

特集「物質科学的研究・観測的研究で探る惑星系の誕生と進化」

原始惑星系円盤における結晶質シリケイトの形成：非晶質シリケイトの加熱実験

村田 敬介¹, 茅原 弘毅¹, 土山 明¹, 小池 千代枝¹,
高倉 崇¹, 野口 高明², 中村 智樹³

(要旨) 原始惑星系円盤におけるシリケイトの結晶化過程を調べるために、コンドライト組成を持つ非晶質シリケイトの加熱実験を行った。主にオリビンの結晶化が見られ、加熱試料の赤外吸収スペクトルのフィッティングから結晶化度を求めた。求めた結晶化度の時間発展を Johnson-Mehl-Avrami の式を用いて解析したところ、不均一核形成と拡散律速による結晶成長を伴う結晶化モデルでうまく説明できた。これは非晶質試料中に微小な結晶が存在することと調和的であり、星周シリケイトの円盤での結晶化を考える上で、赤外観測では検出され得ない微小結晶の存在がその結晶化プロセスに大きな影響を及ぼすことが示唆される。

1. 原始惑星系円盤における非晶質シリケイトと結晶質シリケイト

宇宙空間における物質は、大部分は気体であり、一部が固体となっている。それら固体物質は主に有機物やシリケイトで構成され、1ミクロン以下の微粒子（ダスト）であると考えられている。ダストは星間物質の質量のおよそ1%程度でしかないが、紫外光や可視光の高いエネルギーの輻射を吸収し再輻射する性質を持つために、星形成や原始惑星系円盤の形成でエネルギー収支を支配するという重要な役割を果たす。ダストの再輻射の波長が赤外線領域にあたるため、赤外線の分光観測を行うことで、ダストやその環境に関する情報を得ることができる。また、隕石や小惑星、ひいては惑星などのより大きいスケールの固体物質・天体への物質進化過程を考えると、ダスト自身がその原材料物質であると考えられる。ダストについての物性研究は、惑星科学・天文学における重要なテーマのひとつ

であり、「宇宙鉱物学」という学問分野として、観測、理論、実験的研究が進められている。

赤外線宇宙天文台 (ISO, 1995-1998) やすばる望遠鏡による赤外線観測は、Herbig Ae/Be型星やT-Tau型星の星周領域あるいは彗星における、オリビン ($(\text{Mg}, \text{Fe})_2\text{SiO}_4$) やパイロキシン ($(\text{Mg}, \text{Fe})\text{SiO}_3$) などの結晶質シリケイトの存在をつきとめた (e.g. [1, 2, 3])。一方、希薄な星間空間の分光観測からは結晶質シリケイトの欠乏が主張されており、星間ダストを構成するシリケイトはほぼ完全に非晶質であると考えられている[4]。非晶質な星間シリケイトダストが、原始惑星系円盤、あるいは我々の太陽系星雲における結晶質シリケイトの原材料物質であり、円盤に取り込まれた非晶質シリケイトが何らかの加熱プロセスを経て結晶化しているということを、これらの観測結果は示している。

ダストがどのような物質であり（鉱物種、化学組成、サイズ・形状など）、どのような物理化学環境で、どのようなプロセスを経て進化するのかを調べるためには、模擬物質を用いた室内実験、特に赤外線観測との直接の対比が可能な、赤外分光実験による研究が有効であり[5, 6]、その成果としてダストの持つ様々な情報が分かってきている。

1. 大阪大学 大学院理学研究科 宇宙地球科学専攻

2. 茨城大学 理学部 自然機能科学科

3. 九州大学 大学院理学府 地球惑星科学専攻

例えばオリビンやパイロキシンのフィーチャーがその化学組成によって異なる波長にピークを持つことから、星周環境に存在する結晶質シリケートはマグネシウムに富んだ組成を持つことや[5]、温度によってピーク位置、半値幅が変化することから、ダストの温度が数十から200 K程度であることなどが分かっている[6]。

過去に行われているダストの結晶化を模擬した室内実験 (e.g. [7]) では、結晶化の進行、言い換えると「結晶化度」の変化、を定量的に取り扱ったものはない。星周領域でのダストの結晶化の進行を議論するためには、時間・温度条件に対する結晶化度の変化を取り扱う必要があり、そのための室内実験データが必要である。また、過去の結晶化実験では、結晶質シリケートがマグネシウムに富んだ組成であるという観測結果を受けて、非晶質のマグネシウムシリケートを用いている。しかし、太陽組成を考慮すると、大きな存在度を持つ鉄の存在は無視することはできない。彗星起源だとされる惑星間塵 (cluster type の anhydrous chondritic porous IDPs), あるいは Stardust ミッションにおける彗星塵リターンサンプルの化学組成は、ほぼコンドライト組成であることが、実験室での精細な分析から分かっている[8, 9]。

そこで本研究では、鉄を含んだコンドライト組成の非晶質シリケートの加熱実験を行い、その結晶化過程を赤外分光法やX線粉末回折 (XRD)、透過型電子顕微鏡 (TEM) の分析手法を用いて解析した。測定した赤外スペクトルから加熱試料の結晶化度を定量化し、その時間発展を定式化することで、原始惑星系円盤におけるシリケートの結晶化について考察した。

2. 実験

加熱実験の出発試料として $\text{Na}_2\text{O-MgO-Al}_2\text{O}_3\text{-SiO}_2\text{-CaO-FeO-NiO}$ 系の、コンドライト組成を持つ非晶質シリケートを、金属アルコキシド (テトラエチルオルソシリケート, $\text{Si}(\text{OC}_2\text{H}_5)_4$) を用いたゾルゲル法により調製した。ゾルゲル法は比較的低温での非晶質物質合成を可能とし、ナトリウムなどの揮発性元素

の蒸発を防ぐことができる利点がある。ダスト中の鉄はシリケートに含まれるか、金属鉄や硫化鉄、酸化鉄で存在しているであろう。本実験では過去に行われたマグネシウムシリケートの実験と比較するため、CIコンドライト組成を仮定した場合の最も鉄に富んだシリケート組成として、全ての鉄が非晶質シリケートとして存在していると仮定した。Mg/Si/Fe が元素比で 1.07/1/0.9 であり、マグネシウムと鉄が元素比で 1:1 のオリビンに近い化学組成である。合成したゲルを、鉄の酸化を防ぐため還元雰囲気下400°Cで乾燥させ、ゲル化過程で含まれる有機物を取り除いた。

出発試料の加熱実験は、1 気圧シリコン坩堝を用いて、 $\text{H}_2\text{-CO}_2$ ガスフローを用いた酸素分圧制御下 (iron-wüstite バッファ) で行った。加熱条件として、加熱時間を0.5 時間一定とし、加熱温度を660-1200°Cと変化させた実験と、加熱温度を680°C一定とし、加熱時間を0.5-12 時間と変化させた実験とを行った。各条件での加熱実験に対して、個別の出発試料を用いた。試料が設定温度に到達するまでにかかる時間はおよそ3 分、加熱後の冷却速度は20-30 K/分であった。

加熱実験出発試料および加熱試料は、XRD, TEM, 赤外吸収分光を用いて分析した。XRDは高エネルギー加速器研究機構物質科学研究所の放射光X線 (beamline 3A, Photon Factory) を利用したイメージングプレートガンドルフィカメラと、大阪大学のイメージングプレートX線回折計 (Rigaku R-AXIS IV, モリブデン管球) を併用した。測定の際、試料は5 μm のガラスファイバにグリコールフタレートで付着させた状態でX線を照射した。TEM分析については、試料をウルトラミクロトームで超薄切片とし、茨城大学の透過型電子顕微鏡 JEOL JEM-2000FX II を用いて行った。赤外吸収分光は京都薬科大学のフーリエ変換型赤外線分光光度計 Nicolet Nexus 670 を用いて行った。瑪瑙乳鉢で1 μm 程度以下に細かくした試料を、中間赤外領域 (1.4-25 μm , 7000-400 cm^{-1}) は臭化カリウム、遠赤外領域 (15-200 μm , 700-50 cm^{-1}) はポリエチレン媒体に埋め込み分散させることで測定用ペレ

ットを作製し，その透過率スペクトルを室温で測定した．波数分解能は 1.0 cm^{-1} とした．測定した透過率スペクトル T から，以下の式を用いて質量吸収係数 κ を求めた．

$$\kappa = S/M \ln (1/T) \quad (1)$$

S は測定用ペレットの断面積， M は試料の質量である．

3. 結果

3.1 出発試料の分析

出発試料のXRDプロファイルには， 2θ で 35° 付近に非晶質シリケートによるハローパターンが見られる（図1 (a) 最下段）．加えて非常にブロードなピークも幾つか見られた．これらのピークはマグネタイト（ Fe_3O_4 ）とフェリハイドライト（ $5\text{Fe}_2\text{O}_3 \cdot 9\text{H}_2\text{O}$ ）と同定できた．回折ピーク幅の広がり結晶子の小ささによるものである．TEM像では 20 nm 程度の粒状結晶とナノメートルオーダーの繊維状結晶が見られ，XRDの結果を考慮すると，粒状のものがマグネタイト（図1 (b) の矢印A），繊維状のものがフェリハイドライトであると考えられる（図1 (b) の矢印B）．一方，赤外スペクトルは， $10\text{ }\mu\text{m}$ 帯と $20\text{ }\mu\text{m}$ 帯にブロードな吸収を示す（図2 (a) 最下段）．これは非晶質シリケートの典型的な赤外フィーチャーであり， $10\text{ }\mu\text{m}$ の吸収はSi-Oの伸縮振動， $20\text{ }\mu\text{m}$ の吸収はO-Si-Oの変角振動モードによる． $6.7\text{ }\mu\text{m}$ の小さな吸収は CO_3^{2-} のC-O伸縮振動モードによる吸収とよく似ていて，試料の一部が空気中の二酸化炭素と反応している可能性が考えられる．マグネタイト，フェリハイドライトのフィーチャー [10, 11] は特に認められないことから，合成した出発試料は，そのほとんどが非晶質シリケートであり，一部の鉄がマグネタイトやフェリハイドライトの微小結晶になっているものと考えられる．

3.2 結晶化実験

XRDや制限視野電子回折分析の結果から，加熱に

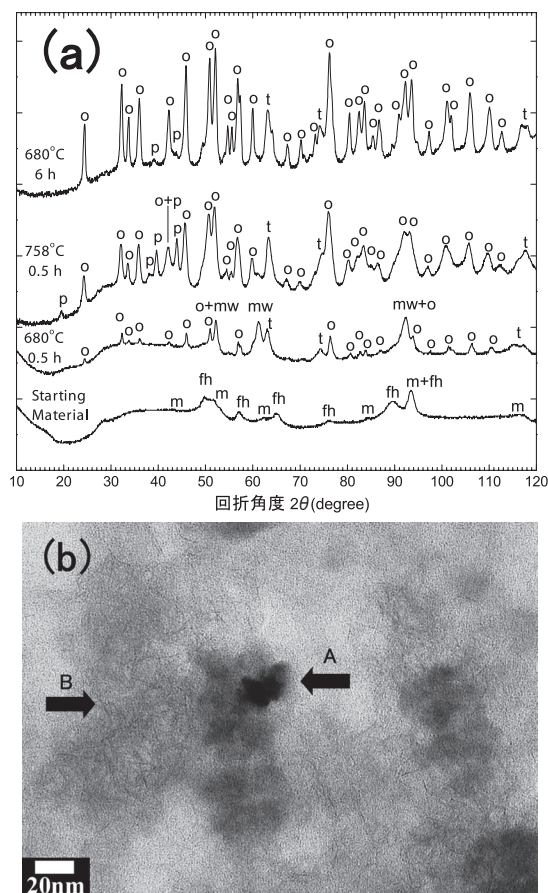


図1： (a) 出発試料及び加熱試料の放射光 XRD パターン．X線の波長は $2.1597\text{ }\text{\AA}$ ．略号は以下のとおりである．o: オリビン，p: パイロキシン，t: テーナイト，mw: マグネシオウスタイト，m: マグネタイト，fh: フェリハイドライト． (b) 出発試料の TEM 像．非晶質シリケートに加えて，粒状のマグネタイト（矢印A），繊維状のフェリハイドライト（矢印B）と思われる結晶が見える．

よりどのような鉱物が結晶化しているのかが分かる（図1 (a)）． 680°C で0.5時間加熱した試料では，オリビン，マグネシオウスタイト（ $(\text{Mg}, \text{Fe})\text{O}$ ），テナイト（ (Fe, Ni) ）の結晶化が見られた．オリビンは非晶質シリケートから結晶化し，マグネシオウスタイトとテナイトはマグネタイトやフェリハイドライトが還元されてできたのであろう．より高温の加熱温度（ 758°C ）では，主にオリビンが結晶化し，テナイトやパイロキシンも存在した．マグネシオウスタイトは還元されてテナイトになったものと考えられる．ま

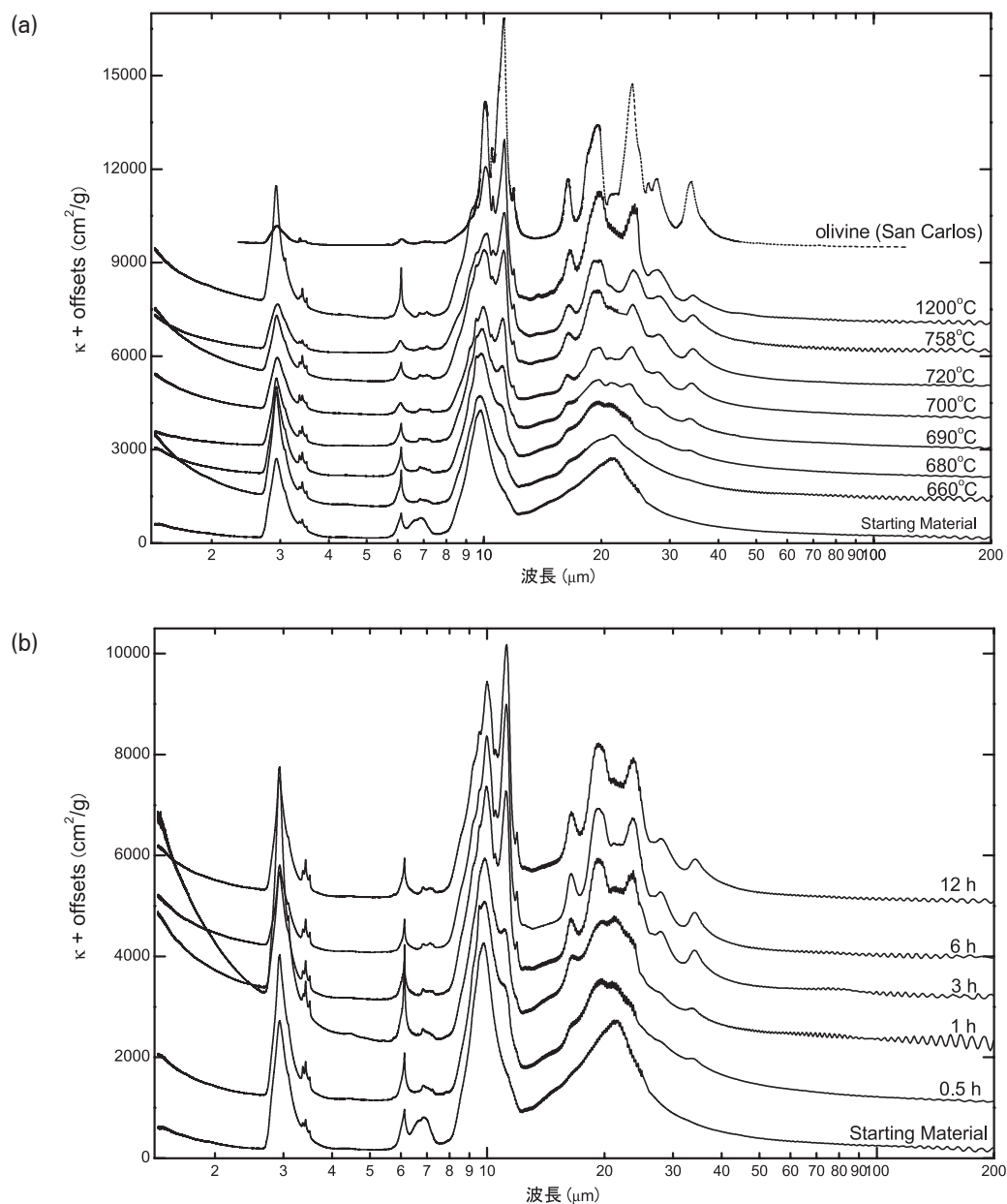


図 2 : (a) 加熱時間一定 (0.5 時間) で加熱温度を変化させた試料の赤外吸収スペクトル。点線は Koike et al. (2003) で報告されているオリビン (Mg# = 0.907) である。3 μm , 6 μm 帯に吸着水の、3.4 μm , 7 μm 帯に測定用ペレット作製の際に使用したエタノールの吸収が見える。(b) 加熱温度一定 (680°C) で加熱時間を変化させた試料の赤外吸収スペクトル。

た、より長時間の加熱 (6 時間) では、高温での加熱と同様に、オリビンが結晶化し、マグネシオウスタイトが還元されてターナイトとなった。

オリビンのXRDピークの回折角度は、オリビンの

Mg/Fe比を反映している。オリビンのマグネシウム及び鉄端成分であるフォルステライトとファヤライトの回折パターンのリファレンスデータ (Powder Diffraction File database files No. 34-0189 and

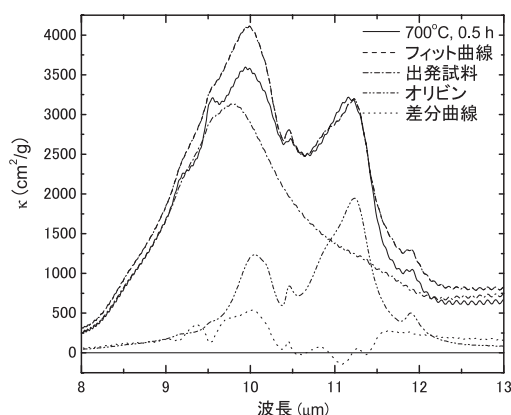


図3：式(2)による測定スペクトルのフィッティング例。フィッティング領域はオリビンの最強ピークである10.6 – 11.7 μm とした。実線は加熱試料(700°C, 0.5時間)のスペクトル、破線はフィット曲線である。1点破線は出発試料、2点破線はSan Carlos オリビン(Mg# = 0.907)のスペクトル[11]で、点線は測定スペクトルとフィット曲線との差分を示す。

34-0178)を用いて、結晶化したオリビンのマグネシウムナンバー(Mg#:オリビン固溶体の元素比でMg/(Mg+Fe))を求めると、結晶化のあまり進んでいない試料(680°C, 0.5-1時間, 690°C, 0.5時間, 700°C, 0.5時間での加熱試料)では、オリビンのMg#はほとんど1であり、より長時間の加熱を受けた試料では徐々に鉄に富んだ組成になっていき、680°Cで12時間加熱した試料では、Mg#は0.87となっていた。より高温での加熱試料(758°C, 0.5 h)では、Mg#は0.75であった。これは、非晶質シリケートからはほとんどマグネシウム豊富なオリビンが結晶化し、その後に試料中に含まれる酸化鉄と反応してMg#を減らしているというプロセスを示唆している。本実験では出発試料として酸化鉄を含んだものを扱っているため、非晶質シリケートの厳密なMg#の測定は困難であり、結晶化するオリビンのMg#についての定量的な議論はできないが、この非晶質シリケートとそこから結晶化する鉱物との化学組成の関係については、今後の研究で明らかにしていきたいと考えている。

図2(a), (b)は出発試料及び加熱試料の赤外吸収スペクトルと、Koike et al. (2003) [12]で測定されたオリビン(San Carlos, Mg# = 0.907)のスペクトル

である。加熱が進むにつれて、非晶質シリケートによるブロードな吸収からオリビンのシャープなフィーチャーが、徐々に伸びている様子が分かる。赤外スペクトルのオリビンピーク位置は、結晶化が進むに従い、長波長(短波数)側にシフトした(主なピークシフトとして、11.1-11.3, 23.6-24.4, 27.8-28.0, 33.8-34.5 μm)。過去の室内実験を考慮すると[5, 12], これはオリビンのMg#変化による赤外吸収ピークのシフトである。XRDで見られたマグネシオウスタイトは、その量の少なさのため吸収スペクトルからは認識できなかった。また、ターナイトは測定領域に赤外活性モードを持たない。

4. 議論

4.1 結晶化度の定量化とその定式化

非晶質シリケートの結晶化プロセスを議論するうえで、試料の「結晶化度」を定量的に求めることは重要である。ここで我々は、結晶化途中の赤外スペクトルが、非晶質シリケートと結晶質シリケートの赤外スペクトルの線形結合で表すことができると仮定する。式で表すと、

$$\kappa_{\text{int}} = (1 - C_i) \kappa_{\text{as}} + C_i \kappa_{\text{xt}} \quad (2)$$

となる。ここで、 κ_{int} , κ_{as} , κ_{xt} はそれぞれ結晶化途中のシリケート、非晶質シリケート、及び結晶質シリケートの質量吸収係数であり、赤外スペクトルから決定される結晶化度として C_i が定義できる。

式(2)を用いることで、本実験の加熱試料の結晶化度 C_i を求めることを試みた。前述のとおり、結晶化するオリビンのMg#はおおよそ1から0.75の間で変化しているので、 κ_{xt} としておおよそ平均的に近い組成であるSan Carlos (Mg# = 0.907)のオリビンスペクトル[12]を用いた。微妙なMg#のずれはフィッティング結果には大きく影響しない。 κ_{as} としては加熱前の出発試料のスペクトルを用いた。非晶質シリケートの化学組成はオリビンの結晶化に従って変化しているの

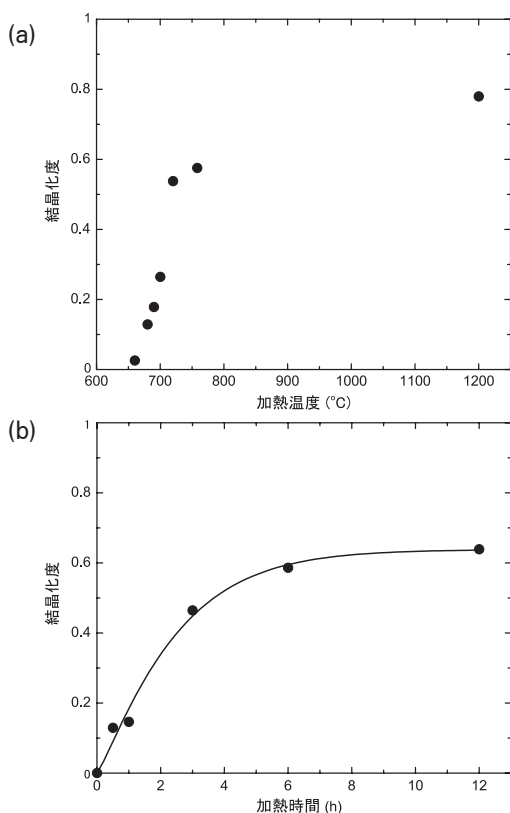


図4：(a) 加熱時間一定 (0.5 時間) で加熱温度を変化させた試料の結晶化度. (b) 加熱温度一定 (680°C) で加熱時間を変化させた試料の結晶化度. 実線は式 (4) でのフィット曲線である.

で、そのスペクトルも変化しているはずである。そこで、 $10\mu\text{m}$ 付近にピークをもつ非晶質シリケートの吸収の組成変化による影響を少なくするため、オリビンの最強ピークである $11.2\mu\text{m}$ の吸収帯 ($10.6\text{--}11.7\mu\text{m}$) に限ってフィッティングを行った。また、量の少ないマグネシオウスタイトやテーナイト、パイロキシンによるフィッティングへの影響は、ほとんど無いと思われる。

測定スペクトルの式 (2) による最小自乗フィットの例を図3に、求められた結晶化度を図4(a), (b)に示す。加熱時間一定の試料では、温度が高くなるにつれて結晶化度が大きくなっている (図4(a))。また、加熱温度一定の試料では、加熱時間につれて徐々に結晶化が進み、そのうちおよそ0.65で飽和することが分かる (図

4(b))。この結果は、本実験では完全な結晶化は起こらずに、非晶質シリケートが常に残った状態であることを示している。非晶質シリケートの組成を考えると、オリビンが結晶化した後に残るアルミニウムやカルシウム、ナトリウムを多く含んだ非晶質シリケート相は、加熱前のマグネシウム、シリコン及び鉄に富んだ相よりも、結晶化速度が一般的に非常に遅い。そのため本実験では、主にはオリビンと幾つかのマイナーな結晶とともに、結晶化の起こらなかった非晶質シリケートが残ったと思われる。

得られた結晶化度の680°Cでの時間発展 (図4(b)) を、Johnson-Mehl-Avrami (JMA) の式 [13] でフィットすることを試みた。JMAの式は次のように書ける。

$$X = 1 - \exp \{ - (t/\tau)^n \} \quad (3)$$

ここで、 X は変態率、 τ は変態の時定数、 n は変態のキネティクスに依存する無次元パラメータである。このJMAの式を、本実験のために以下のように書き換える。

$$C_t = C_\infty [1 - \exp \{ - (t/\tau)^n \}] \quad (4)$$

C_∞ は時間が無限での結晶化度 C_t に対応し、最後まで残った非晶質相による結晶化の上限を表している。

図4(b) に示されている曲線は、各時間における結晶化度の式 (4) でのフィット結果であり、 n 、 τ 、及び C_∞ は、 1.16 ± 0.17 、 9140 ± 1300 秒、及び 0.638 ± 0.033 と求めることができる。JMA式のキネティックパラメータ n は、結晶化モデルに対応してその値が与えられている。一定数の核からの拡散律速での3次元的な結晶成長を伴うモデルの場合、 n は1.5であるとされている。また、核形成速度一定の核形成と3次元的な結晶成長を伴うモデルの場合、 n は2.5である。これらの理論的な結晶モデルによる考察とフィッティング結果を比較すると、 n がおよそ1.2である本実験の結果は、核形成を伴わない拡散律速成長と調和的である。つまり、出発試料において非晶質シリケートと共存していた微小な酸化鉄やフェリハイドライトを核とした不均一核生成と、それに続く結晶成長と考えることができる。

以上のように，赤外スペクトルから結晶化度を求めることで，非晶質シリケートの結晶化過程について，その時間発展をJMA式で表すことができた．本稿の研究では加熱温度が十分に振れていないので，結晶化の時定数 τ の温度依存を正確には求めることはできないが， n ， C_∞ として680℃での値を仮定すると，1次近似として各温度に対する時定数 τ を求めることができる． τ についてアレニウスプロットを行い，結晶化の活性化エネルギー E_a/k_B と振動数因子 ν_0 を求めたところ，それぞれ 4×10^4 Kと $1 \times 10^{12} \text{ s}^{-1}$ であった．今後のさらなる実験によって正確なパラメータを出すことで，任意の温度条件でのシリケートの結晶化度の時間発展を議論することが可能になるであろう．

4.2 シリケートダストの結晶化プロセスとその前駆物質

Hallenbeckらはマグネシウムシリケートの煙微粒子を作製し，加熱に伴う赤外スペクトルの変化を観察している[7]．その変化過程において，非晶質のブロードなスペクトルからオリビンのフィーチャーが成長していくのだが，一度始まった結晶化がある時点で停滞し，その後加熱を続けていくと，再び結晶化が進んでいくという現象が見られた．この停滞現象を，結晶化の「ストール」として報告している．これは，結晶化が徐々に進んでいった本実験では見られなかった現象である．Kamitsujiらによって行なわれた，マグネシウムシリケート煙微粒子の結晶化実験のTEMその場観測では，試料を加熱すると結晶化が起こる以前に像に変化が起きたことが報告されている[14]．こういった結晶化が見られる以前の変化過程は，核形成による結晶化の遅延で説明することができるだろう．核形成と拡散律速による結晶成長を伴う結晶化プロセスは，典型的にはJMA式の $n = 2.5$ の場合で表すことができ，結晶化度は時間に対してシグモイドルに増加し，結晶化の初めの段階では結晶化度の増加する速度は遅い．

しかし，Hallenbeckらの実験では，まず結晶化が

進行する様子が赤外スペクトルから見られ，「ストール」を挟んでその後，また結晶化が再開していることから，核形成による遅延だと単純に言うことはできない．Hallenbeckらが用いた煙微粒子についてのTEM分析も報告されており，それによると出発試料は，非晶質シリケートに加えて，トリディマイト(SiO_2)やペリクレーズ(MgO)，フォルステライトの微結晶が含まれている不均一なものであった．それを踏まえて我々は，Hallenbeckらの実験で見られた「ストール」を挟んでの2回の結晶化は，次に述べる2種類の結晶化プロセスの組み合わせで起こっているのではないかと考えた．まず1つは本実験と同じように，元々存在した核形成サイトからの核形成を伴わない結晶成長であり，もう1つはJMA式の $n = 2.5$ で表されるような，核形成と結晶成長を伴う結晶化である．後者は核形成による結晶化の遅延を伴うので，その時間差が「ストール」として表れているのではないかと考えることができる．Hallenbeckらの出発試料である煙微粒子では，完全に非晶質の微粒子と，結晶子を含む微粒子とが混在していたのではないであろうか．そして加熱の初期段階では，結晶子を含む微粒子からの結晶化が先に起こり，その結果として赤外スペクトルの変化が現れ，「ストール」が終わった後では，ようやく核形成を終えた非晶質微粒子の結晶化が主に赤外スペクトルの変化に反映されていたのではないだろうか．あるいは，加熱実験の温度条件(1027 K)ではイオンの拡散が遅いので，元々存在した核形成サイトからは限られた大きさまでしか結晶成長できず，「ストール」後の結晶化の進行にはもっと離れた場所での新しい核形成が必要だった可能性も考えることができる．

マグネシウムシリケートを用いたHallenbeckらの実験と比較すると，本実験は鉄の入った組成を用いている．「ストール」以前の加熱では，非常にマグネシウムに富んだオリビンが結晶化するという点で，Hallenbeckらと同様にマグネシウムイオンの拡散が重要であるが，その後の結晶化プロセスではオリビンのMg#は小さくなっていく．この段階では鉄イオン

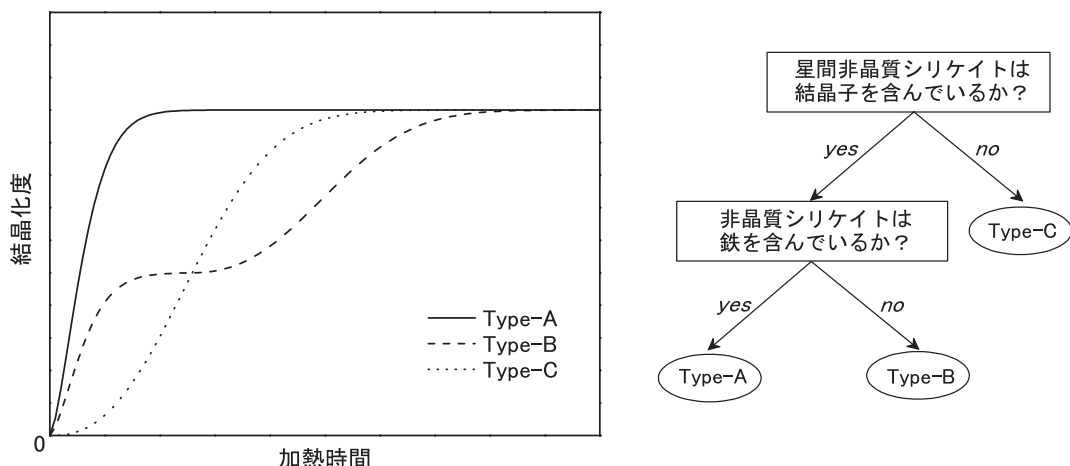


図5：原始惑星系円盤におけるシリケートの結晶化の時間進化. Type-A はもともと存在する核形成サイトからの拡散律速による結晶成長を伴う結晶化プロセス ($n = 1.5$ の式 (4)), Type-B はもともと存在する核形成サイトからの拡散律速による結晶成長を伴う結晶化プロセスと、新しい核形成とそれに続く結晶成長によるプロセスの組み合わせであり、途中に「ストール」を含む. Type-C は核形成と拡散律速による結晶成長を伴う結晶化プロセス ($n = 2.5$ の式 (4)).

の拡散が重要になってくる. 鉄イオンはマグネシウムイオンよりも一般に拡散が速いので、オリビンの結晶成長は「ストール」を起こすことなく進行していった可能性が考えられる.

これまでに述べた我々の実験や過去に報告されている実験は、結晶質シリケート前駆物質の特性が、それ自身の結晶化プロセスに対して大きな影響を与えることを示している. 原始惑星系円盤におけるシリケートダストの前駆物質は星間ダストであると考えられており、赤外観測によると星間シリケートは非晶質である [4]. しかし、我々やHallenbeckらの加熱実験の出发試料は完全な非晶質ではないにも関わらず、赤外スペクトルは非晶質のフィーチャーを示す. これら室内実験の結果は、ダストに非常に小さな、しかし結晶化プロセスに影響を及ぼすであろう結晶 (例えばオリビンや酸化鉄) が含まれていても、赤外分光観測ではそこまでの検出はできないことを表している. さらに、Hallenbeckらはマグネシウムピュアな化学組成、我々は太陽組成を仮定して最も鉄に富んだ組成での実験を行っているが、星間シリケートの化学組成についても十分な情報は得られていない.

以上の結果及び考察をまとめると、星周シリケート

の結晶化プロセスは、星間ダストの特性によって、図5のように表すことができる. 加熱イベントを受ける前のシリケートが完全に非晶質であり、全く結晶子を含んでいない場合、結晶化は核形成と結晶成長とを必要とし、典型的には $n = 2.5$ のJMA式で表されるようなプロセスを経て結晶化する (図5, Type-C). また、我々やHallenbeckらの実験のように微小結晶を含んでいる場合は、初めの核形成は必要ない. 本実験のように鉄を含んだシリケートの場合、 $n = 1.5$ のJMA式で表されるプロセスで結晶化するであろうと思われる (図5, Type-A). さらに、Hallenbeckらのように鉄を含まないマグネシウムシリケートの場合、結晶化過程で「ストール」を示すと考えられる (図5, Type-B).

星間シリケートの化学組成は詳しく知られていないが、星周領域においては、中間赤外線分光観測で見られるオリビンの $11.2\mu\text{m}$ ピークや、より鋭敏に Mg# を反映する遠赤外領域の $69\mu\text{m}$ ピークの検出 [15] から、非常にマグネシウムに富んだシリケートが存在すると主張されている. 本稿の実験では、予察的ではあるが、非常に鉄に富んだ非晶質シリケートから、マグネシウムに富んだオリビンが結晶化する可能性が示唆されている. また、赤外スペクトルから結晶化度を求めるこ

とで、結晶化プロセスを議論できるようになり、さらには結晶前駆物質の特性によってプロセスが異なることが示されている。近い将来、星間空間や原始惑星系円盤の高感度、高空間分解能の観測が進み、星間・星周シリケートの化学組成や観測的に求められた結晶化度、星周領域の物理化学環境についての精密な情報が得られれば、我々の行うダスト模擬物質の室内実験結果と合わせて考察することで、ダストが経験してきた物理化学プロセスの履歴に大きな制限を与え、原始惑星系円盤における始原物質進化の解釈を正しい方向へと導くであろう。

謝 辞

本研究を遂行するにあたり、九州大学の赤木剛氏はじめ中村研究室放射光チームの皆様、大阪大学の有馬寛氏、谷篤史氏、神奈川大学の本田充彦氏、京都大学の下林典正氏にお世話になりました。また、東京大学の橋省吾氏は本研究を紹介する機会を与えてくださいました。ここに深く感謝の意を表します。筆者は日本学術振興会の援助を受けています。

参考文献

- [1] Waelkens, C., et al. 1996, A&A 315, L245.
- [2] Honda, M., et al. 2003, ApJ 585, L59.
- [3] 藤原英明, 2007, 日本惑星科学会誌, 本号.
- [4] Kemper, F., et al. 2004, ApJ 609, 826.
- [5] 茅原弘毅ら, 2006, 日本惑星科学会誌 15, 44.
- [6] 周藤浩士ら, 2006, 天文月報 99, 682.
- [7] Hallenbeck, S. L., et al. 1998, Icarus 131, 198.
- [8] Bradley, J. P. 1994, Science 265, 925.
- [9] Flynn, G. J., et al. 2006, Science 314, 1731.
- [10] Keller, L. P., et al. 2002, Nature 417, 148.
- [11] Russell, J. D. 1979, Clay Miner. 14, 109.
- [12] Koike, C., et al. 2003, A&A 399, 1101.
- [13] Burke, J. 1965, The Kinetics of Phase

Transformation in Metals (England: Pergamon)

- [14] Kamitsuji, K., et al. 2005, A&A 436, 165.
- [15] Malfait, K., et al. 1998, A&A 332, L25.