

# 原始太陽系星雲中での物質進化に関わるダストの振る舞い

木村 勇気<sup>1</sup>

(要旨) ガスと宇宙固体微粒子(ダスト)から成る原始太陽系星雲中で、どのような物質進化を経て我々の太陽系が誕生したのだろうか。物理化学環境が異なる他の惑星系星雲中ではどのような物質進化を経るのであるだろうか。この疑問に対して実験室で再現実験からのアプローチを行なっている。ガスが凝縮してダストを形成する際、ナノメートルサイズを経て成長していく為、成長の初期段階においてはナノ領域特有の現象を考慮しなければならない。今回、ガス中蒸発法を応用したダスト類似物の生成実験と、ナノメートルサイズの微粒子の振る舞いに加え、ダストの成長や変成に対する駆動力として、プラズマや紫外線等がどの様に寄与するかについて述べる。

## 1. ダストとナノ粒子

原始太陽系星雲内での惑星、小惑星、彗星等の形成過程を明らかにする為に、その材料となるダストの物質進化過程に制限を加える研究が、天体のスペクトル観測、隕石の分析、それに続く理論計算を中心に行なわれている。また、スターダスト探査やはやぶさ計画によってダストを能動的に採取する試みも行なわれ、太陽系形成過程に関する知見が飛躍的に高まっている。この様な探査によって持ち帰ったダストや、従来行なわれている隕石中に含まれるダストの分析に対して、実験室からのアプローチが行なわれている。ダストの類似物としての微粒子を生成し、光学スペクトルや構造などを実際のダストと比較する事で、様々な天体環境におけるダストの生成条件や変成過程などの振る舞いを明らかにし、各天体の物理化学環境を推測する研究が行なわれている。例えば、反応性のガスを燃焼させる事で作製した非晶質微粒子の凝縮過程の解明と加熱による結晶化実験や[1,2]、レーザーアブレーションによる微粒子の生成実験 [3]、ガス中蒸発法による煙の実験などが挙げられる。

ダストのサイズは小さい物で0.1  $\mu\text{m}$ 以下である。物質がこの程度のサイズになると、融点降下や拡散速度の増大、異なる安定相の出現等、通常サイズ(バルク)

では考えられない特異現象が現れる。例えば、バルクで1336 Kである金の融点は、直径5 nmで約1220 K、2-3 nmで950 Kとなる。また、金の中の銅原子の拡散係数は、バルクでは300 Kで $2.4 \times 10^{-28} (\text{m}^2 \cdot \text{s}^{-1})$ であるが、金微粒子内の銅原子の場合、 $8.3 \times 10^{-19} (\text{m}^2 \cdot \text{s}^{-1})$ となる[4]。これは金と銅が合金を作る際、バルクの拡散係数であれば数年かかるものが、ナノメートルサイズの微粒子では数秒で作られる事を示している。異なる安定相の出現においては、鉄は通常体心立方構造(BCC)を取るが、数ナノメートルではA-15型構造が現れる事などが報告されている。それ故に、ナノメートルサイズのダストを取り扱う際には、この様なナノ領域における特異現象を考慮しなければならない。

## 2. 煙の実験

第二次大戦中に赤外線追尾爆弾の赤外線検出器の改良のために10 nm以下の亜鉛微粒子の作製が行なわれたのが日本で最初の微粒子の研究のようである。その後、煙の実験として1963年から本格的に行なわれてきた[5]。煙の一例として、亜鉛線を巻いたタングステン線をアルゴンガス中で抵抗加熱した結果見られる煙の写真を図1に示す。タングステン線の加熱によって作られる熱対流によって、蒸発した亜鉛は上昇しながら冷えて凝縮し、ナノメートルサイズの微粒子を形

1. 立命館大学 理工学部 物理科学科

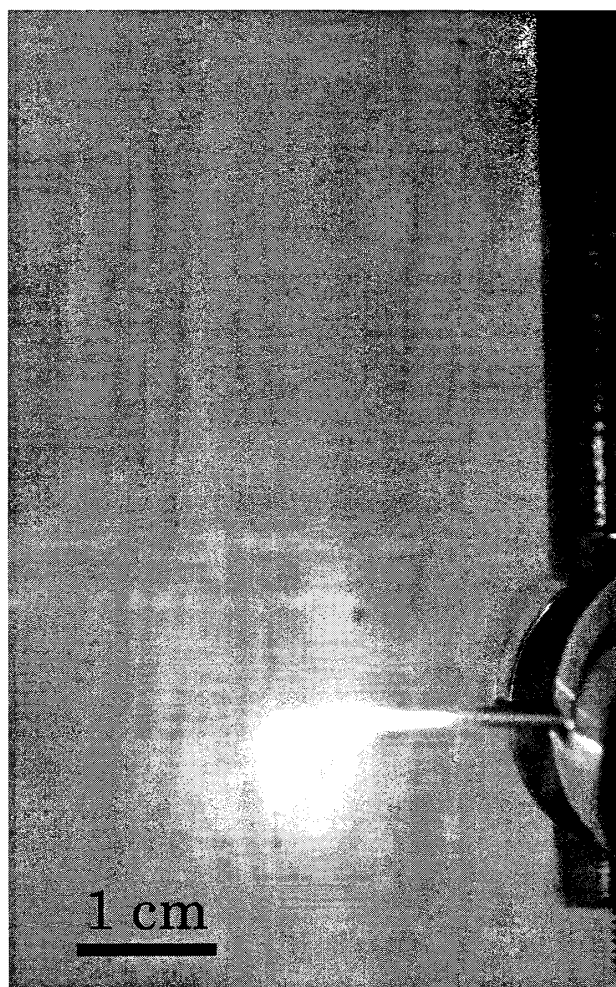


図1: タングステン線(1.0 mm φ)に亜鉛線(0.5 mm φ)を巻き、Ar ガス80 Torr 中で加熱蒸発させた煙の写真。蒸発した亜鉛が熱対流に乗って立ち昇る煙中で凝縮、成長し、微粒子が生成する。

成する。一連の煙の研究の中で、微粒子の成長過程が液滴状融合(Liquid like coalescence)と表面融解接合(Surface melting coalescence)の二つの成長様式で説明できる事が示された。両者による成長をまとめて接合成長と呼んでいる[6]。液滴状融合成長は、二つの微粒子が出会った際に表面エネルギーを下げる為に合体成長する様式であり、まるで二つの水滴が一つになるような現象である。この時、異なる種類の粒子同士の場合には、合金や化合物が生成する場合もある。表面融解接合成長は、粒子の温度が表面融解温度以上であれば起こる現象で、双晶関係を持った粒子も作られる。表面融解温度は表面デバイ温度で決まっており、例えば銀の表面デバイ温度は(111), (110), (100)の各面でそれぞれ155, 152, 140 Kであり、リンデマンの融解公式から表面融解温度は658, 632, 537 Kと見積もられる。

これは銀の融点1235 Kと比べ低い温度で成長可能な事を示している[7]。演繹すると、ダストの成長も表面融解温度を境に極端に起こりにくくなると言える。

この煙の実験は、ガスから固体微粒子が生成する点でダストの生成過程に近く、再現実験として有用な手法の一つであると考えている。実験室で取り扱いが可能な真空装置を用いて、観察可能な密度で粒子を生成する為には、平均自由行程から考えてガス圧は $1.3 \times 10^2$  Pa(1 Torr)以上は必要である。これは $1 \text{ cm}^3$ 辺り、 $10^{16}$ 個程度のガス密度であり、原始太陽系星雲中で考えられている値(水素分子 $10^6$ - $10^8$  個/ $\text{cm}^3$ )に比べてはるかに大きい。また、冷却速度は $10^3$ - $10^5$  K/sで可変であるが、この値も実際のダスト生成の場に比べて大きな値であるといえる。煙の速度は通常的手法では1 m/sのオーダーであり、微粒子の成長は蒸発源から1 cm程度で終わる。その為、粒子の形成は $10^2$  sという短い時間尺度の中で起こる。実際にダストが作られる場の平均自由行程は実験に比べて $10^8$ - $10^{10}$ 倍程度大きい為、成長にはその分時間が必要である。例えば、 $10^2$  sで成長する微粒子と比較すると、速度が同じ場合ダストは $10^6$ - $10^8$  s必要となる(1年 $\sim 10^7$  s)。ここで、ダストの成長を考えた際の平均自由行程は水素が主であり、ダストが生成する際には材料となる原子同士が会わなければならない。実験では、材料ガスの分圧は用いた不活性ガスに対して1桁程度低い値であるのに対して、ダスト生成の際には元素存在度から考えて4桁程度は低くなると考えられる。これはダスト形成の時間尺度がその分大きくなる事を意味する。大雑把に捉えると、ガスとダストの速度が実験に比べて3桁大きいと仮定すると(1 Km/s)、実験室で生成する微粒子は $10^1$ - $10^3$ 年でサブミクロンサイズに成長するダストに対応していると言える。この時、冷却速度は大きく異なるであろう。宇宙の環境を完全に再現する事は不可能である為、実験方法を工夫し、実際のダストの生成過程に演繹して議論しなければならない。さらに、微粒子の生成過程における磁場、電場、プラズマ場の影響も議論に加える必要がある。

### 3. 固相での拡散現象

これまで自発合金化のような自発拡散現象は、金属微粒子に特有の現象であるとみなされていた。つま

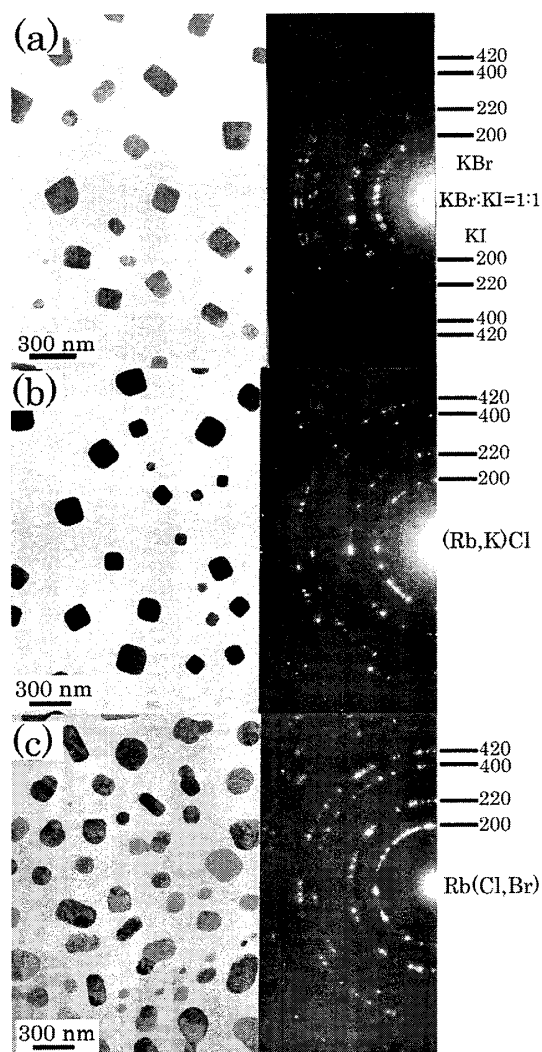


図2: 非晶質炭素薄膜上に二種類のアルカリハライドを真空中で逐次蒸着した電子顕微鏡像と電子回折パターン。(a) KBrとKI, (b) RbClとKCl, (c) RbClとRbBrをそれぞれ平均膜厚5 nmとなるようこの順序で蒸着した。(b), (c)においては、各面に対応する回折リングが1本だけ現れており、混晶が生成していることが分かる。

り、イオン結晶を始めとする金属結合以外の結合を持つ物質について、これまで自発拡散現象が見られたという報告はなかった。筆者は、真空蒸着法を用いてイオン結晶であるアルカリハライドについて実験を行ない、自発混晶化が起こる事を見出した[8]。様々なアルカリハライドの組み合わせについて系統的に実験を進めることで、自発混晶化の起こる条件がイオン半径比であることが明らかとなった。アルカリハライド系は格子定数がイオン半径でほぼ決められ、またポテンシャルが比較的はっきりしているの、Lennard-Jonesを用いた分子動力学計算やLennard-JonesとMose potentialsを用いたHamiltonian dynamicsなどの理論的な取り扱いがしやすい事から、自発拡散現象の理

解へ向けて現在研究が行なわれている。

蒸発源を二つ平行に設置し、それぞれに異なるアルカリハライド粉末を乗せ、ベルジャー内を $7 \times 10^{-4}$  Paの真空にした後、蒸発源から200 mmの高さに設置した試料採取用の非晶質炭素薄膜を張った電子顕微鏡観察用メッシュ上に室温で逐次蒸着した。図2(a)はKBrを平均膜厚5 nmとなるように蒸着した後、KIを同様に5 nm蒸着した逐次蒸着膜の電子顕微鏡像と対応する電子回折パターンである。電子顕微鏡像から100 nmサイズの粒子が、NaCl型構造を反映した立方体の形体で存在していることが分かる。非晶質炭素薄膜上に蒸着したアルカリハライドは、島状に成長した結果、数10 nmの厚みを持っており、平均膜厚は蒸着量を制御するパラメータとなっている。電子回折パターンをみると、二本の近接したリング中に見られる回折点を中心方向に対して二つ並んでいる様子が見られる。これは、後から蒸着したKIがKBr上にエピタキシャル成長(結晶学的方位を揃えた成長)した結果である。つまり、二つのアルカリハライドは拡散を起こさず、自発混晶化は起こらなかった。図2(b)に同様に作製したRbClとKClの逐次蒸着膜を示す。図2(a)とは異なり、電子回折パターンのそれぞれの面に対応した回折リングが一本線で見られる事から、アルカリイオンである $\text{Rb}^+$ と $\text{K}^+$ の拡散が起こり、RbClとKClの混晶が作られたことが分かる。同様に、RbClとRbBrの系においてはハロゲンイオンである $\text{Cl}^-$ と $\text{Br}^-$ の拡散により、図2(c)に示すように自発混晶化が起こった。RbCl-RbBr系における混晶の格子定数を金の標準試料からの回折リングを用いて補正して決定したところ0.675 nmとなり、ベガーズ則に乗った場合の0.6725 nmよりも少し大きい値となった。さらに、RbClとRbBrの蒸着比率や蒸着順序を変えても同様に自発混晶化は見られた。

自発合金化現象は、あらゆる合金系について起こるのではなく、生成熱が負で、なおかつ原子半径の違いが14%以下のときに起こりやすいと言われている。金の原子半径は0.144 nmであり、銅の原子半径は0.128 nmであるので、その原子半径の違いは12%であり、この条件をみたしている。これに対してアルカリハライド系では、系統的な実験により、拡散する陽イオン、陰イオンだけでなく、結晶を構成しているすべてのイオン半径が近い事が自発拡散現象の起こる条件であり、最小のイオン半径 $R_s$ と最大のイオン半径 $R_l$

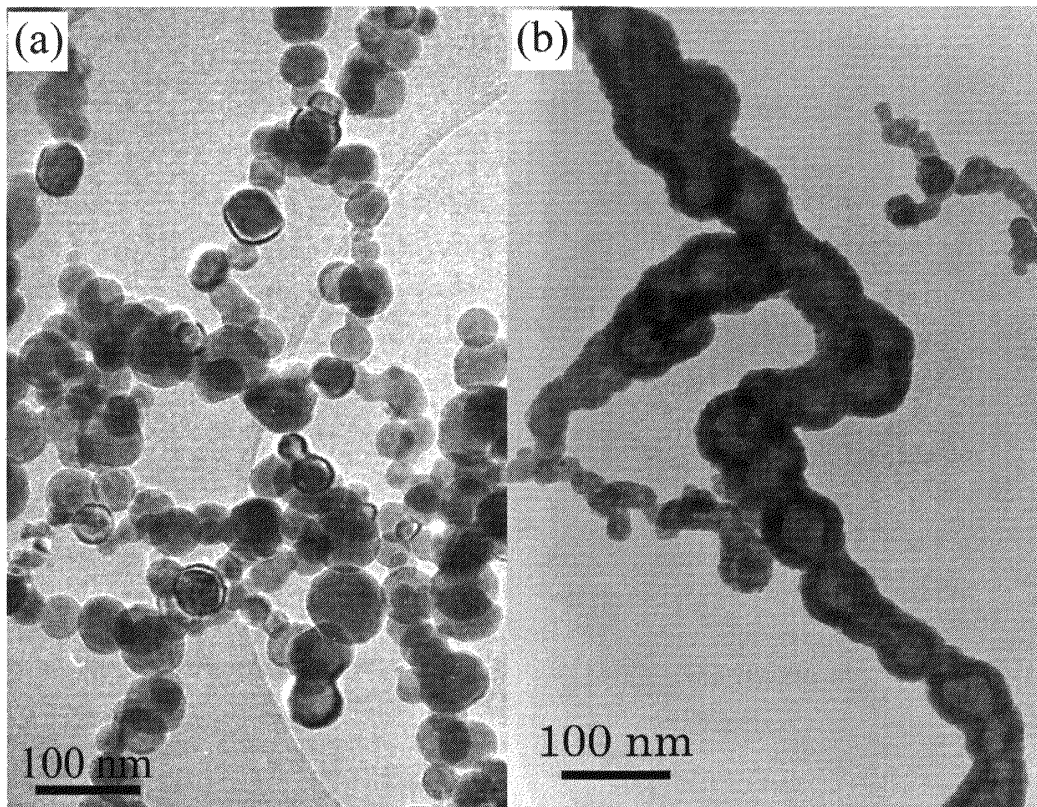


図3: ガス中蒸発法で作製した鉄微粒子(a)に硫黄を蒸着した結果生成したピロタイト微粒子(b). 表面に堆積した硫黄側へ鉄が拡散する事で球殻状の微粒子が生成した.

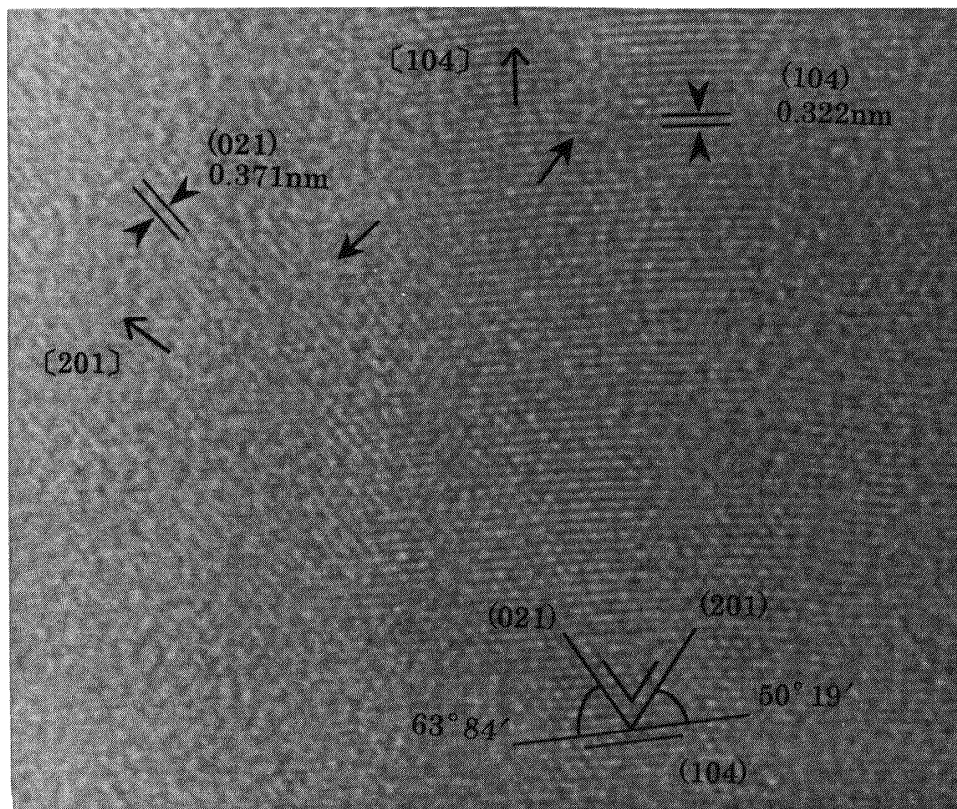


図4: 真空蒸着法により生成した非晶質炭素薄膜に白色の放射光を200秒照射した後の高分解能電子顕微鏡像.  $(\alpha+\beta)$ -type のカルビン結晶に対応する格子縞が見られ,  $[104]$ と $[201]$ 方向へ結晶が成長している.

の比が $R_s/R_l \geq 0.68$ の条件で起こる結果となった。典型的なイオン結晶であるアルカリハライドは、金属微粒子の場合よりも100倍も大きなサイズで自発混晶化現象が起こる事が明らかとなった。

拡散現象を利用したピロタイト粒子の生成実験を例に示す。図3に示すように鉄微粒子上に硫黄を蒸着すると、鉄が硫黄側に拡散して室温でピロタイト相が生成する[9]。硫黄より鉄の多い原始太陽系星雲中では、トロイライトが生成されると予測されている。これに対して、惑星間塵中ではピロタイトが支配的に観察されている結果を、固相での拡散現象を用いて説明する事ができる。1気圧下での硫化水素と鉄の反応による558-1173 Kでの硫化鉄の形成実験に対して[10]、より低温でも反応が進むことが分かる。硫黄は主に硫化水素ガスとして存在していると考えられているので、硫黄と鉄との反応は、原始太陽系円盤の外側で紫外線照射( $\lambda \leq 270$  nm)による硫化水素の分解が起こり得た、限られた領域での出来事かもしれない。微粒子では大きな拡散速度による固相反応が起こるが、他のナノ領域における特異現象同様、理論計算による取り扱いが容易ではない事から、原始太陽系星雲中での物質進化とダストの振る舞いを明らかにする為には実際に実験を行なうことが必要である。ダストの成長を議論する為には、今後珪酸塩を含めた酸化物の微粒子に対して自発拡散現象を明らかにし、低い温度での合金化や成長が起こるタイムスケールに関して議論する事が有用であると考えている。

## 4. ダストの成長と駆動力

宇宙では至る所でプラズマ場や電磁波が照射される領域が存在している。例えば太陽から $10^5$  kmでのプラズマ密度と電子温度はそれぞれ $10^8$  cm<sup>-3</sup>と $10^6$  K程度であると見積もられている。また、太陽のコロナからはX線領域で $10^{20}$  Jオーダーのエネルギーが放射されており、活発な原始太陽ではそれよりも2桁程度大きな値であったとの見積もりがなされている[11]。ダストは高温のガスが冷えて凝縮する過程で作られると信じられており、多くの場合実際にこの過程で作られていると考えられる。実験室での再現実験によるアプローチもこの環境を意識した中で行なわれている。ここで、プラズマや電磁波がダストの成長に及ぼす影響につい

てはあまり議論されていない。特に、低質量放出ガスからの凝縮など、希薄なガス中でダストが作られる際には、熱による駆動力よりも、プラズマや電磁波を駆動力とした成長が支配的になる事が考えられる。そこで、物質科学的な視点で行なってきたプラズマ中での微粒子生成や、放射光照射による実験を宇宙環境での出来事に見立てる事で、原始太陽系星雲中での物質進化過程におけるプラズマや光の効果について議論する。

### 4.1 放射光照射による結晶化

真空蒸着法により作製した非晶質炭素薄膜に白色の放射光を照射した結果、カルビン結晶が生成することを見出した。カルビンは一次元の直鎖状の構造を持った炭素の同素体で、sp混成軌道とそこに2個の $\pi$ 電子が共鳴した化学結合からなっており、 $\pi$ 電子の共鳴の仕方によって一重結合と三重結合が交互に繰り返される $\alpha$ -タイプと呼ばれるポリイン(polyynes)と、二重結合が連続する $\beta$ -タイプと呼ばれるクムレン(cumulene)との二種類が知られている[12]。これらはいずれもその結合性から、一次元性の新たな物質として注目されている。銀河の分子雲中には一重結合と三重結合が混在するポリインが存在していると言われており[13]。また、星間塵として存在している可能性も指摘されており、未同定の赤外バンドやラジオ波の起源ではないかという提案もなされた[14]。しかし、カルビンは生成が難しく、決まった合成法も確立していない事から、未知の部分が多い物質である。

1968年に隕石の衝突痕で見つかったカルビンは[15]その後隕石中からも発見されたが、その存在に関して否定的な報告と肯定的な報告の両方がなされている。最近、隕石の衝突痕で見つかったものと同じタイプのカルビンのナノメートルサイズの結晶が隕石中から改めて同定された[16]。もし本当に宇宙や隕石中にカルビンが存在しているとする、どのような生成過程が考えられるだろうか。これまで、ガスが冷える過程を考え、3150 K以上の高温のガスから生成するプロセスが提案されている[12]。これに対し、X線から真空紫外線領域の光の照射による原始太陽系星雲中でのカルビン結晶の生成の可能性について述べる。

立命館大学の放射光施設の二本のビームラインを個別に用いて非晶質炭素薄膜に軟X線領域に強度のピークを持つ、8 KeV以下と1 keV以下のエネルギーの白

色の放射光を照射した。フォトンフラックスはそれぞれ、 $7.5 \times 10^{15}$ と $10^{11}$  photons $\cdot$ s $^{-1}$  $\cdot$ mm $^{-2}$ のオーダーで、400秒と30分照射した。透過型電子顕微鏡観察の結果、どちらの放射光においても図4に示すような隕石中で見つかっているものと同じタイプ(chaoitと呼ばれる)( $\alpha + \beta$ -type)のカルビン結晶が成長している事が分かった[17]。

原始太陽のコロナから放射されるフォトンフラックスは、太陽と木星間に相当する5 AUで $6.4 \times 10^7$  photons $\cdot$ s $^{-1}$  $\cdot$ mm $^{-2}$ であったと考えられる[18]。今回、 $10^{11}$  photons $\cdot$ s $^{-1}$  $\cdot$ mm $^{-2}$ のフラックスで30分照射した際の全照射量は $1.8 \times 10^{14}$  photons $\cdot$ mm $^{-2}$ であり、ガスによる遮蔽の効果を無視すれば、カルビン生成に必要なフラックスが32日間で稼げる計算になる。原始太陽系星雲での数千万年のタイムスケールに対して、一瞬の出来事と言える。それ故に、3150 K以上の高温のガスから直接カルビン結晶が生成するプロセスよりも、中心星からの光によって、非晶質の炭素質粒子から生成する方がより支配的になり得ると考えられる。

## 4.2 プラズマ場中での微粒子生成と同位体分別

水素、酸素、モノシラン(SiH $_4$ )、ヘリウムによって導入された鉄ペンタカルボニル(Fe(CO) $_5$ )ガスを油回転ポンプで引きながら全圧90 Torrに保ち、銅の電極間に生じさせた放電中で微粒子を生成する実験を行なった[19]。室温での凝縮の為、生成した微粒子は多くの相を持ち、不均質な試料となることが予想されたが、実際には非常に均質な組成を持った非晶質の鉄珪酸塩微粒子が生成した。熱を駆動力として生成した際に同時に作られるシリカや鉄、酸化鉄などの微粒子はまったく見られなかったことから、プラズマを駆動力として微粒子が生成する際には、異なる成長過程を経ている事が分かる。水素、酸素、モノシランガスからの生成実験においては、水酸化珪酸塩(H $_2$ Si $_2$ O $_4$ )微粒子がガスから直接生成した。プラズマ中で作製した微粒子の赤外スペクトルはピーク位置や強度などが熱を駆動力とした場合とはわずかに異なる特徴を示した。これは、ダストの生成を支配している駆動力を明らかとする事が様々な環境でのダストの生成過程の理解の為に必要である事を意味している。

さらに、プラズマ場中で生成した珪酸塩微粒子が非質量依存の酸素同位体分別を示す事も明らかとなった

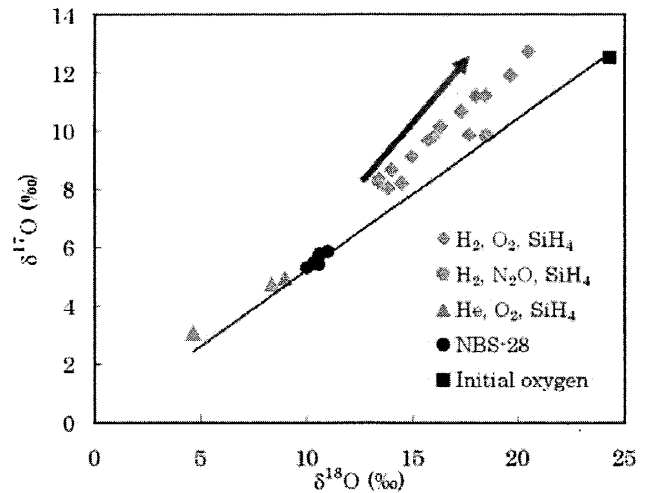


図5: 標準海水を基準とした三酸素同位体図。直線は傾き1/2の地球の同位体組成を示している。Indexはダストの生成に用いたガスの種類。矢印の方向へ質量に依存しない酸素の同位体分別が起こっている。

[20]. 太陽系形成時に作られたカルシウムとアルミニウムに富む難揮発性含有物(CAI)等は質量に依存しない酸素同位体分別を示すことが知られており、地球や月、隕石の酸素同位体比とは大きく異なっている。この酸素同位体比は、太陽系形成時にダストが生成した環境を反映したもので、惑星系の形成過程に関する貴重なトレーサーとなる為、隕石中に含まれるダストの同位体組成の分析から、太陽系の材料となった物質や原始太陽系星雲中での物質進化の歴史が議論されている。これまで、質量に依存しない酸素の同位体分別を引き起こす現象は、地球の成層圏において起こっている事が知られており、実験的にも放電中で酸素分子からオゾンが生成する過程で起こる事が報告されている[21]。また、超新星起源の $^{16}$ Oの混入によって同位体異常を示す鉱物が生成する可能性も指摘されてきた[22]。最近では、紫外線による光分解と自己遮蔽効果を元にした議論もされている[23]。太陽系固体物質の同位体組成はかなり均質であり、地球の酸素同位体組成は図5に示す三酸素同位体図上において質量依存の分別を示す傾き1/2の直線に乗る。一方、CAI等は傾き1の質量に依存しない分別を示す直線上に乗る事が知られており、質量に依存しない酸素の同位体分別が原始太陽系星雲中で起こっていたことを示唆している。プラズマ中で生成した珪酸塩微粒子は、図5の矢印で示すように地球の質量依存の分別線とは異なる傾きを持っていた。この実験結果から、質量に依存しない酸素の同

位体分別を説明し、太陽系形成のプロセスを明らかにする一連の研究の中で、プラズマ場によるダスト生成の効果を加えた議論が可能な状況となった。

## 5. まとめと今後の展開

ダストはサブミクロンサイズであるため、その成長や変成過程においてナノ領域の特異現象を考慮する必要がある。天体の様々な環境に、X線、紫外線等の電磁波やプラズマ等が存在していることから、ダストに対して少なからず影響を与えていると考えられる。また、非質量依存の同位体分別を獲得するには、外場が必要であることは間違いない。どの様な「場」がどの程度ダストの成長や変成、同位体分別等を支配しているのかを明らかにすることは、原始太陽系星雲内での物質の進化過程を理解する上でも重要であると考えている。これまで物質科学的な視点から行なってきた微粒子の研究をさらに発展させ、惑星科学分野へ寄与していきたい。

## 謝 辞

共同研究者の堀内千尋教授(立命館大学)、J. A. Nuth III 博士(NASA/GSFC)に感謝致します。放射光照射は、中山康之元教授、難波秀利教授と立命館大学の放射光グループ、同位体組成分析は、M. H. Thiemens 博士とS. Chakraborty 博士(カリフォルニア大学サンディエゴ校)に行なって頂きました。ここで改めて感謝致します。その他にも非常に多くの方々との議論が筆者の研究全般に渡って刺激となりました。査読者の橘省吾博士には適切なご指摘を頂き、再考する機会が得られました。

## 参考文献

- [1] Nelson, R. et al. 1989, Proc. Lunar Planet. Sci. Conf. 19th, 559.
- [2] Nuth, J. A. et al. 2002, Meteoritics & Planetary Science 37, 1579.
- [3] Henning, Th. (Ed) 2003, Astromineralogy (Springer, GERMANY).
- [4] Mori, H. et al., 1991, Philosophical Magazine

- Letters 63, 173.
- [5] Kimoto, K. et al., 1963, Japanese Journal of Applied Physics 2, 702.
- [6] Kaito, C., 1978, Japanese Journal of Applied Physics 17, 601.
- [7] Kaito, C., 1985 Japanese Journal of Applied Physics, 24, 261.
- [8] Kimura, Y., et al., 2002, Physica E 13, 11.
- [9] Kimura, Y., et al., 2005, ICARUS 177, 280.
- [10] Lauretta, D. S., et al., 1996, Icarus, 122, 228.
- [11] Dorren, J. D., et al., 1995, ApJ 448, 431.
- [12] Heimann, R. B., et al., 1999, Carbyne and Carbynoid Structures. Kluwer Academic Publishers, Dordrecht, Boston, London.
- [13] Thaddeus, P., 1981, Philosophical Transactions of the Royal Society of London Series A, 303, 469.
- [14] Forrest, W. J., et al., 1981, ApJ, 248, 195.
- [15] Goresy, A. El, and Donnay, G., 1968, Science 161, 363.
- [16] Vis, R. D., et al., 2002, Meteoritics & Planetary Science 37, 1391.
- [17] Kimura, Y., et al., 2002, Carbon 40, 1043.
- [18] Dorren, J. D. et al., 1995, ApJ 448, 431.
- [19] Kimura, Y. and Nuth III, J. A., 2007, ApJ 664, 1253.
- [20] Kimura, Y., et al., 2007, Meteoritics & Planetary Science, 42, 1429.
- [21] Thiemens, M. H., and Heidenreich, J. E., 1983, Science, 219, 1073.
- [22] Clayton, R. N., 1978, Annu. Rev. Nucl. Part. Sci., 28, 501.
- [23] Yurimoto, H., and Kuramoto, K., 2004 Science, 305, 1763.