと予想される。実際、申請者らがおこなった主要鉱物の非平衡蒸発実験では同位体分別が起こることがわかっている (e.g., Yamada et al., 2006)。しかし、CAI やオリビン集合体、コンドリュールは、平衡条件で形成されたとは限らないにも関わらず、目立った同位体分別が見られない。この事実は、これらの物質の形成条件に関する情報を含むと考えられるが、非平衡凝縮時の同位体分別に関しての我々の理解は極めて不十分である。Uyeda et

al. (1991) によって、Mg ケイ酸塩凝縮時の同位体分別が調べられているが、同位体分別係数は定量的に得られていない。

2. 研究の目的

初期太陽系円盤において、固体物質は気相からの凝縮でつくられたと考えられている。一旦、気相を経ることで、太陽系固体物質にみられる同位体の均質性も説明される。始原隕石コンドライト構成物質のなかには形成に凝縮過程が関与したと考えられる物質が多数存在する。凝縮は初期太陽系での物質進化の鍵となる化学反応である。初期太陽系円盤での様々な時間スケールでの凝縮を理解するためには、凝縮の速度論的理解が必要であるが、ようやく室内実験で理解されつつある状況である。また、凝縮時に速度論的同位体分別が起こる可能性があるが、その理解は不十分である。本研究計画では、主要鉱物である鉄、初期太陽系で最初に凝縮する鉱物コランダムに注目し、凝縮時の速度論的同位体分別を初めて定量的に求めることをめざす。

(1)鉄の凝縮反応における同位体分別係数を求める。ガス源としては、あらかじめ蒸発による同位体分別が定常に達した銀や鉄を用いる。これにより、ガスの同位体組成を一定にすることが可能になる。凝縮実験は基板上でおこない、成長時の同位体分別を調べる。

(2)コランダム凝縮時の酸素の同位体分別係数を求める。アルミニウムをガス源とし、酸素供給源として、同位体組成既知の H_2O ガスを用いる。

3. 研究の方法

金属鉄・コランダム凝縮時の同位体分別係数（鉄・酸素）を凝縮実験で決定する。既存の実験装置に必要な改良を加え、実験を開始する。凝縮物の精密同位体分析をおこない、同位体分別係数を求める。温度やガス圧力・組成の条件を広く変化させて実験をおこない、広範囲の条件に適用可能な同位体分別係数を決定する。

(1)鉄の凝縮実験：アルミナ管底部に金属鉄を入れ、既存の金属抵抗加熱型真空炉中で加熱する（ $\sim 1600\text{K}$ ）。アルミナ管から放出された鉄蒸気は炉内低温部（ $1150\text{--}1350\text{K}$ ）に設置されたコランダム基板上に不均質核形成し、成長する。コランダム基盤がすべて金属鉄に埋めつくされた後には、金属鉄上での成長が起こることになる（Tachibana et al., 2011）。

ガス源として事前に同位体分別が定常状態に達するまで蒸発させた金属鉄を用いる。これによって、鉄蒸気の同位体組成を一定にす

る。凝縮温度は $1150\text{--}1350\text{K}$ とし、初期太陽系円盤で予想される凝縮温度に合わせ、現実的な同位体分別係数を求める。



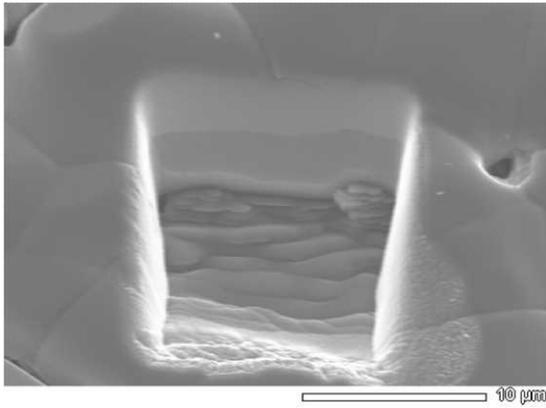
図：金属鉄凝縮実験セッティング。金属抵抗加熱真空炉内部を上から撮影。右側のリング上構造がタングステンメッシュヒーター。左側の金属層はリフレクタでヒーターからの輻射を反射する。金属鉄を入れたアルミナ管は自作のグラファイト台座に設置する。アルミナ管を通して、放出された鉄蒸気は、リフレクタの穴から外に放出され、同様に低温部のリフレクタの穴部に吊された基盤上に凝縮する。右下からヒーター中央に伸びているのは温度制御用熱電対。

(2)イリジウムルツボ底部に入れたアルミナを真空炉内で蒸発させ、ルツボ上部の低温部のコランダム単結晶基盤に成長させる技術を最初に開発し、その後、同位体組成既知の H_2O ガス存在下での成長実験をおこない、同位体分別係数を求める。

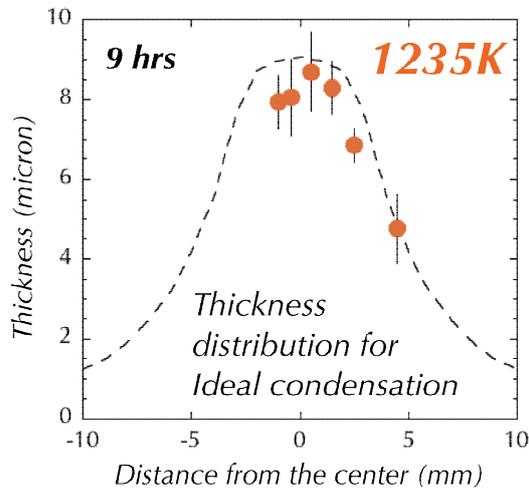
4. 研究成果

初年度は金属鉄凝縮実験の高精度化をはかった。不均一核形成させる基盤の研磨状況などを確認し、その後の分析への利便性を考え、研磨されたコランダム単結晶上へ凝縮させることとした。また、凝縮速度の決定および同位体分析用の試料準備のために集束イオンビーム装置 (FIB) での試料加工試験もおこない、加工技術を開発した。これにより、単一の実験で、速度論パラメータおよび同位体分別係数を過飽和比の関数として求めることが可能となった。

さらに同位体分析のための打合せを専門家とおこない、ICP-MS (誘導結合プラズマ質量分析装置) による高精度分析、SIMS (二次イオン質量分析計) による高空間分解能分析の両者を引き続き検討することとした。コランダムに関しては、研究グループ内で凝縮実験に成功し、速度論パラメータの取得に成功した (瀧川, 2012 博士論文)。

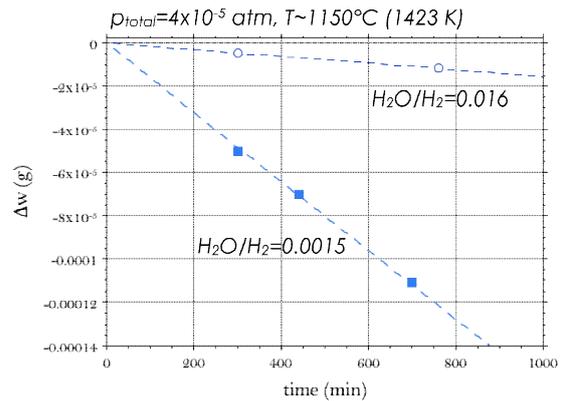


図：集束イオンビーム装置(FIB)で加工した金属鉄凝縮物断面。やや明るく見える上部層が金属鉄層で、暗く見える下部層がコランダム基板。



図：FIB 加工で求めた凝縮層厚み（橙色●）と理想凝縮時に予想される凝縮層厚み（点線）の比較。

最終年度開始時に所属が変わったため、実験装置全体を移設することとなった。移設の結果、装置の真空度が上がらないトラブルが発生し、真空排気装置を交換することになり、研究機関内に実験を終わらせることはできなかった。その後、装置は復旧し、新たに試す基板材料としてのフォルステライト結晶も準備できたため、今後実験を継続することが可能な状態となった。実験装置修理の期間を利用して凝縮時の酸素同位体分別を調べるための同位体濃縮水蒸気導入ラインの製作を他の装置を使って実施した。作成した水蒸気導入ラインを用いて、フォルステライトの水蒸気中蒸発実験をおこない、実験系に宇宙条件を模擬した水素-水蒸気ガスの導入が可能になったことを確認できた。



図：制御した H₂O-H₂ 条件でのフォルステライト蒸発量の時間変化。H₂O に富む環境で蒸発が抑制されている。

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 1 件)

① Takigawa A. and Tachibana S. (2012) Crystallographically anisotropic shape of forsterite: New probe for evaluating dust formation history from infrared spectroscopy. *Astrophysical Journal* 750, 149-164. [査読有]

[学会発表] (計 7 件)

① Tachibana S. and Takigawa A. (2013) Condensation of magnesium silicates in the system of Mg₂SiO₄-H₂O-H₂: Development of low-pressure infrared furnace. 44th Lunar and Planetary Science Conference. 2013/3/21, The Woodlands Waterway Marriott Hotel and Convention Center, Texas, USA.

② Tachibana S. (2012) Dust condensation experiments at controlled low-pressure conditions. 5th meeting on Cosmic Dust (招待講演). 2012/8/6, 神戸大学.

③ Takigawa A., Tachibana S., Nagahara H., and Ozawa K. (2012) Anisotropic evaporation and condensation of circumstellar corundum. 43rd Lunar and Planetary Science Conference. 2012/3/22, The Woodlands Waterway Marriott Hotel and Convention Center, Texas, USA.

④ Tachibana S. (2012) Nucleation and growth of iron sulfide on metallic iron particles under low-pressure protoplanetary disk conditions. 43rd

Lunar and Planetary Science Conference.
2012/3/22, The Woodlands Waterway
Marriott Hotel and Convention Center,
Texas, USA.

⑤ Tachibana S., Takigawa A., Nagahara H.
and Ozawa K. (2011) Condensation and
Gas-Solid Experiments of Minerals in
Protoplanetary Disk Conditions:
Implications for Formation of Chondritic
Components. Formation of the first solids
in the early solar system (招待講演).
2011/11/7, Kauai, Hawaii, USA.

⑥ 橘省吾, 永原裕子, 小澤一仁, 瀧川晶
(2011) 原始惑星系円盤条件での金属鉄・フ
ォルステライトの凝縮速度論. 2011年度日本
地球化学会年会. 2011/9/16, 北海道大学.

⑦ 瀧川晶, 橘省吾, 永原裕子, 小澤一仁
(2011) 星周コランダムの異方的凝縮速度の
決定. 日本惑星科学会 2011 年秋季講演会.
2011/10/25, 相模女子大学.

[図書] (計 2 件)

① 瀧川晶, 橘省吾 (2012) 星周・星間ダスト
(「地球と宇宙の化学事典」) 397.

③ 橘省吾 (2012) 原始惑星系円盤条件でのマ
グネシウムケイ酸塩凝縮実験 (「熱技術 30 年
の歩み」) 1-4.

[その他]

ホームページ等

<http://shogotachibana.webnode.jp/>

6. 研究組織

(1) 研究代表者

橘 省吾 (TACHIBANA SHOGO)
北海道大学・大学院理学研究院・准教授
研究者番号：50361564

(2) 研究分担者

なし

(3) 連携研究者

なし