

令和 5 年 6 月 22 日現在

機関番号：32644

研究種目：若手研究(B)

研究期間：2017～2022

課題番号：17K14415

研究課題名(和文) 星間塵モデル物質の衝突実験から探る彗星核の形成過程

研究課題名(英文) Shock-wave compression on MgSiO₃ material to elucidate the formation process of cometary nuclei

研究代表者

荒砂 茜 (Arasuna, Akane)

東海大学・マイクロ・ナノ研究開発センター・特任講師

研究者番号：40794681

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 2,500,000円

研究成果の概要(和文)：星間塵中に含まれるシリケートのモデル物質として含水非晶質MgSiO₃および非晶質MgSiO₃を自身で合成し、宇宙空間でのこれらシリケートの構造変化への新たな知見を提供することを目的に、衝撃圧縮実験および加熱実験を実施した。この結果、含水非晶質MgSiO₃試料は13.6GPaの低圧でエンスタタイトに結晶化することが明らかとなった。一方、水を含まない非晶質MgSiO₃は22GPaまでの圧縮でも非晶質構造を保持していた。さらに加熱実験の結果からも、含水非晶質MgSiO₃の衝撃圧縮による結晶化には、衝撃圧縮により発生する熱よりも圧縮下のH₂OおよびOH基の挙動が寄与している可能性が示された。

研究成果の学術的意義や社会的意義

本研究の成果は、衝突現象を含め宇宙空間のさまざまなイベントによる地球外物質中のシリケートの構造変化の解明に寄与できるほか、MgSiO₃は地球にも豊富に存在する物質であることからこれら物質の熱・圧力による構造変化の解明にも貢献可能である。

また、本研究で成功したゾルーゲル法やガラス合成技術による含水/非含水の非晶質MgSiO₃の合成は、地球惑星科学にとどまらず材料科学等他分野にも貢献可能な技術である。

研究成果の概要(英文)：Hydrous amorphous MgSiO₃ and non-hydrous amorphous MgSiO₃ were synthesized as model materials for silicate in interstellar dust. Analysis of model materials recovered from shock compression and thermal experiments has provided new insights into the structural changes of silicates in interstellar dust in space.

IR spectrum and XRD patterns of hydrous amorphous MgSiO₃ sample compressed at 13.6 GPa indicated that this material crystallized into enstatite. On the other hand, IR and Raman spectra of compacted amorphous MgSiO₃ showed that the sample retained its amorphous structure after compression at 22 GPa. These results indicated that H₂O and OH groups may contribute to the crystallization of amorphous MgSiO₃ under impact compression.

研究分野：結晶学、非晶質学、高压科学

キーワード：星間塵 彗星核 シリケート 非晶質 MgSiO₃ガラス 衝撃圧縮 含水物質

1. 研究開始当初の背景

彗星核は氷(水)とSiO₂を主成分とするシリケート等から形成される星間塵が宇宙空間で衝突・集合して形成された(Greenbergモデル)と考えられてきた。星間塵のシリケートはMgやFeを含む結晶度が多様なパイロキシン[(Mg,Fe)SiO₃]やオリビン[(Mg,Fe)₂SiO₄]である可能性が明らかとなった。一方、NASAのスターダスト計画による調査では彗星核には結晶性のオリビンとパイロキシンが含まれることがわかっている。彗星核とその形成物質とされる星間塵のシリケートの結晶度の差異は、彗星核の形成プロセスを反映する重要な問題であると考えられる。NASAのスターダスト計画等により実際の宇宙空間物質の捕獲、分析は飛躍的に進んだが、上記計画で捕獲できる物質の量には限界がある。このため、実際の星間塵中のシリケート物質への高圧・高温実験を実施することは難しく、星間塵物質等のモデル物質を用いた高圧・高温実験からのデータはいまだに有効である。

2. 研究の目的

星間塵のモデル物質として含水非晶質 MgSiO₃ 及び Mg₂SiO₄ を合成し、これらの衝突(衝撃圧縮)実験を実施する。実験後のモデル物質中のシリケートや水の状態を解明することで、星間塵中のシリケートの構造進化と彗星核形成の過程に新たな知見を提供する。なお、水を含まない非晶質 MgSiO₃ 及び Mg₂SiO₄ も合成し、同様に衝撃圧縮実験を実施することで衝撃圧縮による構造中の水が構造変化に与える影響をより鮮明に解明する。

3. 研究の方法

- I. 星間塵中のシリケートのモデル物質の合成
モデル物質として、含水および水を含まない2種の非晶質 MgSiO₃ 及び Mg₂SiO₄ を合成する。含水試料はゾルーゲル法をベースに自身で合成プロセスを検討する。水を含まない試料は、熔融試料を急冷することでガラス化させることにより得る。
- II. 合成物質の衝撃圧縮実験
モデル物質の衝突実験の模擬実験として、熊本大学所有の一段式火薬銃を用いた衝撃圧縮実験を実施する。合成試料をステンレスのカプセルに封入し、ステンレスのフライヤーを1km/s 程度までの高速でカプセルに衝突させることで衝撃波を生み出し、試料を圧縮する。
- III. 衝撃圧縮後に回収した試料の分析
衝撃圧縮実験から回収した試料について、ラマン分光分析装置、赤外吸収分光装置、粉末X線回折装置等を用いて、シリケート構造の変化や水分子等の変化について明らかにする。
- IV. 合成物質の加熱実験
合成物質の衝撃圧縮では、衝撃圧縮にあわせて衝撃残余熱が発生する。衝撃圧縮による残余熱の影響を検討するため、電気炉を用いた合成物質の加熱実験を実施する。加熱実験後の試料についてラマン分光分析装置、赤外吸収分光装置、粉末X線回折装置等を用いて加熱による構造の変化を明らかにする。

4. 研究成果

(1) 含水非晶質 MgSiO₃ 及び非晶質 MgSiO₃ の合成

含水非晶質 MgSiO₃ 及び水を含まない非晶質 MgSiO₃ は、以下の合成方法で合成した。

・含水非晶質 MgSiO₃ の合成：ゾルーゲル法をベースに、テトラエトキシシラン (TEOS, Si(OC₂H₅)₄)、塩化マグネシウム・6水和物 (MgCl₂・6H₂O) をモル比 1:1 で用意し、28%アンモニア水、無水エタノール、純水を用いて合成をおこなった。得られた試料は過剰な水分を除去するため 700 で加熱処理を実施した。最終的に得られた試料の含水量は TG-DTA を用いて計測し、8.8wt%であった。また試料中の水は H₂O 分子の他、OH 基が含まれる可能性があった。

・非晶質 MgSiO₃ の合成：MgO、非晶質 SiO₂ の試薬をモル比で 1:1 でエタノールを用いて混合したあと、50°Cで乾燥し熔融試薬とした。同試料を白金するつぼで 1675°Cで 3.5 時間加熱したのちに急冷し、ガラス化させた。

上記合成試料は赤外分光分析装置、粉末 X 線回折装置、および顕微ラマン分光装置による解析を行った。いずれの結果においても結晶性のピークなどは見られず、試料が非晶質構造を持つことを確認した。

(2) 衝撃圧縮実験

通常、衝撃圧縮実験用の試料は 10mm 程度のディスク上に整形し、専用のステンレスカプセル等に封入して衝撃圧縮を実施するが、含水非晶質 MgSiO₃ 及び非晶質 MgSiO₃ いずれも整形が可能なバルク体を得ることが難しかった。このため、いずれの試料も乳鉢により試料を粉末状にし、Al 合金チューブに封入し、1 軸方向にプレスして厚さ 2mm、直径 11mm の衝撃圧縮用試料とした。赤外分光分析装置および粉末 X 線回折装置を用いた分析から、プレス前後の試料のスペクトル等に大きな変化がないことを確認した。プレス試料は熊本大学所有の一段式火薬銃を用い

て圧縮した。衝撃圧力は以下のとおりである。

- ・含水非晶質 MgSiO_3 : 13.6GPa, 17.2GPa, 22.2GPa
- ・非晶質 MgSiO_3 : 15.5GPa, 20.2GPa, 22.1GPa

(3) 加熱実験

Isuzu Muffle Furnace, Motoyama Super Burn BNHW を用いて含水非晶質 MgSiO_3 及び非晶質 MgSiO_3 の加熱実験を実施した。加熱温度は以下のとおりであり、それぞれ目標温度に到達してから1時間保持し、その後自然放冷により試料を得た。

含水非晶質 MgSiO_3 : 600, 700, 800, 1000

非晶質 MgSiO_3 : 600, 800, 1000

(4) 衝撃圧縮実験及び加熱実験結果からの含水非晶質 MgSiO_3 の構造変化

衝撃圧縮後の試料を赤外分光分析装置、顕微ラマン分光装置、粉末 X 線回折装置及び SEM にて解析を行なった。

13.6GPa で圧縮した試料の粉末 X 線回折(XRD)パターンは $2\theta = 28, 31, 35^\circ$ 付近に弱い結晶性のピークを示した。またこれらのピークは衝撃圧力の増加に伴い強度が増加した。これらのピークは結晶質のエンスタタイトのピークに一致する可能性が高い。赤外吸収スペクトルも同様の挙動を示し、13.6GPa という低圧で結晶化が起きた可能性が示された。Okuno et al. (1999)による SiO_2 ガラスの衝撃圧縮実験等では、結晶化は見られていない。このため、本試料の結晶化は非常に特異的なことである。

一方、含水非晶質 MgSiO_3 の 700 までの加熱実験で得た試料では、赤外吸収スペクトルおよび XRD パターンでは結晶性のピークは見られなかった。しかし、800 で加熱した試料の赤外吸収スペクトルや XRD パターンにはエンスタタイト構造に起因すると見られるピークが見られ、本試料は 800 でエンスタタイトに結晶化したと考えられる。

合成した含水非晶質 MgSiO_3 試料の SEM 観察では、試料に空隙が多く含まれることが明らかになり、衝撃圧縮時の摩擦によって衝撃圧縮残余熱が上昇した可能性も考えられるが、衝撃圧縮による残余熱の持続時間は短く、加熱だけによる低圧での結晶化は考えにくい。

(5) 衝撃圧縮実験及び加熱実験結果からの非晶質 MgSiO_3 の構造変化

衝撃圧縮後の試料を顕微ラマン分光装置及び赤外分光分析装置で解析した。この結果、22.1GPa で衝撃圧縮した試料においても試料は非晶質構造を保持していた。15.5GPa, 20.2GPa で圧縮した試料の赤外分光スペクトルでは、 $\nu = 910\text{cm}^{-1}$ を中心としたブロードなバンド (asymmetric stretching of SiO_4) がわずかに低波数側にシフトしており、構造中の Si-O の結合距離の平均が減少、構造がコンパクトになっている可能性がある。低圧の衝撃圧縮で構造がややコンパクトになる可能性があることは上述の SiO_2 ガラスの圧縮挙動と類似する。

非晶質 MgSiO_3 の加熱実験では、800°Cで加熱した試料の赤外吸収スペクトル等で結晶化のピークが見られ、エンスタタイトに結晶化していることが示唆された。

(4)の結果と比較すると、含水および水を含まない非晶質 MgSiO_3 の加熱実験でどちらも 800°C 付近で結晶化が起きていたことから、衝撃圧縮下での H_2O や OH 基の存在が、 MgSiO_3 の結晶化を誘発する可能性が示された。

なお、ゾルーゲル法をベースとした非晶質 Mg_2SiO_4 の合成を試みたが、結晶化のスピードが速く、試料中の水分子を乾燥させる際に結晶化が進み、 MgSiO_3 のような完全な非晶質物質を得ることができなかった。しかし、非晶質 MgSiO_3 については、含水・非含水非晶質試料の合成に成功し、衝撃圧縮と加熱実験を実施できたことから、本課題が追及する非晶質構造の進化と水の影響について新たな知見を得ることに成功した。さらに、地球外物質中のシリケートだけではなく地球にも豊富に存在する MgSiO_3 を含むシリケート物質および非晶質物質の構造変化等の考察にも貢献できた。

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計2件（うち査読付論文 2件 / うち国際共著 0件 / うちオープンアクセス 2件）

〔学会発表〕 計12件（うち招待講演 1件 / うち国際学会 3件）

1. 発表者名 荒砂茜、川合伸明、奥野正幸
2. 発表標題 衝撃圧縮によるMgSiO ₃ ガラスの構造変化
3. 学会等名 2022年度衝撃波シンポジウム
4. 発表年 2023年

1. 発表者名 荒砂 茜、奥野 正幸、川合 伸明
2. 発表標題 MgSiO ₃ ガラスの衝撃圧縮による構造変化
3. 学会等名 日本鉱物科学会2020年年会
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 A. Arasuna, N. Kawai, M. Okuno
2. 発表標題 Crystallization of amorphous MgSiO ₃ by shock compression
3. 学会等名 JpGU meeting 2019 (国際学会)
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 A. Arasuna, N. Kawai, M. Okuno
2. 発表標題 Shock and thermal behavior of synthesized amorphous MgSiO ₃ as a model material for cosmic dust
3. 学会等名 AOGS 16th Annual meeting (国際学会)
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 荒砂茜, 奥野正幸
2. 発表標題 星間塵モデル物質としての非晶質MgSiO ₃ の衝撃圧縮実験
3. 学会等名 第21回日本セラミックス協会北陸支部秋季研究発表会
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 荒砂 茜、奥野 正幸
2. 発表標題 含水非晶質MgSiO ₃ の衝撃圧縮挙動 - 彗星核と星間塵の衝突挙動への提案のために -
3. 学会等名 JAXA宇宙科学に関する室内実験シンポジウム (招待講演)
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 荒砂 茜、奥野 正幸、阿藤 敏行、真下 茂
2. 発表標題 Mg添加シリカゲルの衝撃圧縮挙動の解明
3. 学会等名 第58回高圧討論会
4. 発表年 2017年

1. 発表者名 Akane Arasuna
2. 発表標題 Structural change of frustule of diatom by thermal treatment
3. 学会等名 14th Asia Oceania Geosciences Society Annual Meeting (国際学会)
4. 発表年 2017年

1. 発表者名 荒砂 茜、奥野 正幸
2. 発表標題 加熱による珪藻被殻の構造変化
3. 学会等名 第20回日本セラミックス北陸支部秋季研究発表会
4. 発表年 2017年

〔図書〕 計0件

〔産業財産権〕

〔その他〕

-

6. 研究組織

	氏名 (ローマ字氏名) (研究者番号)	所属研究機関・部局・職 (機関番号)	備考
研究協力者	奥野 正幸 (Okuno Masayuki)	金沢大学・名誉教授 (13301)	
研究協力者	川合 伸明 (Kawai Nobuaki)	防衛大学校・准教授 (82723)	

7. 科研費を使用して開催した国際研究集会

〔国際研究集会〕 計0件

8. 本研究に関連して実施した国際共同研究の実施状況

共同研究相手国	相手方研究機関
---------	---------