

科学研究費助成事業（科学研究費補助金）研究成果報告書

平成 23 年 9 月 30 日現在

機関番号：12601

研究種目：若手研究(A)

研究期間：2008～2010

課題番号：20684025

研究課題名（和文） 原始惑星系円盤における鉄の状態分布：惑星の化学的多様性解明に向けた実験的研究

研究課題名（英文） Reaction experiments of Fe-bearing minerals under protoplanetary disk conditions

研究代表者

橘 省吾 (TACHIBANA SHOGO)

東京大学・大学院理学系研究科・助教

研究者番号：50361564

研究成果の概要（和文）：惑星間の鉄の存在度や存在状態の多様性を理解するための第一歩として、原始惑星系円盤での惑星材料物質において鉄の総量がどの程度であったか、存在状態の異なる鉄が惑星形成直前にどのように分布していたかの理解が重要である。本研究では、原始惑星系円盤内で鉄の存在状態を変える主要化学反応である金属鉄凝縮や金属鉄の硫化反応の速度やメカニズムを室内実験で解明することを目的とし、これらの反応の速度論パラメータを得ることに成功した。また、金属鉄形成の際に競合関係となるケイ酸塩フォルステライトの成長過程の理解も重要であるため、フォルステライト成長の速度論パラメータも取得した。これらの速度論パラメータはいずれも原始惑星系円盤条件で得られ、世界で初めてのデータである。

研究成果の概要（英文）：Distribution of Fe among metal, silicates, and sulfide in protoplanetary disks could be a controlling factor of chemical composition of planetesimals and rocky planets. Kinetic parameters for metallic iron condensation and iron sulfide formation were obtained from reaction experiments under realistic protoplanetary disk conditions. The growth kinetics of forsterite, which may affect the condensation of metallic iron, was also experimentally determined.

交付決定額

(金額単位：円)

	直接経費	間接経費	合計
2008年度	8,400,000	2,520,000	10,920,000
2009年度	7,300,000	2,190,000	9,490,000
2010年度	3,200,000	960,000	4,160,000
年度			
年度			
総計	18,900,000	5,670,000	24,570,000

研究分野：地球宇宙化学

科研費の分科・細目：地球惑星科学・地球宇宙化学

キーワード：元素分別 分配 原始惑星系円盤 反応速度論 地球型惑星
宇宙化学 硫化実験 硫化鉄 金属鉄

1. 研究開始当初の背景

太陽系の地球型惑星はバルク組成やマントルの酸化還元状態、金属コアの化学組成が異なる。特に鉄の存在度や存在状態（珪酸塩・金属・硫化鉄）は多様性である。鉄は珪酸塩、

金属、硫化物といった物性の異なる存在状態を取りやすいため、物理探査でも情報が得やすく、太陽系内外の地球型惑星における鉄の存在度や存在状態は今後、探査や観測によって詳細が明らかにされていくことが期待さ

れる。惑星におけるバルクの鉄存在度は材料物質によって決まる。惑星形成直前の原始惑星系円盤内で惑星材料物質中の鉄の存在度や存在状態(珪酸塩, 金属, 硫化鉄)の空間的多様性(惑星形成の化学的初期条件)を理解することが重要となる。これはコンドライト化学グループ間における鉄の存在度, 存在状態の差異の理解にもつながる問題である。

原始惑星系円盤の現代的描像にも合った珪酸塩, 金属, 硫化鉄として存在する鉄の存在度の空間分布を決定するためには, 円盤温度が低下していく過程での金属鉄の凝縮, 硫化による硫化鉄の形成反応の進行度の空間的・時間的違いから明らかにする必要がある。本研究では, 原始惑星系円盤での鉄の凝縮・硫化反応を実験的研究で調べ, 原始惑星系円盤で珪酸塩, 金属, 硫化鉄として存在する鉄の存在度分布を決定するための反応速度の基礎データを得ることを目的とした。これらの反応について, 原始惑星系円盤条件での反応速度データは存在しない状況であった。

2. 研究の目的

(1) 原始惑星系円盤において最初に形成される鉄含有相である金属鉄の表面反応律速凝縮の速度を決定する。

(2) 金属鉄の硫化実験を原始惑星系円盤条件でおこない, 反応律速過程を決定し, その速度論パラメータを得る。

(3) (研究開始後に追加) 金属鉄凝縮と同様の温度条件で起こるマグネシウムケイ酸塩フォルステライトの凝縮速度パラメータを決定する。

3. 研究の方法

(1) 既存の抵抗加熱型真空炉を用い, 炉の中心部に設置した金属鉄を蒸発源とし, 蒸発ガスをアルミナ管を通じて, 炉内低温部に導入し, アルミナ基板上に凝縮させる。凝縮金属鉄の表面構造, 化学組成などをFE-SEM・EDSによって観察・分析する。凝縮金属鉄の重量から凝縮量を求める。また, 分子流条件での気体分子運動の理論的考察より, 基板上的過飽和比を決定する。原始惑星系円盤での金属鉄凝縮温度に近い条件(1235K, 1340K)での実験から, 凝縮速度を求める。

(2) 低圧力下での金属鉄硫化実験装置を開発する。装置内でのヒーター材による汚染を防止するため, 外熱式としゴールドイメージ炉を用いる。金属鉄の硫化実験をおこない, 反応生成物をFE-SEM・EDS・EBSDによって決定する。反応進行度の時間依存性に基づき, 反応律速過程を決定し, その速度論パラメータを得る。

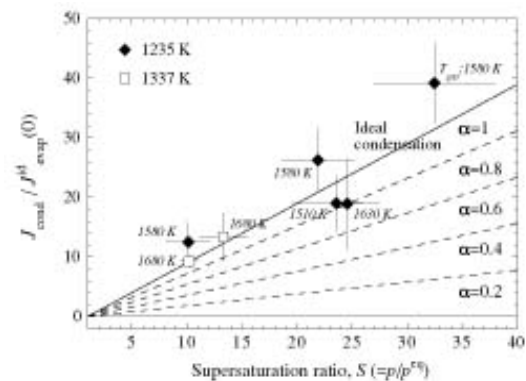
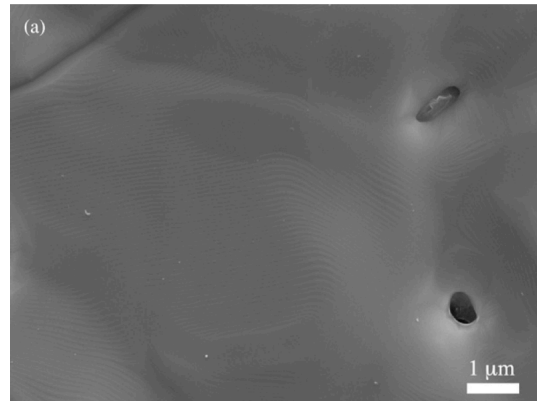
(3) 既存の赤外線集光加熱真空炉を改造し, 原始惑星系円盤条件でのフォルステライト凝縮実験をおこなう。特に制御した H_2-H_2O 雰

囲気での実験を可能にするためのガス導入機構を作成する。合成フォルステライトを蒸発源として加熱し, 炉内低温部に設置したフォルステライト基盤に凝縮させる。FE-SEM・EDS・EBSD・FIB-TEMを用いて凝縮物を評価し, 表面反応律速型成長の速度論パラメータを決定する。

4. 研究成果

主たる研究成果を以下に示す。

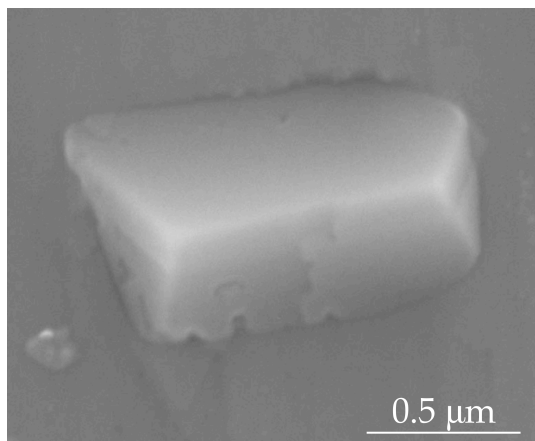
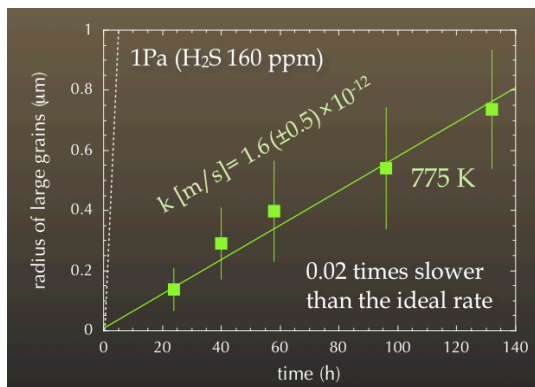
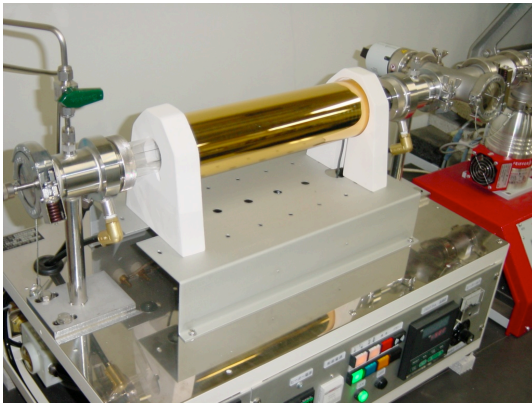
(1) **金属鉄凝縮** 金属鉄表面反応律速型凝縮プロセスの速度(J_c)は, 表面への気相鉄原子の供給速度(J_{in})と反応表面での原子レベルでの速度論障壁 α (凝縮係数)の積であらわされる($J_c = \alpha J_{in}$)。本実験では蒸発源金属鉄の重量減少と分子流条件での気体分子運動の理論的考察より J_{in} が求められるため, 実験で生成された金属鉄凝縮物(下写真)の重量変化から得られる J_c と J_{in} を比較することで α を決定することができる。過飽和比に対する凝縮速度 J_{in} を下図に示す。



図中には異なる α に対応した凝縮速度が実線および点線で示されており, 本実験で得られた凝縮速度は幅広い過飽和比条件において, $\alpha=1$ で説明されることがわかる。これは金属鉄凝縮に表面での速度論障壁がほとんどないことを意味し, 原始惑星系円盤での温度条件での凝縮係数として初めて定量的に示されたデータである。得られたデータをもとに原始惑星系円盤での金属鉄凝縮につい

て理論的考察をおこない、年スケールでの冷却時に凝縮の速度論効果が無視できないことを示した。

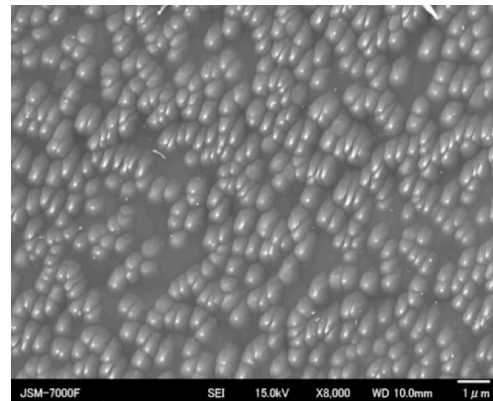
(2) **硫化鉄形成** ゴールドイメージ炉を用いた低圧硫化実験装置を開発した(下写真)。He-H₂S 混合ガス 1Pa 中での硫化鉄形成実験をおこない、生成物(下写真)から反応進行度の時間変化を調べた。これまで1気圧下での実験では硫化鉄形成速度は反応生成物である硫化鉄層中の鉄の拡散が律速するとされてきたが、低圧力下では気相中の分子数密度が低いため、硫化水素分子の表面への供給が律速過程となり、金属鉄同様、表面反応律速となることが初めて示された(下グラフ)。



硫化鉄サイズの時間変化から成長速度を求め(上図:緑実線)、硫化水素分子(160 ppm)供給速度(上図:白点線)と比較し、表面反応の速度論障壁 α を 0.02 と決定することに成功した。

得られた α を用いて、原始惑星系円盤での硫化鉄形成モデルを作成し、速度論効果が無視できないことを示した。また、成長速度だけでなく、金属鉄表面での硫化鉄形成速度が新たに重要なパラメータとなることを示し、今後取り組むテーマとした。

(3) **フォルステライト凝縮** 既存の赤外線集光加熱真空炉内での H₂-H₂O 雰囲気を制御した実験の実施を可能とした。原始太陽系円盤の H₂O/H₂ 比 0.001 に近い (0.005-0.01:凝縮を促進するため、やや酸化的環境とした) 条件でフォルステライト凝縮実験をおこなった。このような制御された原始惑星系円盤条件での実験はこれまでになく、本研究が初めてである。実験で得られた凝縮物(下写真)は結晶質フォルステライトであることが確認された。フォルステライト形成も表面反応律速であり、凝縮物の重量およびサイズから凝縮係数 α を見積もると 0.05 以下であることがわかった。この結果は金属鉄とほぼ同じ温度条件で形成されるフォルステライトは速度論効果によって成長が抑制されることを示唆し、凝縮過程によって、始源隕石コンドライトにみられる親石元素-親鉄元素間の元素分別を引き起こすことが可能であることが示された。



これら (1) - (3) の研究成果に関して、2011 年 11 月にハワイで開催される初期太陽系での固体物質形成会議での講演を依頼され、招待講演をおこなう予定である。また、結果をまとめた論文の執筆も依頼されている。

(4) 研究成果のアウトリーチとして、東京大学総合博物館における「鉄 137 億年の宇宙誌」展に企画段階から参加し、気相から凝縮

した金属鉄試料の展示・解説をおこなった。また、展示の背景をまとめた書籍「鉄学-137億年の宇宙誌」を共著で記し、天文学、惑星科学、地球科学における鉄という元素の重要性を解説した。他、実験室での宇宙条件再現実験に関する一般向け講演を中学校、高校、一般向け公開講座などで多数おこない、本研究の意義や成果を解説した。

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 10 件 : 但し主な文献のみ)

- ① Tachibana S., Nagahara H., Ozawa K., Ikeda Y., Nomura R., Tatsumi K., and Joh Y.: “Kinetic Condensation and Evaporation of Metallic Iron and Implications for Metallic Iron Dust Formation” *Astrophysical Journal* 736. doi:10.1088/0004-637X/736/1/16 (2011)
- ② Pascucci I., Tachibana S.: “The clearing of protoplanetary disks and of the protosolar nebula” *Protoplanetary Dust* (eds. Apai and Lauretta) 12. 263-298 (2010)
- ③ Koike C., Imai Y., Chihara H., Suto H., Murata K., Tsuchiyama A., Tachibana S. and Ohara S.: “Effects of forsterite grain shape on infrared spectra” *Astrophys. J.* 709, 983-992 (2010)
- ④ Kita N. T., Nagahara H., Tachibana S., Tomomura S., Spicuzza M. J., Fournelle J. H. and Valley J. W.: “High precision SIMS oxygen three isotope study of chondrules in LL3 chondrites: Role of ambient gas during chondrule formation” *Geochim. Cosmochim. Acta* 74, 6610-6635 (2010)
- ⑤ Kurosawa K., Sugita S., Kadono T., Shigemori K., Hironaka Y., Otani K., Sano T., Hiroshita A., Ozaki N., Miyanishi K., Sakaiya T., Sekine Y., Tachibana S., et al.: “In-situ spectroscopic observations of silicate vaporization due to >10 km/s impacts using laser driven projectiles” *Geophysical Research Letters* 37, L23203, doi:10.1029/2010GL045330 (2010).
- ⑥ Mishra R. K., Goswami J. N., Tachibana S., Huss G. R. and Rudraswami N. G.: “⁶⁰Fe and ²⁶Al in chondrules from unequilibrated chondrites: Implications for early solar system processes” *Astrophys. J. Letters* 714, L217-L221 (2010)
- ⑦ Nagahara, H., Ozawa, K., Ogawa, R.,

Tachibana, S., and Chiba, H.: “Laboratory condensation and reaction of silicate dust” In *Cosmic Dust - Near and Far* (Eds. Th. Henning, E. Grün and J. Steinacker). ASP Conf. Ser., p.403-410 (2009)

- ⑧ 橘省吾: “消滅核種存在度から考える太陽系誕生環境” *地球化学* 43. 212-220 (2009)
- ⑨ Takigawa A., Tachibana S., Nagahara H., Ozawa K., Yokoyama M.: “Anisotropic evaporation of forsterite and its implication for dust formation conditions in circumstellar environments” *Astrophys. J. Letters* 707. L97-L101 (2009)
- ⑩ Takigawa A., Tachibana S. et al.: “Injection of short-lived radionuclides from a faint supernova with mixing-fallback into the early solar system” *Astrophysical Journal* 688. 1382-1387 (2008)

[学会発表] (計 32 件 : 但し主な発表のみ)

1. Tachibana S., et al.: “Condensation Experiments of Magnesium-Silicates Under Protosolar Disk Conditions: Growth Kinetics” The 42nd Lunar and Planetary Science Conference (2011.3.9) The Woodlands Waterway Marriott Hotel and Convention Center, Houston, USA
2. Takigawa A., Tachibana S., et al.: “Morphology of Presolar Corundum Grains from Unequilibrated Ordinary Chondrites” The 42nd Lunar and Planetary Science Conference (2011.3.8) The Woodlands Waterway Marriott Hotel and Convention Center, Houston, USA
3. Kataoka K., Tachibana S., et al.: “Condensation Experiments of Magnesium-Silicates Under Protosolar Disk Conditions: Condensates” The 42nd Lunar and Planetary Science Conference (2011.3.8) The Woodlands Waterway Marriott Hotel and Convention Center, Houston, USA
4. Harada M., Takigawa A., Tachibana S., et al.: “Kinetics of Spinel Formation Under Circumstellar Conditions” The 42nd Lunar and Planetary Science Conference (2011.3.8) The Woodlands Waterway Marriott Hotel and Convention Center, Houston, USA
5. Tachibana S.: “Recent Progress of Experimental Studies on Dust

- Formation Kinetics" Japanese-German Workshop "DUST IN PLANETARY SYSTEMS" (2010.9.29) Friedrich Schiller University Jena, Germany
6. Takigawa A., Tachibana S., et al.: "Anisotropic Growth of Crystalline Dust Grains in Protoplanetary Disks" Japanese-German Workshop "DUST IN PLANETARY SYSTEMS" (2010.9.28) Friedrich Schiller University Jena, Germany
 7. Tachibana S., et al.: "Experimental Study on Reaction Kinetics in the Systems of Mg-Si-O-H and Fe-S-H" Asia Oceania Geosciences Society 2010 (2010.7.9) Hyderabad International Convention Centre, India
 8. Takigawa A., Tachibana S., et al.: "Spatial Distribution of Dusts in the Circumstellar Shell of R Cas" Asia Oceania Geosciences Society 2010 (2010.7.9) Hyderabad International Convention Centre, India
 9. 片岡香織, 橘省吾, 他: "H₂-H₂O 雰囲気中での Mg-Si-O-H 系凝縮実験に向けた真空実験装置の開発" 日本惑星科学会 2010 年秋季講演会 (2010.10.6) 名古屋大学
 10. 瀧川晶, 橘省吾, 他: "晩期型星周環境推定に向けたコランダム凝縮異方性の実験的研究" 日本地球惑星科学連合 2010 年大会 (2010.5.23) 幕張メッセ国際会議場
 11. 瀧川晶, 宮田隆志, 橘省吾, 他: "晩期型星 RCas 周囲のダスト空間分布" 日本地球惑星科学連合 2010 年大会 (2010.5.26) 幕張メッセ国際会議場
 12. 永原裕子, 橘省吾, 他: "フォルステライトとガスの反応と原始太陽系星雲における化学分別" 日本地球惑星科学連合 2010 年大会 (2010.5.27) 幕張メッセ国際会議場
 13. 橘省吾: "原始惑星系円盤条件における硫化鉄形成カイネティクス" 日本地球惑星科学連合 2010 年大会 (2010.5.27) 幕張メッセ国際会議場
 14. Nagahara H., Tachibana S., et al.: "Condensation and chemical fractionation in the early solar disc" 日本地球惑星科学連合 2010 年大会 (招待講演) (2010.5.28) 幕張メッセ国際会議場
 15. Chiba H., Tachibana S., et al.: "Reaction experiments of forsterite with Si-rich gas in molecular-beam epitaxy type vacuum furnace" 41st Lunar and Planetary Science Conference. (20100304). The Woodlands Waterway Marriott, Houston, USA
 16. Tachibana S., et al.: "Kinetic condensation of magnesian silicates in reducing and oxidizing conditions" 72nd Annual Meeting of Meteoritical Society. (20090717). Faculte de Droit, Nancy, France
 17. Tachibana S.: "Experimental studies on condensation kinetics of magnesium silicates and metallic iron. Workshop on experimentation and modeling in cosmochemistry" Workshop on experimentation and modeling in cosmochemistry. (20090711). Salle d'Honneur des Universites, Nancy, France
 18. 橘省吾, 他: "Mg-Si-O 系の非平衡凝縮実験: 晩期型星周でのケイ酸塩形成への応用" 日本地球惑星科学連合 2009 年大会. (20090520). 幕張メッセ
 19. Tachibana S., et al.: "Condensation experiments of Mg-rich crystalline and amorphous silicates in vacuum" 40th Lunar and Planetary Science Conference. (20090322-28). The Woodlands Waterway Marriott, Houston
 20. Takigawa A., Tachibana S., et al.: "Condensation anisotropy of corundum around AGB stars and its effect on infrared spectra" 40th Lunar and Planetary Science Conference. (20090322-28). The Woodlands Waterway Marriott, Houston
 21. Tachibana S., et al.: "Non-equilibrium condensation in the Mg-Si-O system: An experimental study" 71st Annual Meeting of Meteoritical Society. (20080727-0801). Kunibiki Messe, Shimane
 22. Tachibana S., et al.: "Experimental constraints on silicate dust formation in protoplanetary disks: a review." Workshop on Silicate Dust in Protostars: Astrophysical, Experimental and Meteoritic Link. (20080725-26). University of Tokyo, Tokyo
 23. Tachibana S., et al.: "Condensation experiments in the system of Mg-Si-O and its application to dust formation in mass-loss winds from evolved stars" 5th Annual General Meeting of Asia Oceania Geoscience Society. (20080616-20). Busan Exhibition & Convention Center, Busan

24. 橘省吾, 他: "赤外線真空炉を用いた Mg-Si-O 系での凝縮実験" 地球惑星科学関連学会 2008 年合同大会. (20080525-30). 幕張メッセ国際会議場
25. Takigawa A., Tachibana S., et al.: "Shape effects of crystalline silicate on IR spectra and anisotropic evaporation of forsterite as a possible process for shape change" Cosmic Dust Near & Far. (20080908-12). Convention Center, Heidelberg
26. Chiba H., Tachibana S., et al.: "Solid-gas reaction experiments between forsterite and Si-rich gas" 5th Annual General Meeting of Asia Oceania Geosc ience Society. (20080616-20). Busan Exhibition & Convention Center. Busan
27. Nomura R., Tachibana S., et al.: "The role of temperatures of gas and condensed phase in condensation kinetics of metallic Iron" 5th Annual General Meeting of Asia Oceania Geosc ience Society. (20080616-20). Busan Exhibition & Convention Center, Busan
28. 野村龍一, 橘省吾, 他: "原始惑星系円盤における金属鉄の非平衡凝縮カインテイクス" 日本惑星科学会 2008 年度秋季講演会. (20081101-03). 九州大学
29. 瀧川晶, 橘省吾, 他: "星周フォルステライトダストの形状変化に関する実験的研究" 日本惑星科学会 2008 年度秋季講演会. (20081101-03). 尾州大学
30. 瀧川晶, 橘省吾, 他: "Effects of anisotropic evaporation of circumstellar forsterite on infrared spectra" 地球惑星科学関連学会 2008 年合同大会. (20080525-30). 幕張メッセ国際会議場
31. 千葉久義, 橘省吾, 他: "Solid-gas reaction between forsterite and Si-rich gas: An experimental study" 地球惑星科学関連学会 2008 年合同大会. (20080525-30). 幕張メッセ国際会議場
32. 野村龍一, 橘省吾, 他: "The effect of temperatures of gas and condensed phase on condensation kinetics of metallic iron" 地球惑星科学関連学会 2008 年合同大会. (20080525-30). 幕張メッセ国際会議場

[図書] (計 1 件)

- ① 宮本英昭, 橘 省吾, 横山広美, 鉄学-137 億年の宇宙誌 (岩波科学ライブラリー), 2009, 115

[産業財産権]
○出願状況 (計 0 件)

名称:
発明者:
権利者:
種類:
番号:
出願年月日:
国内外の別:

○取得状況 (計 0 件)

名称:
発明者:
権利者:
種類:
番号:
取得年月日:
国内外の別:

[その他]
ホームページ等
<http://www-sys.eps.s.u-tokyo.ac.jp/~tachi/>

6. 研究組織

(1) 研究代表者
橘 省吾 (TACHIBANA SHOGO)
東京大学・大学院理学系研究科・助教
研究者番号: 50361564

(2) 研究分担者

(3) 連携研究者