

科学研究費助成事業（科学研究費補助金）研究成果報告書

平成24年6月5日現在

機関番号：82110

研究種目：若手研究（B）

研究期間：2009～2011

課題番号：21740391

研究課題名（和文）超強遠心力場を利用した隕石中の始原始的希ガス捕獲成分の担体の探求

研究課題名（英文）Separation of carrier phase of primordial noble gas component trapped in primitive chondrites with ultra-high centrifugal force

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（和文）：始原始的隕石に含まれている希ガスの担体（phase Q）の分離を目指し、隕石の酸分解の残渣を世界最高の性能を持つ超遠心分離器によって分離を行った。酸分解残渣を蟻酸タリウムと共に最大 61 万 g、24 時間、到達温度 110°C の条件下で分離を行い、カプセルを開封して上下の分画を得た。それぞれの試料に対して精密な希ガス同位体分析を行った結果、重い分画に希ガスが濃縮していることが判明した。

研究成果の概要（英文）：A primitive carbonaceous chondrite was treated by hydrochloric acid and hydro fluoric acid and a carbonaceous residue was obtained. The residue was separated with an ultra-high centrifugation system and two fractions were obtained. Noble gas isotopic measurement was conducted for the fractions and extremely high concentrations of noble gases were detected for the heavier fraction.

交付決定額

（金額単位：円）

	直接経費	間接経費	合計
2009年度	1,500,000	450,000	1,950,000
2010年度	900,000	270,000	1,170,000
2011年度	1,000,000	300,000	1,300,000
年度			
年度			
総計	3,400,000	1,020,000	4,420,000

研究分野：地球惑星科学

科研費の分科・細目：地球宇宙化学

キーワード：Q成分・phase Q・惑星起源・進化・炭素質コンドライト・表面・界面物性・遠心分離

1. 研究開始当初の背景

太陽系の形成・進化過程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極めて重要である。なぜならば、希ガスは化学的に不活性な元素であるため、化学反応による影響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。太陽系の希ガス成分は、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る。

惑星型希ガスの中には様々な独立した成分が存在しているが、そのうち Xe, Kr といった重い希ガスの唯一の主要成分が Q 成分である。Q 成分は始原始的隕石をフッ酸・塩酸処理した後に残る僅かな残渣に濃集した希ガス成分であり（Lewis et al., 1975）、硝酸などの酸化剤で処理することで脱ガスすることが知られている。

2. 研究の目的

(1) 申請者はアエンデ隕石を酸分解した残渣を 2000g で遠心分離した試料を提供してもらい、電子顕微鏡で観察したところ、白金族元素等で構成されたサブミクロンスケールの難揮発性金属塊 (Refractory Metal Nugget, RMN) を多数発見した。これまでの研究で行われてきた化学分離法と遠心分離法では炭素質物質から RMN を完全に分離することができなかつたため、Q 成分の担体が炭素質物質であるかどうかを厳密に検証することができなかつた。そこで申請者は超強遠心力場発生装置を用いた超遠心分離とプローブを用いた RMN のピックアップによって炭素質物質と RMN とを完全に分離し、Q 成分の担体が何かを明らかにすることを目的とする。

(2) もし phase Q が炭素質物質ではなかった場合、種々の固体物質における希ガスの保持力を定量的に評価することは、phase Q の謎に間接的にアプローチすることとなる。そこで RMN が希ガスの担体である可能性を間接的に探求するため、白金族元素を含む種々の金属がどの程度の希ガス保持力を持ち、それがどのような物理パラメータで記述されるのかを明らかにすることを目的とする。

3. 研究の方法

(1) 炭素質隕石試料 10 g をテフロン容器に超純水と共に密封し、液体窒素とホットプレートを用いて氷結と融解を繰り返す (Freeze thaw) ことで粉碎する。細くなった試料を乾燥させ、重量測定を行った後にテフロン製容器内で HF/HCl 酸処理を行い、残渣を全てテフロン濾紙を用いて回収する。次にジオキサンとフッ化セシウム溶液を用いた抽出分離法で炭素質物質を分離する。抽出分離法では軽い遠心分離の後に水相と有機相の間に浮かんだ炭素質物質を取り出す。

回収した物質を蟻酸タリウムと共にステンレスカプセルに封入し、チタン合金製のローターにセットして、超遠心力場発生装置を用いて最大 61 万 g、24 時間、到達温度 110°C の条件下で超遠心分離を行う。カプセルは回収後に縦に切断し、カプセル中の試料の上部と下部とを分離して取り出して超純水で十分洗浄して蟻酸タリウムを除去する。得られたそれぞれの分画のうち、2~170 μg を超精密天秤で秤量した後タンタル製サンプルホルダーに入れ、これをレーザーポートに導入して超高真空中で軽くプレヒートする。試料は Nd-YAG CW レーザーを用いて含有している希ガスを全て抽出し、VG-5400 を用いて He から Xe まで全ての希ガス同位体を分析する。

(2) Mo, Hf, Ta, W, Re, Au と白金族元素

の単体金属に対して、3keV のエネルギーで Kr と Xe を照射し、表面の希ガス濃度を放射光軟 X 線を用いた X 線光電子分光 (XPS) によって定量する。この定量を行うため、SRIM で計算した深さプロファイルとスパッタリングイールドを考慮し、XPS のピーク面積から表面濃度を計算する方法を開発する。また、希ガスの「保持力」を定義し、これを用いて金属間の差異の評価を行う。

4. 研究成果

(1) 最終的な分離にて 4 つのフラクションを得た。水相と有機相の中間部に浮かび上がった物質を 2 とし、沈澱した物質を 3 とし、それぞれを超遠心分離にて U と L に分け、2U、2L、3U、3L と命名した。分析の結果、3U と 3L にはほとんど重い希ガスは含まれていなかった。2U と 2L の比較では、2L の重い希ガスの濃度は 2L より 1 桁以上高く、phase Q は 2L フラクションに濃縮していることが明らかとなった。この実験結果は、隕石中の炭素質物質、もしくはそれと強くコンタクトしている微小な物質のうち、重い物質中に phase Q が含まれていることを示している。またこの結果は、2U の主要な構成物質が炭素質物質であることから、少なくとも全ての炭素質物質中に均質に phase Q が含まれてはいないことを明確に示しているだけでなく、phase Q が炭素質物質ではない重い微小粒子である可能性さえ暗示しており、極めて意義深い。

(2) 白金族元素等へのイオン照射実験の結果、5d 元素に関しては、Kr_{2p3/2}、Xe_{3d3/2}、Xe_{3d5/2} の結合エネルギーは d 電子数に相関していた。さらに Xe の表面濃度は原子番号に相関していた。しかしそのような相関は Kr では見られないことが判明した。Xe の表面濃度の傾向はスパッタリングイールドを考慮した理論的な表面濃度とおおよそ一致した。

各金属の Kr と Xe の保持力を、理論的表面濃度と実験値との比として定義した。その結果、保持力とターゲットの原子番号との間には相関がなかったが、金属中の希ガス原子が持つ弾性エネルギーとは正の相関を持つことが示された。ターゲット金属中の希ガスの拡散の活性化エネルギーが弾性エネルギーで代表されうらなら、希ガス保持力は定性的に説明可能であった。

これらの結果は従来の学説を修正するものであり、以下の重要な帰結を得ることができる。

① 金属中に射ち込まれた Xw の表面濃度は d 電子数と相関しているように見えているが、実際はほぼスパッタリングイールドのみで支配されている。

② 希ガスの表面濃度はスパッタリングイールドと希ガス保持力の 2 つのパラメータで

制御され、保持力は弾性エネルギーと相関を持つ。Kr と Xe が同時にターゲットに射ち込まれる場合には、金属間で Kr/Xe 比に大きな差異が生じることが予測され、この比はターゲット原子の質量には全く相関しない。

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 T. (2012) Kr and Xe Ions Implanted on the Surfaces of Mo, Hf, Ta, W, Re, Au and Platinum Group Elements. Nuclear Instruments and Methods in Physics Research B 274, 93-99.

[学会発表] (計 1 件)

Osawa Takahito, Separation of noble gas carrier in primitive meteorites using ultra centrifugation. 2011 Japan-Korea Joint Meeting of Isotope-Ratio Mass Spectrometry, The Mass Spectrometry Society of Japan, Busan South Lorea, 2011.11.24

[図書] (計 1 件)

Osawa Takahito (2012) Solar wind noble gases in micrometeorites. In Exploring the Solar Wind pp. 121-140. Ed. by Marian Lazar, InTech, Croatia.

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

なし

(3) 連携研究者

なし