

平成 21 年 5 月 7 日現在

研究種目：若手研究（B）
 研究期間：2007～2008
 課題番号：19740337
 研究課題名（和文）炭素質物質表面に照射された希ガス元素のX線光電子分光およびX線吸収
 微細構造
 研究課題名（英文）XPS and XAFS for carbonaceous materials irradiated by noble gas ions

研究代表者
 大澤 崇人 (OSAWA TAKAHITO)
 独立行政法人日本原子力研究開発機構 量子ビーム応用研究部門・研究員
 研究者番号：70414589

研究成果の概要：始原的隕石中の希ガス濃集部位である phase Q に類似していると考えられているケロジェン（石炭）は極めて高い希ガス保持力を持っていると研究開始以前では予想されたが、イオン照射実験を行ったところ炭素同素体（高配向焼結グラファイト（HOPG）、アモルファスカーボン、多結晶合成ダイヤモンド、フラーレン、カーボンナノチューブ）やかんらん石、金属鉄と比較して石炭試料のアルゴンの捕獲効率は一桁以上低かったことが判明した。この予想外の事実は、phase Q が炭素質物質であるという説に対して大きな疑問を投げかけるものである。

交付額

（金額単位：円）

| | 直接経費 | 間接経費 | 合計 |
|--------|-----------|---------|-----------|
| 2007年度 | 1,300,000 | 0 | 1,300,000 |
| 2008年度 | 1,800,000 | 540,000 | 2,340,000 |
| 年度 | | | |
| 年度 | | | |
| 年度 | | | |
| 総計 | 3,100,000 | 540,000 | 3,640,000 |

研究分野：数物系科学

科研費の分科・細目：地球惑星科学

キーワード：隕石化学

1. 研究開始当初の背景

太陽系が如何にして形成し、進化してきたのかを解き明かす鍵として、希ガスの元素組成、同位体組成に関する情報は欠かせない。なぜならば、希ガスは最も不活性な揮発性元素であるため、様々な化学的過程による擾乱を受けずに純粋な形で物質の起源の情報を保持しているからである。これまで行われてきた地球外物質や地球マントル物質に関する希ガスの研究は、希ガス元素の驚くべき不均一性を明らかにしてきた。この事実は、太陽系の希ガス組成が全く起源の異なる複数の成

分の混合である事実を示している。原始太陽系星雲に話を絞れば、希ガス成分は原始太陽系星雲ガスを起源とする太陽型希ガスと、固体物質中に捕獲されている惑星型希ガスに大別され、両者の間には組成的に極めて大きな違いがある。前者は軽い希ガスに富み、後者は重い希ガスに富んでいる。後者の中には様々な独立した成分が存在しており、太陽系形成以前から固体物質として存在していると考えられている粒子（プレソーラーグレイン）に含まれる成分と、起源不明であるが重い希ガスの主要成分である Q 成分とに大別で

きる。前者はダイヤモンドやSiCなどの微粒子中に存在し、起源に関しては理論的に推定されている。一方、Q成分と呼ばれる成分は隕石中に捕獲された希ガスとしては最も主要な成分であるにもかかわらず、起源に関しては依然として不明である。Q成分は始原的隕石をフッ酸・塩酸処理した後に残る僅かな残渣に濃集した成分で、その担体については炭素質物質であることが判明しているが詳しいことはいまだに良くわかっていない。その理由はQ成分の担体が芳香環と脂肪鎖の結合より成る複雑な高分子であるため構造を決定することが出来ないためである。この担体物質に最もよく似た地球物質として堆積性有機物の一種であるケロジェン(油母)が挙げられている(Gardinier et al., 2000; Remusat et al., 2003)。

Q成分に関する最大の謎は極めて高い希ガス濃度(例えばKrで $2.5 \times 10^{-7} \text{cm}^3 \text{STP/g}$ 以上)である。このような高い濃度を達成するための有効な過程として、破壊された鉱物の活性な表面への吸着や成長する金属フィルムに希ガスを吸着させる方法が知られているが(Bernatowicz et al., 1982; Hohenberg et al., 2002)、試料がQ成分の担体である炭素質物質ではないためQ成分の再現とは言えない点で問題があった。一方、透過電子顕微鏡による隕石中の炭素質物質の直接的観察はQ成分の担体が極めて多彩で表面積の大きい構造を持っていることを明らかにし、低温でのガス吸着がQ成分の生成起源である可能性が高いと考えられた(Vis et al., 2002)。しかし近年報告された希ガスの低温吸着実験によると、75Kの低温下でカーボンブラックを使うことでQ成分の濃度を説明できるほどに高い濃度を吸着によって達成できる可能性があるが、ケロジェンでは有効な吸着表面積が小さすぎてQ成分の濃度を吸着によって達成することは全くできないという結果であった(Marrocchi et al., 2004)。また、近年の天体物理学モデルでは隕石母天体形成領域はこれほど低い温度にならないという問題も抱えていた。加えて深刻な問題は、隕石からQ成分を加熱によって取り出そうとした場合1000以上に加熱しなければならぬほど希ガスの保持力が高い点である。100K以下の低温で吸着させた希ガスをその場に強固に固定させることは吸着のみでは不可能であり、結論としては吸着過程のみでQ成分の起源を説明することは極めて難しい。

2. 研究の目的

高い希ガス濃度を達成するために最も有効な方法のひとつは太陽風イオンの撃ち込みである。申請者のこれまでの研究は惑星間空間を漂う宇宙塵が多量の太陽風希ガスを保持していることを明らかにしてきた(例えば

Osawa and Nagao, 2002)。Q成分の形成に太陽風が関与していると仮定すれば、太陽風の照射によってイオンが直接担体物質に叩き込まれるだけでなく、一度吸着した希ガスを太陽風で物理的に担体に押し込むことが可能である。特にTタウリ星の一時期には極めて強い星風が吹き出していたと考えられている。このような過程を仮定することで、吸着しただけの希ガスよりも遥かに強固に希ガス原子を担体に固定することができ、より高い希ガス濃度も実現することができると考えられる。この仮説の可能性を検証するためには炭素質物質中に射ち込まれた希ガスの捕獲効率に関する基礎的データの取得が不可欠である。そこで本研究では、Q成分の形成には始原的微粒子表面の炭素質物質への原始太陽風の照射が重要な役割を果たしていたという仮説の下に、ケロジェンを含めた炭素質物質に対する希ガスイオンの照射実験を行い、固体中での希ガス元素の捕獲効率をX線を用いた表面分析によって観測することによって仮説の妥当性を検証することを目的とする。

3. 研究の方法

各種ターゲットに対してアルゴン、クリプトン、キセノンのイオンビームの撃ち込みを行った後に、希ガス原子の捕獲効率をX線光電子分光法(XPS)およびX線吸収スペクトル(XAS)から見積もる方法を開発し、その後種々の炭素質物質中の希ガス元素の捕獲効率等を得る。

4. 研究成果

XPS並びに全電子収量法(試料電流測定)を用いたXASからアルゴン、クリプトン、キセノンの捕獲効率を算出する方法を確立し、様々なターゲットに射ち込まれたアルゴン量を導出した。

当初、始原的隕石中のphase Qに類似していると考えられているケロジェン(石炭)が高い希ガス保持力を持っていると予測したが、実際に実験を行ったところ炭素同素体(高配向焼結グラファイト(HOPG)、アモルファスカーボン、多結晶合成ダイヤモンド、フラーレン、カーボンナノチューブ)やかんらん石、金属鉄と比較して石炭試料のアルゴンの捕獲効率は一桁以上低いことが判明した。さらに、クリプトン、キセノンでも同様の傾向があることが明らかとなった。

この事実は地球のケロジェンは希ガスの担体としては不相当であり、phase Qとの間に分子構造上大きな違いがあることを意味しているか、もしくはphase Qは炭素質物質ではない可能性が考えられた。もしもphase Qが炭素質物質である場合には、実際のphase Qはケロジェンよりもずっと秩序だった層状

構造を持っていると考えられた。

そこで Allende 隕石を酸分解した残渣、並びに同隕石から抽出した有機物を FE-SEM で観察を行ったところ、サブミクロンスケールの多数の難揮発性金属ナゲットが確認され、その元素組成が極めて多様であることが判明した。これらの微粒子を有機物と完全に分離することは現状では難しく、希ガスが本当に炭素質物質に濃縮されているかどうかを厳密に検証する必要があることが浮き彫りとなった。

5. 主な発表論文等

(研究代表者、研究分担者及び連携研究者には下線)

[雑誌論文](計 1 件)

OSAWA Takahito, HIRAO Norie, TAKEDA Nobuyori, and BABA Yuji, Argon Retentivity of Carbonaceous Materials: Feasibility of Kerogen as a Carrier Phase of Q-noble Gases in Primitive Meteorites. Earth, Planets and Earth 2009, 査読有

[学会発表](計 2 件)

OSAWA Takahito, HIRAO Norie, TAKEDA Nobuyori, and BABA Yuji, Noble gas retentivity of carbon allotropes and kerogen: Feasibility of kerogen as phase Q. 71st Annual Meeting of the Meteoritical Society, 2008.7.29, Matsue.

大澤 崇人 炭素質物質のアルゴン保持力 ~ phase Q は本当にケロジェンなのか 「地球外起源固体微粒子に関する総合研究」に関する小研究会 2007.12.14 東京大学宇宙線研究所

[図書](計 0 件)

[産業財産権]

出願状況(計 0 件)

取得状況(計 0 件)

[その他]

6. 研究組織

(1)研究代表者

大澤 崇人 (OSAWA TAKAHITO)

独立行政法人日本原子力研究開発機構 量子ビーム応用研究部門・研究員

研究者番号: 70414589

(2)研究分担者

(3)連携研究者