

令和 5 年 6 月 3 日現在

機関番号：17102

研究種目：研究活動スタート支援

研究期間：2019～2022

課題番号：19K23474

研究課題名（和文）プレソーラー粒子の化学反応から制約される原始太陽系円盤の物理化学条件

研究課題名（英文）Physicochemical conditions of the protosolar disk constrained by the survivability of presolar grains in the early solar system

研究代表者

山本 大貴（Yamamoto, Daiki）

九州大学・理学研究院・助教

研究者番号：00846868

交付決定額（研究期間全体）：（直接経費） 2,200,000 円

研究成果の概要（和文）：低圧のH₂-H₂O混合ガス中でのSiC蒸発実験では、加熱温度・時間・ガス組成に応じた蒸発量の変化が観察された。加熱後物質の表面にはTEM分析により、極めて薄いSiO₂層形成が確認された。蒸発速度は高温領域では温度に大きく依存せず、低温領域では、加熱温度に大きく依存した。これらの結果から、原始太陽系円盤条件でのプレソーラーSiCの残存条件を温度や水蒸気圧の関数として決定した。アルミナに関しては、速度データから非晶質アルミナの酸素同位体交換反応は、アルミナ結晶化よりも低温で進行し、原始太陽系円盤に持ち込まれたプレソーラー非晶質アルミナは太陽系の酸素同位体組成へとすみやかに変化する可能性がある。

研究成果の学術的意義や社会的意義

プレソーラーSiC粒子、アルミナ粒子の残存可能性が明らかになったことにより、始原的隕石中の物質が経験した原始太陽系円盤の物理化学条件の制約が可能となる。また先行研究のプレソーラー珪酸塩粒子の残存可能性条件の結果をあわせることで、始原的隕石の観察結果から与えられている種々のプレソーラー粒子の存在量比との詳細な比較から原始太陽系円盤の物理化学条件の詳細な決定や、原始太陽系円盤に持ち込まれたプレソーラー粒子の状態（熱力学的安定相か不安定相であるか）の推定につながると考えられる。具体的には、隕石中のプレソーラー酸化物・珪酸塩の存在量比の変化と実験的に決定したプレソーラーアルミナ・ケイ酸塩粒子

研究成果の概要（英文）：Evaporation experiments of SiC under low-pressure H₂-H₂O gas mixture revealed that the evaporation rates of SiC depend on heating temperature, duration, and gas composition. The presence of thin SiO₂ layer on the surface of the experimental charges was confirmed by TEM. The evaporation flux depends only weakly on temperatures higher than 1350-1400 °C, while larger temperature dependence of the evaporation flux was observed at temperatures < 1300 °C. The present experimental results reveal the survivability of presolar SiC in the disk as a function of temperature and PH₂O. Experimental results of alumina dust indicated that oxygen isotope exchange of amorphous alumina dust precedes its crystallization at low temperatures, suggesting that oxygen isotopic compositions of presolar amorphous alumina dust incorporated in the protosolar disk would be readily erased by oxygen isotope exchange with the solar disk gas in the earliest solar system.

研究分野：宇宙惑星化学

キーワード：プレソーラー粒子 炭化ケイ素 アルミナ 原始太陽系円盤 蒸発 酸素同位体交換 残存可能性

1. 研究開始当初の背景

太陽系誕生以前に晩期型星周囲で形成され、分子雲を経て太陽系に取り込まれた数 μm 以下の固体微粒子はプレソーラー粒子と呼ばれ、太陽系物質に対して大きな同位体異常を持つ。これまでにアルミナ (Al_2O_3) に代表される酸化物、ケイ酸塩、炭化ケイ素 (SiC) に代表される炭化物などが確認されている。プレソーラー粒子は太陽系の原材料物質そのものであるが、母天体変成の影響が極めて少ない彗星塵や隕石中のプレソーラー粒子存在量は極めて低く (e.g. Floss & Haenecour, 2016)、太陽系に取り込まれたプレソーラー粒子の多くが彗星や隕石の母天体集積前に低圧ガスと固体物質からなる原始太陽系円盤内で消失した可能性を示唆する。このような円盤内での消失は、プレソーラー酸化物・ケイ酸塩の場合、低圧円盤ガス (e.g. H_2O) との酸素同位体交換によって同位体特徴が消失することに起因すると考えられる。また、 SiC 粒子は太陽系の低酸化ガス分圧下で SiO ガスとして蒸発する可能性がある (Mendybaev et al., 2002)。これらのプレソーラー粒子の化学反応過程の程度は、円盤の物理化学条件 (e.g. 温度・圧力) に依存し、その条件に依存した化学反応過程の時間スケールが取得できれば、プレソーラー粒子の消失が起こったという事実から初期太陽系の物理化学条件を推定することが可能となる。プレソーラーケイ酸塩に関しては、後述するように申請者の先行研究から、 $\sim 500\text{K}$ より高温の円盤温度条件で同位体的特徴が消失することが分かっている (Yamamoto et al., 2018)。しかしながら、プレソーラー酸化物の円盤条件下での同位体交換機構・速度は未解明であり、プレソーラー SiC 粒子蒸発実験をおこなった Mendybaev et al. (2002) においても、大気圧下での実験であり、実際の低圧環境での SiC 蒸発反応の機構・速度が決定されたとは言いがたい。原始太陽系円盤は惑星材料物質に変化をもたらした最初期の化学反応の場として重要だが、その場の物理化学条件は未解明である。プレソーラー粒子はその条件解明の指標になり得るが、原始太陽系円盤におけるプレソーラー粒子の化学反応の物質科学的理解が不十分であるという本質的問題が存在する。

2. 研究の目的

原始太陽系円盤でのプレソーラーアルミナの結晶化・相転移・酸素同位体交換反応、 SiC 粒子の蒸発反応の機構及び速度を低圧加熱実験から取得し、円盤の物理化学条件の推定を試みる。

3. 研究の方法

SiC 蒸発実験: 出発物質には、プレソーラー SiC 粒子の中で最も主要な多形である $\beta(3\text{C})\text{-SiC}$ (マーチソン隕石中でプレソーラー SiC 粒子の $\sim 80\%$ を占める (Daulton et al., 2003)) のチップ (横縦 $4 \times (4-5)\text{mm}$, 厚み 0.6mm , 化学気相成長法により合成) を用いた。加熱実験には、新たに構築したガス供給系を備えた真空高温加熱縦型炉を用いて、温度 $1250-1450^\circ\text{C}$ 、 $\text{H}_2\text{-H}_2\text{O}$ 混合ガス圧力 $0.5, 2.5\text{Pa}$ で $4-110.3\text{h}$ おこなった。ガス供給系では、室温および 75°C で保持された脱イオン水からの蒸発ガスとガスボンベから供給される H_2 ガスとが混合され、脱イオン水の消費量と全ガス流量から、脱イオン水が 75°C の実験では飽和水蒸気圧から推定した $\text{H}_2/\text{H}_2\text{O}$ 比はそれぞれ $\sim 225, 420, 67$ (i.e., それぞれ $P_{\text{H}_2\text{O}} = 2.2 \times 10^{-3}, 6.0 \times 10^{-3}, 3.7 \times 10^{-2}\text{Pa}$) であった。サンプル質量とサイズの変化は高精度電子天秤及びマイクロメーターで推定し、蒸発量の推定をおこなった。いくつかのサンプルに関して FIB 切片を作成し (FIB-SEM; Hitachi NX2000)、透過型電子顕微鏡 (STEM-EDS; JEOL JEM-2800) で観察をおこなった。

アルミナ結晶化・相転移・酸素同位体交換実験: 出発物質には、ゾルゲル法で作成した非晶質アルミナを用いた。Ono & Matsuno (2004), Takigawa et al. (2014) の作成手順を参考にしながらウォーターバス中で均質温度になるようにした状態で、原料を混ぜ合わせアルミナゲルを作成した。アルミナゲルには、合成中に使用した水や有機物、炭酸塩などを含んでおり、特に水の存在はアルミナの結晶化・相転移・酸素同位体交換速度を左右する (e.g., Yanagida et al., 1965, 1966; Yamamoto and Tachibana, 2018)。アルミナゲルから可能な限り水を含まない非晶質アルミナを作成する際の適切な温度と加熱時間を模索し、非晶質アルミナを合成した。合成非晶質アルミナは、大気中での遷移アルミナへの結晶化実験 ($943-1023\text{K}$) 及び遷移アルミナから再安定相である α アルミナへの相転移実験 ($1173-1323\text{K}$) に用いた。また同サンプルは低圧水蒸気圧環境下での加熱が可能な装置 (Yamamoto and Tachibana, 2018; Yamamoto et al., 2018, 2020) を用いて 0.3Pa の H_2^{18}O ガス中で $723, 853, 883\text{K}$ で酸素同位体交換実験に用いた。赤外分光法 (JASCO FT=IR4200) を用いて重い同位体への置換による赤外吸収ピークの波長変化を観察した。また粉末 X 線回折により加熱後物質の相同定および結晶化・相転移の進行度を予測した。一部の酸素同位体交換実験サンプルは北海道大学の二次イオン質量分析計 (SIMS; Cameca ims-1280HR) で酸素同位体組成分析をおこなった。

4. 研究成果

SiC 蒸発実験: FactSage を用いた熱力学計算から、実験における温度・圧力・酸化還元条件では SiO₂ は安定に存在せず、STEM-EDS 分析からも表面付近における酸素原子の過剰は観察されなかったことから、SiC の蒸発はアクティブ酸化 (i.e., $\text{SiC (s)} + 2\text{H}_2\text{O (g)} = \text{SiO (g)} + \text{CO (g)} + 2\text{H}_2 \text{(g)}$) (e.g., Narushima et al., 1997)) を通して起こる可能性が示唆された。一方、加熱後物質の STEM 観察から、酸素に富む極めて薄い層 (~5–10 nm) が確認され、SiO₂ 形成を伴うパッシブ酸化 (e.g., $\text{SiC (s)} + 3\text{H}_2\text{O (g)} = \text{SiO}_2 \text{(s)} + \text{CO (g)} + 3\text{H}_2 \text{(g)}$, $\text{SiC (s)} + 2\text{H}_2\text{O (g)} = \text{SiO}_2 \text{(g)} + \text{C (s)} + 2\text{H}_2 \text{(g)}$) の進行が予想される。SiC 表面での局所的な酸化環境が関係している可能性がある (蒸発物質の滞留による影響等)。またこの結果は、始原的隕石中で見つかるプレソラー SiC 表面の酸化リム (10–30 nm; e.g., Bernatowicz et al., 2006) が円盤中での加熱で形成可能であることを示している。

蒸発速度 k (cm s^{-1}) は Takigawa et al. (2009) と同様の手法を用いて質量損失と初期サンプルサイズにより推定し、蒸発フラックス J ($\text{g cm}^{-2} \text{s}^{-1}$) に変換した。 J は 1350–1450°C の高温領域では温度にほとんど依存しない一方、1300°C 以下の低温領域では大きく温度に依存した (図 1)。また高温域において、 $P_{\text{H}_2\text{O}}$ に応じて蒸発フラックス J が大きくなり、一方低温域において J は、ばらつきの範囲内で各圧力条件の結果は一致した。このことは ~1300–1350°C で反応律速段階の変化があることを示している。高温での温度に依存しない蒸発速度は、SiO₂ 形成が確認されたことを考慮すると、SiO₂ 形成速度が H₂O 気体フラックスにより律速されている可能性を示す (e.g., Yamamoto et al., 2018, 2021)。高温域の蒸発速度は $P_{\text{H}_2\text{O}}$ の平方根に比例しているため、表面での H₂O 乖離がおこっており、乖離した H₂O が SiO₂ 形成を起こしていると予想される。一方、低温領域では、蒸発速度がガス種に依存しないこと、SiO₂ 形成層が極めて薄いことを考慮すると、SiC-SiO₂ 界面での化学反応が律速段階であると予想され、その場合の先行研究 (Pultz and Hertl, 1966; Mendybaev et al., 2002) の活性化エネルギーとよく一致した (本研究 ~531 kJ mol⁻¹, 先行研究 548–563 kJ mol⁻¹)。

蒸発速度の原始太陽系円盤への応用から、プレソラー SiC 粒子は、熔融 CAI 形成時の高温プロセス (~1400°C, $P_{\text{H}_2\text{O}} > 0.1 \text{ Pa}$, ~2–3 days; Yamamoto et al., 2021, 2022) では残存できない。また、プレソラー SiC 粒子はプレソラー非晶質ケイ酸塩粒子よりも高温で残存するが、プレソラーアルミナの特異的な酸素同位体組成が円盤ガスとの酸素同位体交換により消失する温度より高温で残存することができないことがわかった。

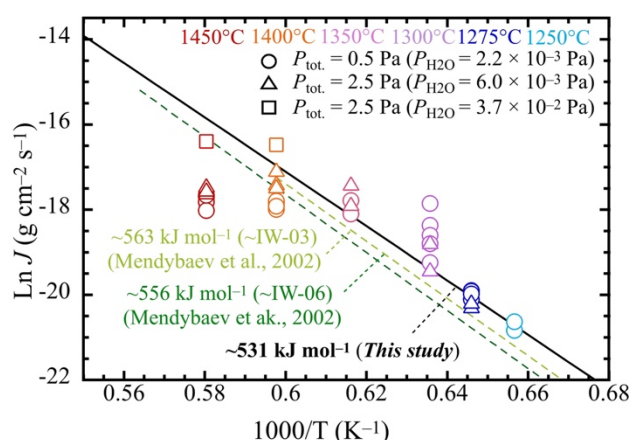


図 1. 各圧力条件における蒸発フラックス J の温度依存性。

アルミナ結晶化・相転移・酸素同位体交換実験: 943–1023 K でおこなった非晶質アルミナ結晶化実験では、結晶化により γ アルミナが形成されることがわかり、結晶化の時間変化を表すアブラミ式から結晶時定数及び頻度因子、活性化エネルギーを推定した。またより高温の 1173–1323 K では加熱初期段階で γ アルミナが結晶化し、 γ アルミナを経由して α アルミナへ相転移を起こした。相転移も同様にして相転移時定数及び頻度因子、活性化エネルギーを推定した。結晶化・相転移時定数のアレニウスの関係から、推定された各アレニウス式はほぼ並行に存在するため、広い温度範囲で非晶質アルミナは γ アルミナを経由して α アルミナへ相転移することがわかった。 γ アルミナ- α アルミナ間の相転移速度は先行研究 (Yamaguchi et al., 1976; McArdle and Messing, 1993; Shelleman et al., 2007) と良い一致を示した。また非晶質アルミナの γ アルミナへの結晶化は、非晶質フォルステライト結晶化 (Yamamoto and Tachibana, 2018) と同程度の速度で進行することが示された。上記のような結果から、原始太陽系円盤中での非晶質アルミナの結晶化、相転移の速度論的モデル化が可能となった。 α アルミナへ相転移への相転移が円盤高温領域 (> ~820 K) に限定されることから、非晶質または遷移アルミナが円盤中に豊富に存在し、現在考えられているよりも豊富に始原的隕石中に取り込まれた可能性がある。プレソラーアルミナは主に隕石の酸処理により分離されるが、非晶質・遷移アルミナが酸処理中に選択的に溶出することでその存在量が少ない可能性があるという先行研究の指摘 (Takigawa et al., 2014) の結果を指示するものであった。

また、非晶質アルミナの酸素同位体交換実験をおこなったサンプルを真空中で高温 (1523 K) で加熱することで α アルミナへ結晶化させた。結晶化させたサンプルにおいて、その ~10–25 μm 波長の赤外吸収ピークは天然の酸素同位体組成を持つ α アルミナと比較して全てのピークで光波長へ明らかなシフトをおこしており、ピーク幅もブロードとなった。このことは、Al-O 結合の振動数の低下をもたらす重い同位体への置換 (同位体交換) と不完全な同位体交換を示すものであり、非晶質ケイ酸塩と H₂¹⁸O ガスとの酸素同位体交換実験において観察された結果と整

合的である (Yamamoto et al., 2018, 2020). また SIMS 分析の結果からも、明らかな ^{18}O 濃集が確認され (e.g., 610°C , 20 h のサンプルで $^{18}\text{O}/^{16}\text{O} \sim 0.34$)、効率的な同位体交換が進行していることを確認している。非晶質アルミナ結晶化よりも低温でも効率的な酸素同位体交換反応が進行しているという本研究の結果は、特異的な酸素同位体組成を持つプレソーラーアルミナ粒子が非晶質の状態で原始太陽系円盤に持ち込まれた場合には、結晶化にともない酸素同位体交換速度が低下することなく太陽系円盤ガスと効率的に酸素同位体交換をおこし、特異的な同位体的特徴を失ってしまう可能性を示している。母天体変性の影響が極めて少ない始原的な隕石と IDP におけるプレソーラー酸化物とプレソーラーケイ酸塩の存在量比は大きく変わらないことから、原始太陽系円盤でのプレソーラー酸化物とプレソーラーケイ酸塩は同程度の円盤熱プロセスに対する耐性を持っていることが考えられる。これを説明するためには、多くのプレソーラーアルミナ粒子が非晶質または遷移アルミナとして円盤に持ち込まれる必要があり、星周の赤外分光観測結果から非晶質または遷移アルミナが豊富に存在している可能性があるという指摘 (Onaka et al., 1989; Waters et al., 1996; Speck et al., 2000; Takigawa et al., 2015, 2019) と整合的である。

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 1件）

1. 著者名 Yamamoto Daiki, Tachibana Shogo, Kawasaki Noriyuki, Yurimoto Hisayoshi	4. 巻 55
2. 論文標題 Survivability of presolar oxygen isotopic signature of amorphous silicate dust in the protosolar disk	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 Meteoritics & Planetary Science	6. 最初と最後の頁 1281 ~ 1292
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1111/maps.13365	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスとしている (また、その予定である)	国際共著 -

1. 著者名 Yamamoto Daiki, Kawasaki Noriyuki, Tachibana Shogo, Kamibayashi Michiru, Yurimoto Hisayoshi	4. 巻 336
2. 論文標題 Oxygen isotope exchange kinetics between CAI melt and carbon monoxide gas: Implication for CAI formation in the earliest Solar System	5. 発行年 2022年
3. 雑誌名 Geochimica et Cosmochimica Acta	6. 最初と最後の頁 104 ~ 112
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1016/j.gca.2022.09.006	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

〔学会発表〕 計11件（うち招待講演 0件/うち国際学会 8件）

1. 発表者名 Yamamoto D., Tachibana S., and Takigawa A.
2. 発表標題 Survivability of presolar SiC grains in the protosolar disk: An experimental study of evaporation kinetics of SiC in the low pressure-H ₂ -H ₂ O gas mixture
3. 学会等名 The 85th Annual Meeting of The Meteoritical Society (METSOC 2022) (国際学会)
4. 発表年 2022年 ~ 2023年

1. 発表者名 山本大貴、上林海ちる、川崎教行、橘省吾、塚本尚義
2. 発表標題 難揮発性包有物 (CAI) メルトと水蒸気との酸素同位体交換速度論から制約される原始太陽系円盤でのCAIの熱履歴
3. 学会等名 JpGU-AGU Joint Meeting 2020
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 山本大貴、橘省吾、川崎教行、上林海ちる、坂本尚義
2. 発表標題 非晶質ケイ酸塩とCOガスとの酸素同位体交換速度論: ケイ酸塩ダストの原始太陽系円盤での熱履歴の制約
3. 学会等名 日本鉱物科学会2020年会
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 D. Yamamoto, S. Tachibana, N. Kawasaki, M. Kamibayashi, and H. Yurimoto
2. 発表標題 O-isotope exchange between amorphous silicates and carbon monoxide gas in the Solar System
3. 学会等名 Solar-System symposium in Sapporo 2020 (国際学会)
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 D. Yamamoto, S. Tachibana, N. Kawasaki, M. Kamibayashi, and H. Yurimoto
2. 発表標題 Experimental study on O-isotope exchange between amorphous forsterite and carbon monoxide gas in the protosolar disk
3. 学会等名 K. Kobayashi, D. Yamamoto, A. Takigawa, and S. Tachibana (国際学会)
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 山本 大貴、瀧川 晶、橘 省吾
2. 発表標題 低圧H ₂ -H ₂ O混合ガス中でのSiC蒸発実験: 原始太陽系円盤でのプレソーラーSiC粒子残存可能性
3. 学会等名 JpGU-AGU Joint Meeting 2023
4. 発表年 2023年

1 . 発表者名 D. Yamamoto, N. Kawasaki, S. Tachibana, H. Yurimoto
2 . 発表標題 O-isotope Evolution of Silicate Dust in the Protosolar disk
3 . 学会等名 Solar-System symposium in Sapporo 2023 (国際学会)
4 . 発表年 2023年

1 . 発表者名 D. Yamamoto, A. Takigawa, and S. Tachibana
2 . 発表標題 An Experimental Study on Evaporation of Silicon carbide in a Low-Pressure H ₂ -H ₂ O Gas Mixture
3 . 学会等名 54th Lunar and Planetary Science Conference (国際学会)
4 . 発表年 2023年

1 . 発表者名 K. Kobayashi, D. Yamamoto, A. Takigawa, and S. Tachibana
2 . 発表標題 Kinetics of Crystallization of Amorphous Alumina and Phase Transition of γ -Alumina
3 . 学会等名 54th Lunar and Planetary Science Conference (国際学会)
4 . 発表年 2023年

1 . 発表者名 K. Kobayashi, D. Yamamoto, A. Takigawa, and S. Tachibana
2 . 発表標題 Crystallization/Phase Transition Kinetics of Presolar Alumina Dust in the Protosolar Disk
3 . 学会等名 Solar-System symposium in Sapporo 2023 (国際学会)
4 . 発表年 2023年

1. 発表者名 D. Yamamoto, N. Kawasaki, S. Tachibana, M. Kamibayashi, and H. Yurimoto
2. 発表標題 O-isotope exchange kinetics between CAI melt and carbon monoxide gas in the protosolar disk
3. 学会等名 53rd Lunar and Planetary Science Conference (国際学会)
4. 発表年 2022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

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