68

# ハイパークールド・メルトからの 放射状輝石コンドリュール形成

長嶋 剣', 塚本 勝男'

## 1. 最近のコンドリュール組織の 再現実験

**隕石に多量に含まれるわずか数ミリのコンドリュー** ルは原始太陽系形成初期にできたことが分かってい る、そのため、当時の環境の情報を読みとろうとして コンドリュールに関する多数の研究がなされている. バードオリビンコンドリュール (図 1a)の特異な内部組 織も研究者を魅了してきたテーマである.

最近、バードオリビンコンドリュールの結晶組織の 成因を明らかにしようという実験が行われ始めてい る. これまでは, 電気炉内のループ状ホルダーにメル ト球を保持しながら徐冷して結晶化させる方法がと られていた[1]. それに対して新しい研究では,メル ト球を空間に浮遊させる無容器実験法により容器や ホルダーとの接触部をなくす工夫をし,現実の宇宙環 境をシミュレートした. その結果,これまで気づかな かった以下のことが明らかになってきた. (a) メルト球 を浮遊させると、ホルダーとの接触部からの不均質核 形成が抑制され,通常の低過冷却状態では結晶化が 起こりにくい. そのため, バードオリビンコンドリュー ルメルトの結晶化は300~800 Kという非常に大きな 超高過冷却状態で起こる.(b)超高過冷却状態で結 晶化するため, φ 2mm 程度のバードオリビンコンドリ ユールは0.1~1秒程度の短時間に形成され,結晶化 時の結晶化潜熱の発生が顕著である. (c) その潜熱 の発生はバードオリビンコンドリュールの特徴:周辺 部のリム組織と内部のバー状組織が共存する二重構 造,に決定的な働きをする[2].

これらの実験結果をもとにしたバードオリビンコン ドリュールの形成モデルが作られてきた. 最近では この特異な組織を解明するためにフェーズフィールド



図1 天然コンドリュールの偏光顕微鏡像. (a) バードオリビンコンドリュール (Allende 隕石より). 周辺部に見られるリム組織と内部の平 行に並んだ棒状組織が特徴. リム組織とバー組織の結晶方位は同一, かつ, 化学組成も等しい. (b) 放射状輝石コンドリュール (Sahara 隕石より). コンドリュール表面から伸びる放射状組織が特徴.

ハイパークールド・メルトからの放射状輝石コンドリュール形成 / 長嶋・塚本

モデル[3]によるシミュレーションも始まっている[4]. これらの研究から,バードオリビンコンドリュールでリ ム組織が形成されるためにはメルト表面と内部で熱 的な不均質が生じる必要があることがわかってきた. そのため,過去の再現実験結果として得られた100 ~1000 K/hourという冷却速度[1]よりも遥かに速い, 放射冷却律速のような急冷が必要となる.この結論 は、ショックウェーブによるコンドリュール形成モデル [5,6]に見られるような加熱後に数百度急冷されるプ ロセスと調和的である.

このように解明されつつあるバードオリビンコンド リュールの組織形成に対して,放射状輝石コンドリ ュール(図1b)組織の形成メカニズムは解明されてい ない.この組織の形成メカニズムを理解する基礎と して,まず輝石の結晶成長の特徴を知らなければな らない.

#### 2. 困難な輝石の核形成

ここでは輝石の中でも放射状輝石コンドリュールの 主成分であるエンスタタイト (MgSiO<sub>3</sub>)について述べ る. バードオリビンコンドリュールの主成分であるフォ ルステライトメルトに比べ, エンスタタイトメルトは粘性 が高く核形成が起こりにくい.しかし,容器内のメルト からエンスタタイトを作る場合なら,10~20 Kの過冷 却度を作れば結晶化が始まる.ただし,前述のとお りコンドリュールが形成される宇宙空間ではコンドリ ュールメルトは容器などと接触しない非接触状態で あるため,核形成が大幅に抑制されることが予想さ れる[7].そこで,宇宙空間をシミュレートした無容器 実験を行った.

ガスジェット音波浮遊炉を使用すると, 無重力状態 にしなくても高温状態のメルト球を長時間空間に浮 遊させることが可能である.実験装置は宇宙科学研 究所のガスジェット音波浮遊炉を使用した.無容器実 験は, ガラス化した直径2~3mmのエンスタタイト球 を浮遊させながらCO<sub>2</sub>レーザーで加熱溶融させ, レ ーザーパワーを調節して冷却し結晶化を試みるとい う手順で行った.メルト球の結晶化の様子をマクロに 観察するため接写レンズを備えたCCDカメラを用い た.メルト球の温度履歴は球表面の1mm径の範囲を 2波長放射温度計(サーモスポットセンサー)で測定 した.



ところが実験を行ってみると,結晶化による温度上

図2 ガスジェット浮遊炉におけるエンスタタイトメルト浮遊結晶化実験の温度履歴の一例.何度も融点以上に温度を上げて完全溶融. その後レーザーのパワーを下げて過冷却状態にした.放射温度計で結晶化潜熱を監視していたが結晶化は確認出来ず試料はガラス化 した.途中で温度が何度も上昇しているのはガラス化した試料を再溶融するためレーザーパワーを上げたことによる.

70

昇は放射温度計のデータからもCCDカメラからも確 認されずガラスしか形成されなかった.これは核形 成までの時間的猶予が無かったためと考え,1000秒 間にわたって様々な温度履歴を与えてみたが結晶化 は起こらなかった(図2).

このように宇宙空間をシミュレートした無容器実験 の結果,エンスタタイトメルトからの均質核形成は非常 に困難であることがわかり,結晶化をさせるためには 容器壁や不純物粒子などとの接触による不均質核形 成[7]が不可欠であることが分かった.

### 3. メルト表面からの放射状結晶

不均質核の存在が結晶化に重要な役割を果たし ている例を示そう.ここでは,航空機を放物飛行させ ることで得られる微小重力環境を利用して結晶化実 (a)



 図3 (a) Cosmic Material Synthesizer (CMS)装置の原理図.
 (b) 微小重力実験のための航空機内ラック(W700mm)にセット アップ中のCMS装置.100WのCO<sub>2</sub>レーザーで試料を加熱溶
 融.結晶化は3方向からの光学その場観察,放射温度計による温度測定、メルト周囲の温度分布・ガス濃度分布の干渉計によるリアルタイム測定が可能.

験を行った. 微小重力環境ではメルト内の対流が抑 制されるため, 核形成も抑制される[7].

実験は微小重力実験用に新たに開発した Cosmic Material Synthesizer (CMS)装置(図3)で行った. CMS 装置はマクロな CCD カメラだけでなく、メルト周 囲の温度やガス濃度を測定するレーザー干渉計を備 えた高分解能その場観察装置でもある[8].加熱には 100W の CO<sub>2</sub> レーザーを用いているので試料の融解 を瞬時に行うことができる.また、温度は多波長放射 温度計(ジャパンセンサー製ファイバ型放射温度計 FTZ2)を利用し、 $\phi$  0.9mmの局所的な温度を求めた. 試料は直径約 2mmのエンスタタイト球を用い、これを  $\phi$  0.1mm 白金ワイヤーループで保持した.



図4 CCD カメラ映像による結晶成長のその場観察。微小重 力環境下におけるエンスタタイト結晶化の連続写真. 試料の直 径2.6 mm. 試料右上部の白金ワイヤー接触部より結晶化が始 まり、約5秒で試料全体が結晶化する.



図5 結晶化潜熱による温度上昇.加熱溶融後にレーザーの 電源を切ることで冷却される(i).試料温度が融点となった時をt = 0 sec.とし、この時間以降のメルトは過冷却状態である.約4 秒後に結晶化が始まり(iii)、結晶化潜熱による温度上昇が見ら れる.この例だと平衡から遥か離れた480 Kの過冷却度で結 晶化が始まっている.5.5 sec., 8.5 sec.における試料の像はそ れぞれ図4の5.5 sec., 8.5 sec.に対応する.

その結果,これまでの浮遊実験では決して結晶化 しなかったエンスタタイトであるが,白金線と接触す る今回の実験で初めて結晶化が確認された(図4~ 6).結晶化は白金ループから不均質核形成を起こし, オリビンコンドリュールのようにリムを形成しないこと (図6a),かつ,白金接触部以外である内部からの核 形成は皆無であること(図6b),などが分かった.これ らは,隕石に含まれる放射状輝石コンドリュールの主 要な特徴と合致する.この時の結晶化温度は1000~ 1150℃であり,この組成の融点が1562℃<sup>±1</sup>であるこ とから,400~550 Kという超高過冷却状態から放射 状組織が形成することがわかった(図5).

天然の放射状輝石コンドリュール組織の大きな特 徴の一つに,放射状結晶は表面の一点で核形成し内 部に向かって広がり内部では核形成しないことがあ げられる.これは上記の浮遊実験から容易に説明が できる.つまり,宇宙空間に形成されたエンスタタイト メルト球は,そのままでは結晶化しないでガラス化す るであろう.それを防ぐため,メルトの固化が完了す (a) る僅かな時間内に何らかの不均質核をメルト表面に 捕獲する必要がある.

それでは宇宙空間における不均質核とは何であろ うか.その有力な候補としてダスト微粒子があげられ る.宇宙空間というと非常に清浄な環境が想像され がちであるが、コンドリュールが形成するような宇宙 空間は決して清浄ではなくむしろ dusty な環境であ る.なぜならコンドリュール形成時には惑星の材料物 質であるダスト微粒子が原始太陽系星雲内に大量に 存在していたからである.このような dusty な環境で は急速に冷却しているコンドリュールメルトが固化す るまで容易にダスト微粒子と衝突するであろう.

このことは,放射状輝石コンドリュールメルトが形成 温度に達するまでの時間と,不均質核となったダスト 微粒子がメルトに衝突するまでの時間が同じであっ たことを示す.よって,コンドリュールメルトとダスト微 粒子の相対速度から,コンドリュール形成環境におけ るダスト微粒子密度を推定できるのではないかと考 えられる.



図6 白金ワイヤー接触部からの不均質核形成.放射状組織が形成する際には必ず白金ワイヤー接触部を起点として成長している.(a) 過冷却度480 K,(b) 過冷却度650 K以上のメルトから結晶化した試料の透過顕微鏡像.(b) の場合は全体的にガラス化しているが,白 金接触部周辺のみ結晶が成長していることがわかる.

注1:相平衡図によれば、純粋なエンスタタイトメルトは冷却に伴いフォルステライト結晶を晶出する.しかし、本論文ではエンスタタイト結晶 が晶出した場合について議論しているため、エンスタタイト結晶とエンスタタイトメルトが共存する平衡温度を決める必要がある.そ こで、よりSiO2-rich な組成において相平衡図上に表れているエンスタタイトの液相線を延長し、平衡温度を1562℃と求めて過冷却 度の計算などもそれに従った.

![](_page_4_Figure_2.jpeg)

図7 結晶成長速度過冷却度依存性の違いから見た(a) バード オリビン、(b) 放射状輝石コンドリュールの形成モデル。左のグ ラフは過冷却度(横軸)に対する結晶成長速度(縦軸)を表して いる、メルトは放射により表面から冷えるので内部の温度(Tln) に比べて表面の温度(TS)は低い。よって(a)では表面の成長速 度が速くリムが形成される。しかし(b)の場合粘性の影響が強く 過冷却度が大きくなりすぎると成長速度が遅くなるため、表面の 成長速度の方が遅くなりリムは形成されない。

## 4. 放射状輝石コンドリュールに 見られないリム組織

これまでの実験結果を総合すると放射状輝石コン ドリュールは次のような経過を辿ったことになる.(a) 急冷されながら400~550 Kの超高過冷却状態にな るが結晶化は起こらない,(b) 星雲内のダストが衝突 しメルト表面で不均質核形成が生じる.(c) 結晶化は 表面から内部へと放射状に進行しコンドリュールが 完成する.

このことから放射状輝石コンドリュールもバードオ リビンコンドリュールと同様に超高過冷却メルトから 形成することがわかった.ただし両コンドリュールの 結晶組織は大きく異なり,特にバードオリビンコンドリ ュールに見られるリム組織は放射状輝石コンドリュー ルでは全く見られない.

これらの違いは過冷却度に対する結晶成長速度依 存性の違いで説明できよう. コンドリュールメルトは放 射冷却で表面から冷える. 一般にメルトからの結晶 成長では、メルトの過冷却度の増大に伴い結晶の成 長速度や核形成速度も増大する.そのため表層部の 成長速度が内部より速くなりリム組織が形成される (図7 a).これに対して、輝石や斜長石メルトからの 結晶化では過冷却度が大きすぎるとかえって成長速 度が低下する [9].それは低温になるにつれてメル トの粘性が急激に増大するためである.すなわちエ ンスタタイトメルト表面で始まった結晶化は粘性が高 い表面へは伸びず内側へ優先して伸びることとなる (図7 b).この結果として放射状輝石コンドリュールは リム組織を持たない.

## 5. ハイパークーリング状態のメルト

コンドリュールは超高過冷却状態のメルトからの結 晶化であることがわかったが,このような状態からの 結晶化は通常経験する平衡温度付近での結晶化とは 大きく異なる.メルトからの結晶成長は固液界面で発 生する結晶化潜熱を逃がす過程が律速となっている ため過冷却度と結晶組織は強い相関があり,一般に 過冷却度が増すにつれて平面で囲まれた多面体結 晶,樹枝状,放射状へと変化していくことが知られて いる.このような過冷却度の増大に伴う結晶組織の 変化は,結晶化潜熱を効率良く逃がすために界面面 積を増やすことが原因である.

ところが臨界値を超えた高過冷却メルト,すなわち 低温のメルトは十分に吸熱能力をもつため,固液界 面で結晶化潜熱が発生しても融点まで温度が上昇し なくなる.すると,結晶は潜熱を系外に逃がす必要が 無い.よって過冷却度が増すに従い上記とは逆に, 放射状,樹枝状,多面体結晶と変化する[10].この臨 界温度がハイパークーリング・リミット(Δ T<sub>hyp</sub>)[11]と して知られており(1)式のように表せる.

 $\Delta T_{\rm hyp} = \Delta H_{\rm f} / C_{\rm p}^{\rm L} \tag{1}$ 

ここでΔH<sub>c</sub>は結晶化エンタルピー, C<sub>c</sub> は液相の比

熱である. この値は結晶化潜熱による温度上昇の理 論的最大値を示しており、この値よりも大きい過冷却 度のメルトをハイパークールド・メルトと呼ぶ. ただ、 大半の物質においてハイパークールド・メルトとなる 温度は、現実ではあり得ないような超低温であること が多い. ところが、エンスタタイトメルト、フォルステライ トメルトに対して計算してみると、それぞれ1050℃、 1300℃という値になりコンドリュール形成温度の実験 値に近づく(図8). すなわちコンドリュールは地上で はありえない超非平衡状態であるハイパークールド・ メルトからの結晶であることを示している.

このハイパークーリング・リミットの存在は古くから 理論的には予想されていた.しかし,このような超過 冷却状態を得ることができるようになったのは,微小 重力環境や浮遊実験設備がこの種の実験に利用で きるようになった極めて最近のことであり,ようやく理 論と実験の対比が可能となってきた[12].それにもか かわらずこの極限状態にあるメルトからの結晶化は, 従来の常識で理解できる範疇を大きく超えていること が分かりつつある.そのため,コンドリュールの形成 という古くからの問題も,結晶成長学にとってホットな 話題の一つになりつつあるのが現状であり,数学,理 論物理分野なども巻き込んだコンドリュール組織形成 の議論が現在も進んでいる.

#### 6. 謝辞

本研究は(財)日本宇宙フォーラム(JSF)の宇宙 環境利用に関する地上公募研究(核形成に伴う, 熱・物質移動様式のその場観察による研究,代表 者:塚本勝男)の一環として行われたものである.浮 遊実験では宇宙科学研究所のガスジェット音波浮遊 炉を利用させていただいた.また多くの未発表デー タの公表を許可していただいたJSFや宇宙開発事業 団に感謝する.また,佐藤久夫(産業技術総合研究所), 小畠秀和(東北大学),横山悦郎(学習院大学)らの研 究上の協力,西村良浩(北海道大学)の執筆上の協 力に感謝する.

![](_page_5_Figure_7.jpeg)

図8 (a) 放射状輝石, (b) バードオリビンコンドリュールの形成温度.中央縦軸は温度 (C)で左端縦軸がエンスタタイトメルトに対する過冷却度,右端縦軸がフォルステライトメルトに対する過冷却度を表している.灰色部分は実験的に放射状輝石コンドリュール,バードオリビンコンドリュール類似の結晶組織が形成された温度を表している.点線はハイパークーリング・リミットを表しており,いずれのコンドリュールもそれに達するような超高過冷却メルトから形成することがわかる.

74

#### 参考文献

- [1] Lofgren, G. E., 1996, in Chondrules and the Protoplanetary Disk, 187.
- [2] ①塚本勝男, 佐藤久夫, 小畠秀和, 高村禅. 栗林一彦, 1999, 日本惑星科学会誌 8, 261. ②
  Tsukamoto, K., Satoh, H., Kobatake, H., Takamura, Y., Kuribayashi, K., in preparation.
- [3] Sekerka, R. F., 2001, in Advances in Crystal Growth Research, 21.
- [4] 横山悦郎, 塚本勝男(未発表).
- [5] Iida, A., Nakamoto, T., Susa, H. and Nakagawa, Y., 2001, Icarus 153, 430.
- [6] Miura, H., Nakamoto, T. and Susa, H., 2002, Icarus 160, 258.
- [7] Liu, X. Y., Tsukamoto, K. and Sorai, M., 2000, Langmuir, 16, 5499.
- [8]小畠秀和,塚本勝男,横山悦郎,佐藤久夫,野 沢純,2003,日本マイクログラビティ応用学会誌
   20,137.
- [9] 長島剣, 2002, 東北大学大学院理学研究科修 士論文.
- [10] Trivedi, R. and Kurz, W., 1994, Acta Metall. Matter, 42, 15.
- [11] Glicksman, M. E. and Schaefer, R. J., 1967, Journal of Crystal Growth 1, 297.
- [12] Nagashio, K. and Kuribayashi, K., 2001, Acta Materialia 49, 1947.