

科学研究費助成事業 研究成果報告書

平成 26 年 6 月 10 日現在

機関番号：11301

研究種目：基盤研究(A)

研究期間：2010～2013

課題番号：22244066

研究課題名(和文) 原始太陽系における始原物質の超急速結晶化

研究課題名(英文) Ultra-high Speed Crystallization in the Primitive Solar System

研究代表者

塚本 勝男 (TSUKAMOTO, Katsuo)

東北大学・理学(系)研究科(研究院)・客員研究者

研究者番号：60125614

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 34,900,000円、(間接経費) 10,470,000円

研究成果の概要(和文)：原始太陽系と同じ非接触環境を模擬した、コンドリュールメルト液滴からの結晶化の“その場”観察を行なった。その結果、天然の組織を再現するには、これまで考えられていた条件より遥かに大きい超過冷却度(300～1100 K)が必要で、数秒の短時間で完了することが分かった。さらに、過冷却度に応じて多様な凝固組織の出現を確認し、天然隕石に見られる多様性との対応を行った。この結果をもとにすることで、コンドリュール組織形成に関する速度論的な理論モデル化が初めて行えた。

研究成果の概要(英文)：In-situ observations of crystallization from chondrule melts have successfully been conducted using gas jet levitation method. It was found that hypercooling of 300-1100K is needed for the reproduction of various chondrule textures and the crystallization finishes within a few seconds. Based on the experimental data, a new kinetic model could be proposed for the chondrule texture formation.

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：地球物質科学 コンドリュール 結晶成長 惑星科学 その場観察

## 1. 研究開始当初の背景

46億年前にガス星雲であった原始太陽系は、その後、一千万年の間に珪酸塩微粒子の形成、合体、融解、凝固、衝突を経て現在の惑星系の原型ができたと考えられる。しかし、その初期のガス状態からの微粒子の結晶化、その後の融解と凝固、さらに、水や氷による鉱物の変質や有機物との相互作用は、結晶成長現象そのものであるにもかかわらず、結晶化速度、温度変動などのダイナミクスは未知であった。

惑星科学や天文学では、これらの結晶化は数ヶ月から数万年の間にゆっくりおきたと考えられている。しかし、本代表者らは、世界に先駆けて無重力やガス浮遊環境を利用した珪酸塩メルト球の結晶化実験を行った。その結果、地上では数程度の過冷却度で容易に結晶化する珪酸塩メルトでも、浮遊環境では数百以上の極端な超過冷却状態を与えても結晶化が起こらず容易にガラス化してしまう、また、仮に結晶化が起こっても、これまで考えられていた数ヶ月から数年という時間でなく、数秒程度の短時間で完了してしまう、など、これまでの浮遊環境を使わない実験とは大きく異なる結果を出している。しかし、隕石中にはガラスがほとんど見られず結晶が普遍的に存在することを考えると、依然として、天然現象と、実験結果、理論的考察の間には大きな隔りがある。

一方、隕石中の有機物の起源は46億年前とも言われており、これ以外にも、珪酸塩とタンパク質やアミノ酸との相互作用など、太陽系初期にできた多くの結晶には多くの未知な現象が含まれている。

## 2. 研究の目的

原始太陽系星雲に存在した固体粒子(コンドリュール)や固体微粒子(宇宙塵)は、星雲内部で加熱され、周辺領域の高温ガスの冷却に伴い、数時間、もしくはそれ以上の時間をかけてゆっくりと結晶化して形成されたと考えられてきた。その定説に対し、塚本他(1999)は、コンドリュールメルト球を空間に浮遊させる実験をおこない、コ

ンドリュールメルトは高温から高速冷却され、数秒以内に結晶化しなくてはならないという結論を得た。さらに、小畠他(2005, 2008)では、宇宙塵の形成時にも急加熱・急冷環境が必要であることを実験的に確かめた。

星雲内部における急冷環境をもたらした原因として、衝撃波通過による急加熱・急冷が最有力であり、幾つかの証拠が見つかってきている。すなわち、コンドリュールの形成と宇宙塵の形成は一連の現象としてとらえられ、両者が衝撃波による瞬間加熱・冷却の結果形成されたという統一的な考えで理解できる(三浦ら(2008))。この考えを押し進めるために、高速結晶化実験を通して非平衡環境における結晶化過程を理解し、原始太陽系におけるコンドリュールや宇宙塵の形成環境を明らかにすることを本研究の目的とする。これにより、原始太陽系での始原物質の形成速度、熱的な変動、元素分配のメカニズムまでが、従来の分析的な方法とは全く異なり理論と実験の両面から明らかにできよう。

## 3. 研究の方法

[浮遊コンドリュールメルト球での高速結晶化の”その場”観察]

ガスジェットでの浮遊実験を目指す。浮遊しているコンドリュールメルト液滴の表面と内部での結晶化現象は非常に高速である。そのために、高速カメラや高解像度カメラでの、液滴表面と内部の”その場”観察を初めて行う。この方法により核形成速度の測定ができるだけでなく、結晶化、特に、結晶が発生する場所と高速なメルト対流との関連を明らかにできる。

[フェーズフィールド法による理論的な凝固組織の再現]

コンドリュールメルト凝固の数値シミュレーションにフェーズフィールド法を初めて適用し、多様な凝固組織を再現する。完全溶融メルトからの結晶化を模擬し、リム組織とパー組織の同時再現条件を求め、放射状組織との形成条件の違いを明らかにし、多様なコンドリュール組織の冷却速

度依存性などを明らかにする。これにより理論・実験両面からコンドリュールメルト結晶化過程を解明する。

【原始太陽系における結晶質物質発生と進化の総合的理解】

上記の各項目で明らかになった個々の物質形成メカニズムの研究を踏まえて、原始太陽系での結晶質物質の発生と進化について総合的に理解する。衝撃波加熱モデルに基づいて固体ダスト・ダスト蒸気の瞬間加熱・冷却の熱的過程を明らかにし、結晶質物質の形成環境・時期・惑星形成との関係を明らかにする。

#### 4. 研究成果

【研究課題 1】ガスジェット浮遊法を用いた非接触コンドリュールメルト結晶化実験と”その場”観察

石質隕石の主要な構成鉱物であるコンドリュール(mm サイズの球状の珪酸塩結晶)の結晶化過程を調べるため、ガスジェット浮遊法を用いてコンドリュールメルトの結晶化実験を行ない、結晶化する様子を高速カメラなどを用いて”その場”観察を行なった。その結果、従来、平衡温度近くで数時間から数年かけてゆっくり結晶化していたとされるコンドリュールが、実は、数百度の超過冷却状態で数秒という極めて短い時間で結晶化するという新しい見解を示した、図1。

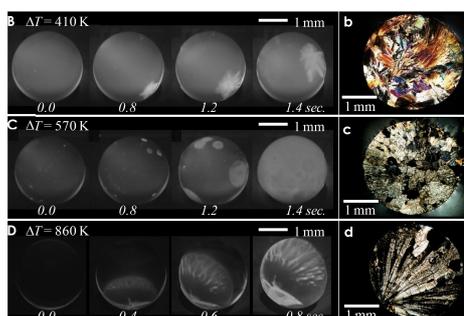


図 1 超過冷却状態での結晶化

コンドリュールは、46 億年昔の初期太陽系において、溶融した mm サイズの珪酸塩ダストが結晶化したものだと考えられている。宇宙空間という低温・希薄な環境において、融点が 1800 K にも及ぶ珪酸塩を如何にして融解し得たのかについては、その発見から 100 年以上経過した現在

においても結論を得ていない。コンドリュール形成の条件を調べるために、コンドリュール組成のサンプルを電気炉などで加熱して溶融し、最高到達温度やメルトの冷却速度を制御したコンドリュール結晶化実験を行ない、その結晶化条件について多くの研究がなされてきた。しかしながら、実験室ではメルトが地面に落下しないため、ワイヤーなどで固定する必要がある。一方、宇宙空間においては、メルトは浮遊した状態であり、外部と接触を持たない。このような非接触状態でのコンドリュールメルト結晶化実験は、宇宙空間におけるコンドリュール結晶化を模擬するためには重要であるが、これまでは定量的な実験が行なわれていなかった。

本研究課題では、ガスジェット浮遊法を用いて、コンドリュールメルトを浮遊・非接触状態で結晶化させる実験を行なった。この実験のメリットはふたつ：(a) ワイヤーなどの接触部がないため、不均質核形成の影響を排除できる、(b) 結晶化の”その場”観察が可能であり、他の温度測定法などと組み合わせることにより、結晶化過程とメルト温度の関連を直接見ることができる、という点である。本研究課題においては、コンドリュールの主要な構成要素であるフォルステライト( $Mg_2SiO_4$ )とエンスタタイト( $MgSiO_3$ )、及び、それらの中間組成(Mg/Si 比)の試料を用いた。実験の結果、完全溶融したメルトは、浮遊状態では結晶化が著しく困難であることが明らかとなった。フォルステライトメルトでは、融点より 1000 K 近くも過冷却して初めて結晶化が生じた。結晶化は 0.1 1 秒という極めて短い時間で完了し、結晶化潜熱の開放(リカレスセンス)による閃光が観察された。一方、エンスタタイトメルトでは、どれほど過冷却しても結晶化は生じなかった。そこで、ミクロンサイズの微粒子を付着させて結晶化を促したところ、数秒程度で結晶化が進行した。さらに、結晶化時の過冷却度に応じて、天然のコンドリュールに見られる多様な凝固組織が形成されることが分かった。

この研究は、結晶成長分野では非常に良く知

られている物理過程をコンドリュールメルト結晶化に適用し、従来とは全く異なるコンドリュール形成条件を示した、という点で画期的である。結晶成長学的観点から、コンドリュールメルト結晶化の実験的研究で最も重要なことが、浮遊・非接触法による結晶化実験と、結晶化”その場”観察に基づく結晶化ダイナミクスの詳細観察であることにいち早く注目したという先見性は高く評価できる。また、従来は「コンドリュールメルトの結晶化は数時間程度要する」という大前提に基づいたコンドリュール形成シナリオが Nature などの雑誌にも紹介されている状況であることを考慮すると、数秒という極めて短い時間で結晶化するという実験事実は、コンドリュール形成という研究分野において極めて大きなインパクトを与える成果である。

【研究課題 2】 フェーズフィールド法を用いたコンドリュールメルト結晶化の数値シミュレーション

本研究課題では、石質隕石の主要な構成鉱物であるコンドリュール(mmサイズの球状の珪酸塩結晶)の結晶化過程を調べるため、結晶化過程を扱える数理モデルのひとつであるフェーズフィールド法を用いた数値シミュレーションを実施した。その結果、天然のコンドリュールに見られる barred olivine (BO)凝固組織形成について、結晶成長理論に基づいた新しい解釈を示した。

コンドリュールは、46億年昔の初期太陽系において、熔融した mm サイズの珪酸塩メルトが結晶化したものだと考えられている。多様な化学組成と多様な凝固組織を持っており、凝固組織再現条件を調べるために数多くのコンドリュールメルト結晶化実験が行なわれてきた。しかしながら、従来の結晶化実験においては、メルトが結晶化する様子を”その場”観察していなかったため、どのように凝固組織が形成されたのかは調べることができない。研究代表者らは研究課題 1 において、高速度カメラを用いてメルト結晶化の様子を捉えることに成功したが、あくまでメルト表面に限った情報である。

本研究課題では、フェーズフィールド法を用いて数値計算を行なった。その結果、過冷却度が 400-500 K 程度より小さい場合においては、結晶化潜熱の開放(リカレッセンス)が凝固組織形成に重要な役割を果たすことを明らかにした。メルト表面から結晶化が始まると、結晶化したメルト表面がリカレッセンスのために高温になる一方、メルト内部は過冷却した状態であるため、表面から内部に向けて”負”の温度勾配が生じる。”負”の温度勾配は結晶・メルト界面の形状を不安定化させ、多数の突起が短時間で成長する。その結果得られた凝固組織は、天然のコンドリュールに見られる BO 構造の特徴を良く再現した。これは、過冷却度がリカレッセンスによる温度上昇よりも小さいため、潜熱の拡散が結晶成長速度を律速する場合に生じる凝固組織である。一方、エンスタタイトメルトはその高い粘性のために結晶成長速度が遅く、潜熱の拡散が結晶成長速度を律速しない。この場合、結晶化が始まった箇所から放射状に結晶化が進行することになり、これが radial pyroxene と呼ばれるコンドリュールの凝固組織を形成する要因となりうることを示された。

この研究の独創的な点は、メルト内部における凝固組織形成過程を調べるために、数値シミュレーションをメルト結晶化実験と相補的に実施したことである。従来、コンドリュール形成に関する理論的研究は、コンドリュールが原始太陽系において如何に加熱され、冷却速度はどのような値であったか、という外的要因に関するものがほとんどであり、結晶化そのものの理論的研究は皆無であった。しかし、天文現象であるコンドリュール形成モデルと、天然コンドリュールの観察から得られる情報を比較して成因を調べるためには、その中間に位置する結晶化そのものの研究が重要課題である。この研究ではその重要性にいち早く着目した、という点において、その先見性が高く評価できる。

### 【研究課題 3】衝撃波加熱モデルに基づいた珪酸塩ダスト微結晶形成の新シナリオの提唱

本研究課題では、初期太陽系におけるダスト加熱モデルのひとつである「衝撃波加熱モデル」に注目し、過飽和な珪酸塩蒸気からの直接凝縮による珪酸塩微結晶の形成条件を解析的手法や数値シミュレーションを用いて調べた。その結果、enstatite whisker (研究課題 4 を参照) を始めとした多様な形態の珪酸塩微結晶が形成する条件が実現することを示した。

衝撃波加熱モデルとは、46 億年昔の初期太陽系における固体ダスト加熱モデルのひとつであり、コンドリュール(研究課題 1 を参照)形成の有力なモデルのひとつである。初期太陽系では、固体ダストは水素分子を主にしたガスの中を漂いながら原始太陽の周りを公転していたと考えられている。ガスが衝撃波によって瞬間的に加速されると、初期位置に留まろうとする固体物質との間に大きな相対速度が生じ、ガス摩擦によって固体ダストが瞬間的に加熱される。このとき、ミクロンサイズの微小な珪酸塩ダストはほぼ完全に蒸発することで、珪酸塩の蒸気が生じる。その後、この蒸気が急速に冷却することで、惑星間塵に見られる多様な形態の珪酸塩微結晶が形成されると予想される。古典的核形成論によると、凝縮物の平均サイズや凝縮が生じる温度は、蒸気の冷却速度と蒸気密度に依存して決まる。しかし、この蒸気がどの程度の冷却速度で冷却し、それが多様な形態の珪酸塩微結晶を形成するのに適しているのかについては定量的な研究はなされていなかった。

本研究課題では、惑星形成シナリオによってその発生が有力視されている「ガス円盤中で楕円軌道化した微惑星による弧状衝撃波」に注目し、衝撃波通過時に発生した珪酸塩蒸気の密度とその冷却速度を解析的に評価した。微惑星とは、1 km 程度のサイズまで成長した固体ダストの集合体であり、惑星の卵である。得られた解析解によると、半径 1 km の微惑星によって生じた弧

状衝撃波の場合、蒸気は 1000 K/sec という速度で冷却することが示された。また、コンドリュールを形成するような強度の強い衝撃波の場合、ミクロンサイズの固体ダストはほぼ完全に蒸発し、もともと存在した固体ダストの空間密度がそのまま蒸気密度になることが示された。古典的核形成論に基づいた評価によると、このような急速冷却においては、enstatite whisker (研究課題 4 を参照) が形成する程度の過冷却が実現可能であることが示された。また、冷却速度は微惑星サイズに反比例して小さくなり、それに応じて凝縮が生じる際の過冷却度が小さくなる。これにより、サイズの異なる微惑星によって、珪酸塩微結晶の形態の多様性が生じる可能性が示唆された。

この研究は、コンドリュールの有力な形成モデルである「微惑星による弧状衝撃波」に注目し、新たに IDPs 中や隕石マトリクス中に含まれる多様な形態の珪酸塩微結晶の形成モデルとしての側面を引き出したという点で、非常に興味深い成果である。これにより、コンドリュールと珪酸塩微結晶が同じ物理過程で同時に形成された、という見解が定量的に示されたことになり、それらが同じ石質隕石に含まれているという観察事実と調和的である。これは、原始太陽系に存在した固体物質の星雲内輸送に関わる問題とリンクしており、比較惑星形成論に対して重要な示唆を与える研究であると評価できる。

### 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 16 件 )

King, H. E. Satoh, H. Tsukamoto, K., Putnis, A., Environ Sci Technol, Nanoscale observations of magnesite growth in chloride- and sulfate-rich solutions, 査読有, 47, 2013, 8684-8691.

Kimura, Y., Sato, T., Nakamura, N., Nozawa, J., Nakamura, T., Tsukamoto, K., Yamamoto, K. Vortex magnetic

structure in framboidal magnetite reveals existence of water droplets in an ancient asteroid, Nature Communications, 2013, 査読有, vol.4, 2649-2655.

Miura, H., Yokoyama, E., Nagashima, K., Tsukamoto, K., Srivastava, A., Earth, A new constraint for chondrule formation: condition for the rim formation of barred-olivine textures, Earth Planets Space, 2011, 査読あり, 63, 1087-1096.

〔学会発表〕(計 38 件)

K. Tsukamoto, Crystal Growth in Space and on the Earth, 第 4 5 回イギリス結晶成長学会年会 (BACG2014), リード (イギリス) 2014.7.14, 基調講演.

K. Tsukamoto, In-situ Observation of Crystal Growth, ICCGE-17, 2013.8.14, ワルシャワ (ポーランド) 基調講演.

K. Tsukamoto, Live Measurement of Growth Rate of Lysozyme Crystals, ICCBM, 2012.9.25, ハンツビル (アメリカ) 招待講演.

〔図書〕(計 1 件)

K. Tsukamoto, Developments in Interferometric Techniques for In-situ Observation of Surface Kinetics of Crystals in Solutions and Three-dimensional Analysis of Transport Phenomena, in " Selected Topics on Crystal Growth ", 2010, American Institute of Physics, 292-315.

〔その他〕

ホームページ等

<http://www.tsukamoto-re.com>

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・客員研究者  
研究者番号 : 60125614

(2) 研究分担者

( )

研究者番号 :

(3) 連携研究者

中村 智樹 (NAKAMURA, Tomoki)

東北大学・大学院理学研究科・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

稲富 裕光 (INATOMI, Yuko)

独立行政法人宇宙航空研究開発機構・宇宙

科学研究本部・准教授

研究者番号 : 50249934

中村 教博 (NAKAMURA, Norihiro)

東北大学・大学院理学研究科・准教授

研究者番号 : 80382248

木村 勇気 (KIMURA, Yuki)

東北大学・大学院理学研究科・助教

研究者番号 : 50449542

三浦 均 (MIRUA, Hitoshi)

名古屋市立大学・大学院システム自然科学

研究科・准教授

研究者番号 : 50507910