

令和元年6月19日現在

機関番号：12608

研究種目：若手研究(B)

研究期間：2017～2018

課題番号：17K14421

研究課題名(和文) 隕石ジルコンを用いた消滅核種プルトニウム244初生存在度の検証

研究課題名(英文) The initial abundance of plutonium-244 in the solar system evaluated by using meteoritic zircons

研究代表者

羽場 麻希子 (Haba, Makiko)

東京工業大学・理学院・助教

研究者番号：30598438

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 2,800,000円

研究成果の概要(和文)：244Pu(半減期8100万年)は消滅核種であり、現在の太陽系には存在しない。しかし、太陽系形成初期に存在したことが隕石中の244Pu自発核分裂起源Xeの検出により証明されている。太陽系形成時における244Pu/238U比は、PuやUを生成した元素合成から太陽系形成までの期間を見積もる上で重要な値である。本研究では、隕石ジルコンのXe同位体組成とU-Pb年代を測定することにより、太陽系形成時の244Pu/238U比を精度良く決定することを試みた。分析の結果、本研究で得られた太陽系形成時の244Pu/238U比は $0.012 \pm 0.004$ であり、過去の報告値と比べ精度の良い値を提示した。

研究成果の学術的意義や社会的意義

本研究では、世界で初めて隕石ジルコンを用いて太陽系の初生244Pu/238U比を見積もることに成功した。今回決定された初生244Pu/238U比は、過去の研究と比べ圧倒的に精度が良い。また、244Pu/238U比を算出するために用いたジルコンのU濃度は分析方法の改良によって誤差を小さくすることが可能であるため、将来的に初生244Pu/238U比の精度を向上させることは十分に可能である。今後、得られた太陽系の初生244Pu/238U比を元素合成モデルと比較することにより、太陽系のUおよび超ウラン元素を生成した元素合成の恒星におけるサイトや太陽系形成までの期間の見積もりが可能になると予想される。

研究成果の概要(英文)：Plutonium-244 is an extinct nuclide and does not exist in the current solar system. However, its existence in the early solar system has been proved by the detection of spontaneous fissionogenic Xe derived from 244Pu in meteorites. The initial 244Pu/238U ratio in the solar system is important to estimate the period from nucleosynthesis for U and Pu to the birth of the solar system. In this study, we attempted to determine a precise initial 244Pu/238U ratio by measuring the Xe isotope compositions and U-Pb date of zircons separated from a mesosiderite. As a result, the initial 244Pu/238U ratio determined in this study is  $0.012 \pm 0.004$ , which is more precise than those reported in the previous works.

研究分野：宇宙化学

キーワード：消滅核種 プルトニウム 初生存在度 隕石ジルコン 希ガス分析

## 様式 C - 19、F - 19 - 1、Z - 19、CK - 19 (共通)

### 1. 研究開始当初の背景

$^{244}\text{Pu}$  は半減期 8100 万年の消滅核種であり、3 回の  $\alpha$  壊変により安定な質量数 232 のトリウムに崩壊する。また一方で、自発核分裂を起こし核分裂起源核種を生成する。これにより、 $^{244}\text{Pu}$  を取り込んだ鉱物内には、次第に核分裂起源核種が蓄積されていくとともに、それらが生成される時に結晶内に生じる核分裂飛跡も記録されることになる。このような現象を背景として、太陽系初期の  $^{244}\text{Pu}$  の存在は、隕石内における  $^{244}\text{Pu}$  自発核分裂起源気キセノン (Xe) の検出 (Rowe & Kuroda, 1965) と隕石鉱物内での  $^{244}\text{Pu}$  の核分裂飛跡の検出 (Fleischer et al., 1965) の異なる 2 つの方法によって証明された。この発見以降、太陽系形成時における  $^{244}\text{Pu}$  の存在度 (以下、初生  $^{244}\text{Pu}/^{238}\text{U}$  比で表す) をより精度良く決定する試みが行われてきた。この理由として、初生  $^{244}\text{Pu}/\text{U}$  比が  $^{244}\text{Pu}$  を生成した速い中性子捕獲反応 (r-process) についての様式 (連続一様合成モデルやスパイク合成モデルなど) や、元素合成が終了してから太陽系形成までの期間を見積もる上で重要なためである。

初生  $^{244}\text{Pu}/\text{U}$  比を求めるには、長期間において、自発核分裂起源 Xe もしくは核分裂飛跡を保持する鉱物が必要である。また、対象となる鉱物から得られる  $^{244}\text{Pu}/^{238}\text{U}$  比はその鉱物が自発核分裂起源 Xe もしくは核分裂飛跡に対して閉鎖系になった時点での元素比である。従って、初生  $^{244}\text{Pu}/\text{U}$  比を求めるには、対象鉱物が閉鎖系になった年代を求める必要がある。しかし、隕石において  $^{244}\text{Pu}$  を取り込み尚且つ年代測定に適した鉱物はほとんど存在しない。リン酸塩鉱物はその候補であり、形成時に  $^{244}\text{Pu}$  を取り込むが、母天体上で起こる加熱や衝突の影響を非常に受けやすい鉱物であるため、 $^{244}\text{Pu}/^{238}\text{U}$  比の決定にはあまり適さない。また、太陽系形成とともに形成したと考えられる物質の CAI (Ca・Al に富んだ包有物) を用いる場合、年代測定を行う必要がないという利点はあるが、CAI のどの鉱物に  $^{244}\text{Pu}$  が取り込まれていて、その鉱物が長期間安定であるかなどについて十分な検証が必要である。

一方で、Turner et al. (2004; 2007) は、地球の古いジルコンに着目し、 $^{244}\text{Pu}/\text{U}$  比を決定することを試みた。彼らは、オーストラリアジャックヒルズ地区にわずかに存在する 41-42 億年のジルコンを、独自に開発した Xe 同位体分析用質量分析計を用いて一粒ずつ測定し、 $^{244}\text{Pu}$  自発核分裂起源 Xe を検出することに成功した。しかし、得られた  $^{244}\text{Pu}/\text{U}$  比は 0-0.008 まで大きくばらつく結果となった。この原因として、地球の多くの古いジルコンは変成作用を経験し、 $^{244}\text{Pu}$  起源 Xe を含む Xe 成分を脱ガスしている可能性が高いことを指摘している。

### 2. 研究の目的

本研究では Turner et al. (2004, 2007) を参考に、分化隕石に含まれるジルコンを用いて  $^{244}\text{Pu}/\text{U}$  比を求めることを試みた。地球のジルコンと同様に、隕石のジルコンも形成時に U および Pu を取り込んだと考えられる。隕石ジルコンはその年代が 45.2-45.6 億年と Turner et al. で用いられた地球のジルコンより圧倒的に古く、地球のジルコンと比べ、 $^{244}\text{Pu}$  起源の Xe が多く保持されていると考えられる。また、ジルコンは晶出する際に希ガスを捕獲しないため、隕石全岩分析の研究において問題となる捕獲成分の Xe の存在は無視することができる。さらに、分化隕石の母天体は小規模であるため、火成活動は太陽系形成初期に収束し、地球のような大規模なリサイクル活動は起こっていない。従って隕石ジルコンは形成後、地球の古いジルコンのような変成作用による脱ガスを経験していないと考えられ、 $^{244}\text{Pu}/\text{U}$  比をより精度良く決定することができるかと期待される。

### 3. 研究の方法

本研究では石鉄隕石メソシデライトに属する Northwest Africa (NWA) 8741 を試料として用いた。メソシデライトのジルコンの粒径は隕石の変成度に相関することが報告されている (Haba et al. 2017)。NWA 8741 の変成度はメソシデライトの中で最も高いため、より大きなジルコンを回収するのに適した試料である。NWA 8741 (約 30 g) を塩酸および硝酸・フッ酸混合溶液により酸分解した後の残渣からジルコンを回収した。同様の酸処理を地球産の標準ジルコンに対しても行った。メソシデライトのジルコンには形成年代の異なる 2 世代のジルコンが存在する (Haba et al., 2017)。形成年代の古いジルコン (4563 Ma, Ireland & Wlotzka, 1992) は粒径が非常に小さい特徴を持つ (<40  $\mu\text{m}$ )。本研究では古いジルコンの混入を防ぐため、粒径の大きいジルコン (70-200  $\mu\text{m}$ ) を 350 粒子ほど選別した。これらの粒子を年代測定用、組織観察および微量元素濃度測定用、希ガス同位体分析用の 3 つフラクションに分けた。分析に関しては、FE-SEM-CL による組織観察、FE-EPMA による主要元素定量分析、ID-TIMS 法による高精度 U-Pb 年代分析、LA-ICPMS による微量元素定量分析を行った。また、Turner et al. (2004; 2007) では Xe 同位体組成分析に特化した質量分析計を用いたが、この方法では、ジルコンに含まれる他の希ガス (He, Ne, Ar, Kr) の情報を取り出すことができない。そのため、本研究では韓国極地研の希ガス質量分析計を用いて、ジルコンの全希ガス同位体組成分析を行った。

### 4. 研究成果

反射電子像および CL 像の観察から、NWA 8741 のジルコンは非常に均質な組織を持つことが確認された。また、微量元素定量分析の結果、ウランおよびトリウム濃度は個々の粒子間で比較的均一であり、 $\text{U} = 1.1 \pm 0.3 \text{ ppm}$ 、 $\text{Th} = 0.08 \pm 0.06 \text{ ppm}$  ( $n = 11$ ) であった。これらのジ

ルコンのウランおよびトリウム濃度は他の隕石に存在するジルコンと比べ異常に低く、メソシデライトの若い年代を持つジルコンの特徴である。ジルコン 6 粒から得られた  $^{207}\text{Pb}$ - $^{206}\text{Pb}$  年代の重み付き平均は  $4525.0 \pm 1.3 \text{ Ma}$  であった。

次にジルコンの希ガス同位体分析に関しては、まず、地球産のジルコンの非酸処理および酸処理試料を用いて同位体組成および濃度の比較を行った。その結果、非酸処理および酸処理試料の間で違いは見られず、本研究で用いた酸処理はメソシデライトのジルコンの希ガス濃度および同位体組成に影響しないことが確認された。この結果を受けて、隕石ジルコンを用いた初生  $^{244}\text{Pu}/\text{U}$  比の決定を行った。まず、メソシデライトのジルコンの希ガス分析から得られた核分裂起源  $^{136}\text{Xe}$  量は  $(1.31 \pm 0.14) \times 10^{-10} \text{ cm}^3\text{STP/g}$  であった。 $^{244}\text{Pu}$  の自発核分裂分岐比は 0.125% であり、 $^{136}\text{Xe}$  の核分裂収率は 5.6% であるため、ジルコン形成時における  $^{244}\text{Pu}$  濃度は  $0.020 \pm 0.002 \text{ ppm}$  と見積もられる。ここで、ジルコンの形成年代 ( $4525.0 \pm 1.3 \text{ Ma}$ ) と  $^{238}\text{U}$  および  $^{244}\text{Pu}$  濃度を用いて、太陽系形成時 ( $4567.3 \text{ Ma}$ ) の  $^{244}\text{Pu}/^{238}\text{U}$  比を求めると、 $0.012 \pm 0.004$  が得られた。

また、メソシデライトのジルコンの He, Ne, Kr 同位体組成からは、宇宙線の照射によって生成された宇宙線生成核種の存在が確認された。このことは、隕石のジルコンを用いて隕石が宇宙空間に滞在した期間 (宇宙線照射年代) を見積もることが可能であることを示しており、次の研究につながる結果を得ることができた。

## 5. 主な発表論文等

[雑誌論文](計 1 件)

1. Makiko K. Haba, Jörn-Frederik Wotzlaw, Yi-Jen Lai, Akira Yamaguchi, Maria Schönbachler. Mesosiderite formation on asteroid 4 Vesta by a hit-and-run collision. Nature Geoscience, 2019. DOI: 10.1038/s41561-019-0377-8. (査読あり)

[学会発表](計 2 件)

[国際学会]

1. Makiko K. Haba, Keisuke. Nagao, Jörn-Frederik Wotzlaw, Akira Yamaguchi. Multi-chronology of meteoritic zircon and the initial abundance of plutonium-244 in the solar system. The 81st Annual Meeting of The Meteoritical Society, abstract 6189, 2018, Moscow.

[国内学会]

1. 羽場麻希子, 長尾敬介, Jörn-Frederik Wotzlaw, 山口亮. 消滅核種 Pu-244 の太陽系初生存在度. 日本地球化学会第 66 回年会, 2A10, 2018, 琉球大学.

[図書](計 0 件)

[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:

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:

国内外の別:

[その他]

ホームページ等

## 6. 研究組織

(1)研究分担者

研究分担者氏名：

ローマ字氏名：

所属研究機関名：

部局名：

職名：

研究者番号（8桁）：

(2)研究協力者

研究協力者氏名：長尾 敬介

ローマ字氏名：Keisuke Nagao

研究協力者氏名：山口 亮

ローマ字氏名：Akira Yamaguchi

研究協力者氏名：Jörn-Frederik Wotzlaw

ローマ字氏名：Jörn-Frederik Wotzlaw

科研費による研究は、研究者の自覚と責任において実施するものです。そのため、研究の実施や研究成果の公表等については、国の要請等に基づくものではなく、その研究成果に関する見解や責任は、研究者個人に帰属されます。