

シリケートダストの創製とダストのダイナミクスに関する実験的研究

上辻 勝也

ヨーロッパ宇宙機構が打ち上げた天文衛星ISOの観測による結晶質シリケートダストの発見から、ダストに関する見方が一変し、結晶質・非晶質シリケートダストの変遷や創製の関心が高まっている。この論文では、非晶質SiO、SiO₂及びMgシリケートダストの高温場での構造変化や結晶化の直接観察に成功し、結晶質・非晶質MgシリケートダストがMgO、SiO₂粒子の衝突・合体による接合成長手法で生成できることを明らかにした。

ガス中蒸発法で生成した非晶質SiO粒子を電子顕微鏡内で直接加熱し、高温での構造の変化を初めて明らかにした。500~700°Cで、数十nmのサイズの粒子内でSi微結晶が選択的に成長した。これは、SiとSiO₂の微結晶からなっているSiO粒子中で、Siが拡散することを始めて見出した現象である。900°Cに加熱するとSi微結晶が消え、粒子全体がSiO組成に変化することを見出した。さらにSiO相が、蒸気として昇華するプロセスの直接観察に成功した。粒子の冷却過程で再びSi微結晶が析出する事を見出し、加熱時同様700~500°Cで選択的に成長し、室温での粒子がSiとSiO₂の微結晶からなっていることを実証した。また、この実験を通して、SiO組成に変化する温度はバルクの値より約200°C低いことが明らかになり、ナノ粒子では物性が異なっていることを端的に示した。

熱プラズマ中で生成された石英状の非晶質SiO₂粒子の観察では、粒子内でのSi微結晶の成長では見られなかったが、粒子間の焼結が盛んになった900°Cにおいて、表面拡散や体積拡散の過程でSi微結晶が生成し、SiO粒子での観察同様にSiOへと変化して部分的に蒸発することがわかった。SiO、SiO₂の結晶化は非常におこりにくいことがわかった。

ArとO₂の混合ガス中でMgOとSiO₂粒子を生成する条件を見出し、MgO粒子とSiO₂粒子の接合成長によって共に球状の結晶質Mg₂SiO₄、非晶質Mgシリケート双方の粒子が生成できることを明らかにした。接合成長後の冷却速度を一桁上げることに成功し、非晶質粒子の生成確率が高くなることを実証した。

このようにつくった非晶質粒子の結晶化プロセスを明らかにした。800°Cにおいて粒子表面からMg₂SiO₄に結晶化することがわかった。更にこの観察のプロセスで、650°C~750°Cにおいて粒子表面でpre-nucleationがおこり、粒子が白いリング状のコントラストを示すことを見出した。この状態はHallenbeck等が赤外スペクトルの変化から提案したstall状態に対応することを明らかにした。