

科学研究費助成事業 研究成果報告書

平成 26 年 5 月 28 日現在

機関番号：12608

研究種目：基盤研究(B)

研究期間：2011～2013

課題番号：23340171

研究課題名(和文) 重元素安定同位体の高精度分析による原始太陽系星雲の物質不均質分布の解明

研究課題名(英文) Origin of heterogeneous isotope distribution for heavy elements in the early solar system

研究代表者

横山 哲也 (Yokoyama, Tetsuya)

東京工業大学・理工学研究科・准教授

研究者番号：00467028

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 15,500,000円、(間接経費) 4,650,000円

研究成果の概要(和文)：本研究は初期太陽系における重元素安定同位体の不均質分布について、その程度や生み出した原因の解明を目的とした。コンドライトや分化隕石の全岩試料、及びコンドライト構成要素(CAI・コンドリュール・酸リーチング液など)に関し、TIMSを用いてSr・Nd・Te・Moの高精度同位体分析を行った。その結果、隕石母天体スケールの同位体異常を引き起こすのは50%凝縮温度が1300-1600Kの元素であることが分かった。これはダストと各元素の揮発性が同位体異常に大きく影響することを意味し、超新星粒子の流入やダストサイズによる分別よりも、太陽系の温度構造とその進化が同位体異常の発生に強く寄与したことを示唆する。

研究成果の概要(英文)：We have investigated the origin of heterogeneous isotope distribution for heavy elements in the early solar system. Highly precise isotope analyses of Sr, Nd, Te, and Mo were conducted using TIMS for bulk rocks of chondrites and nonchondrites, as well as for chondrite components (e.g., CAIs, chondrules, acid leachates). We found that planetary scale isotope heterogeneities exist only for moderately refractory elements with 50% condensation temperature between 1300K to 1600K (e.g., Cr, Mo, Sr). This implies that isotope heterogeneities for moderately refractory elements were created by a dynamical history of dust grains related to thermal processing, material transportation, and mixing in the protoplanetary disk prior to planetesimal formation, rather than assuming processes such as supernova injection and/or grain-size sorting.

研究分野：数物系科学

科研費の分科・細目：地球惑星科学・地球宇宙化学

キーワード：高精度同位体分析 原始太陽系星雲 隕石 安定同位体 TIMS 同位体異常

1. 研究開始当初の背景

近年、太陽系の起源に関する既成概念が大きな転換を迎えようとしている。これは太陽系研究の柱である理論・探査・観測におけるめざましい進歩に依るところが大きい。物質科学においても地球外物質の化学分析における技術革新が太陽系研究を大きく変化させつつある。例えば次世代質量分析計の登場により、元素によっては従来の10倍の精度向上(同位体測定誤差<5ppm)を達成した結果、ある種のコンドライトや鉄隕石は地球物質と明確に異なる重元素安定同位体組成を持つ(Cr, Mo, Ru, Ba, Nd, Sm など)ことが明らかとなった。この重元素安定同位体異常の存在は円盤内の先太陽系物質(プレソーラー粒子)の時空間的不均質分布を示唆し、それは分子雲や円盤内で太陽系物質が同位体的に均質化を受けたとする「均質太陽系モデル」と矛盾する。しかし、不均質を残す物理化学的機構はよく分かっていないことに加え、Osのように不均質が観測されない元素も存在する。この不一致の原因として円盤内粒子の選択的蒸発や隕石母天体変質・変成過程も考えられているが、一方で分析時の問題も指摘されている。このように隕石の重元素安定同位体異常に関する統一的理解は得られておらず、再検討を要するのが現状である。

2. 研究の目的

本研究は原始太陽系星雲の化学的不均質、特に惑星形成時における重元素安定同位体の不均質分布に焦点を当て、その不均質の程度や生み出した原因を解明することを目的とする。最新の質量分析技術を駆使して始原的隕石の重元素同位体組成を超高精度で測定し、その結果を原始惑星系円盤内におけるダスト粒子の輸送・成長に関する物理モデリングと融合する新しい研究を展開する。本研究の結果は太陽系のみならず、系外惑星の物質科学的新制約にもなるであろう。また将来の惑星サンプルリターン計画に強い指針を示すものと考えられる。このような初期太陽系重元素同位体マッピングを足がかりに、分子雲の収縮に端を発する原始太陽系星雲の化学進化を定量的に議論し、新しい太陽系進化像を得ることが研究期間後も持続する長期的な目標である。

3. 研究の方法

(1) 初期太陽系重元素同位体マッピングを行うため、太陽系初期の情報を強く残すコンドライト隕石を中心に広範な試料選択を行い、隕石試料を入手する。

(2) 試料の完全溶解を目的とし、アンモニウム塩アルカリ融解法および液相レーザーアブレーション法による新しい試料分解法を開発する。

(3) 物理化学的性質に応じた分類により決定した測定元素に関し、それぞれ最適な同位体分析法を立ち上げる。

(4) 隕石全岩の同位体測定を行う。また、隕石の同位体異常を保持する相を特定するため、隕石構成要素別の分析を行う。

(5) 最終的に得られた同位体データを原始惑星系円盤におけるダスト粒子の輸送・成長に関するモデル計算と融合させ、同位体異常を作った原因やその惑星形成・進化に対する影響を議論する。

4. 研究成果

(1) 研究代表者が元々所持していた試料に加え、販売業者からの購入や他研究機関からの譲渡などにより、コンドライトは炭素質・エンスタタイト・普通・Rをそれぞれ17種・5種・59種・2種、エイコンドライトを14種、更に石鉄・鉄隕石13種を揃えた。これにより初期太陽系の幅広い時空間をカバーする試料群を得た。

(2a) 液相レーザーアブレーション法による試料分解法を開発した。これは液体に沈めた固体試料にフェムト秒レーザーを照射して試料をナノ粒子サイズに分解する新手法である。普通隕石の金属相・硫化物相および鉄隕石に本手法を適用し、Fe同位体測定を行った。その結果、風化生成物の影響を最小限に抑え、正確な安定同位体情報を引き出すことができた(岡林識起:博士論文, 2014)。しかし、試料掘削速度に問題があり、隕石全岩には適用が困難であることが分かった。

(2b) アンモニウム塩融剤を用いた試料の分解法を試みた。しかし融解後に発生する固形物(酸化物など)の処理に問題があることが判明したため、開発を中止した。

(2c) 試料にフッ酸・硝酸・硫酸の混酸を加え、高温高压分解容器DAB-2(Berghof社)を用いて処理することにより、難溶性プレソーラー粒子(例えばSiC)が分解可能であることを見いだした(横山ほか:地球化学会年会, 2013)。そのため、完全分解を要する試料には高温高压分解法の適用がふさわしいと結論づけた。

(3) TIMSを用いた超高精度同位体分析技術の開発をSr, Nd, Mo, Teに関して行った。MoおよびTeに関しては、負イオンTIMS法の開発に加え、それぞれの化学分離に関しても新たな方法を立ち上げた(Fukami and Yokoyama, JAAS, 2014; Nagai and Yokoyama, Anal Chem, 2014)。

(4a) 様々な隕石全岩の高精度Sr同位体分析を行った(図1: Moynier et al., ApJ, 2012)。

炭素質コンドライト (CC) は種類毎に異なる $^{84}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ 比を持ち、それらは普通コンドライト・エンスタタイトコンドライト・地球・月・火星・ベスタ由来の隕石より高い値を示した。これは Sr が初期太陽系において不均質分布していたことを示唆する。

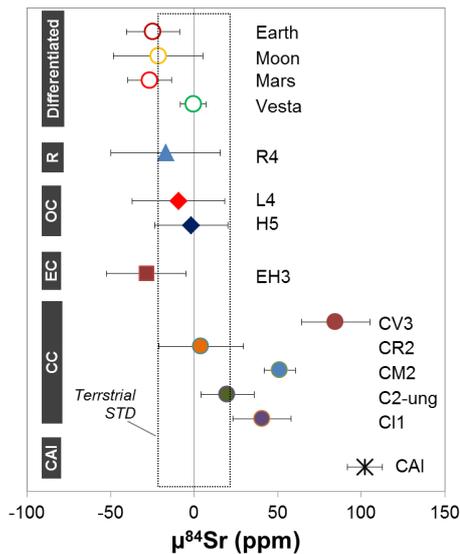


図1 隕石の Sr 同位体比

(4b) コンドライト隕石の段階的酸溶解液および残渣試料の高精度 Sr 同位体分析を行った (図 2: Yokoyama et al., EPSL, submitted)。Allende では CAI に由来する高い $^{84}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ を持つ成分が存在する一方、Murchison や Tagish Lake には極めて低い $^{84}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ を持つ成分が存在する。この低い $^{84}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ 比は AGB 星由来のプレソーラー-SiC 粒子が原因であることが分かった。

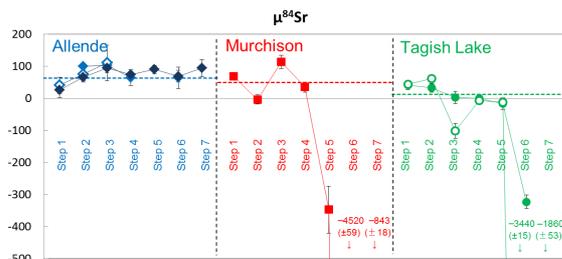


図2 コンドライト酸溶解液の Sr 同位体比

(4c) コンドライト隕石の酸溶解液および残渣試料の高精度 Te 同位体分析を行った (Fukami and Yokoyama, LPSC, 2014)。Sr と異なり、Allende, Murchison, Tagish Lake のいずれにも酸溶解液に Te 同位体異常は存在しなかった。例外的に Allende の耐酸性残渣にわずかな Te 同位体異常が認められた。これはナノダイヤモンドに由来する可能性が高いが、その同位体的特徴など、詳細については今後検討が必要である。

(4d) コンドライト隕石全岩の Mo 同位体比

を測定した (Nagai and Yokoyama, LPSC, 2013)。Allende および Murchison には s-process に欠乏した同位体異常が確認され、太陽系内の不均質を支持する結果となった。一部の同位体比で先行研究と異なる結果が得られたが、それが分析の問題なのか、試料の不均質性を反映しているのか、今後の検討が必要である。

(4e) Allende から抽出した CAI およびコンドライトの高精度 Sr 同位体分析を行った。CAI はコンドライトよりも更に高い $^{84}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ 比を持つことが知られていたが、単一の CAI 内部に $^{84}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ の不均質が存在することを初めて見いだした (Myojo et al., LPSC 2014)。また、コンドライトがマトリックスより高い $^{84}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ 比を持つことも見いだした (Okui et al., LPSC, 2014)。いずれも予察的ではあるが、隕石構成要素の成因について強い制約を与える重要な結果が得られた。

(4f) コンドライト隕石全岩の高精度 Nd 同位体測定を行った。高温高压分解容器を用いて完全分解した試料を測定したところ、先行研究と異なり、 $^{142}\text{Nd}/^{144}\text{Nd}$ 以外の Nd 同位体異常は観測されなかった。このことは Nd が初期太陽系においてほぼ均質な同位体分布を持つことを示唆する。

(5a) 理論研究ではまず隕石母天体が形成される際に生成し得る主要元素の不均一性について、惑星集積理論に基づいた検討を行った。その結果、小惑星は百分の一程度の不均一性を内包する可能性があることがわかった。次に、原始惑星系円盤中のダストの移動を調べ、太陽系初期における物質の不均質性や均質化について量的な理解を得ることを目指し、円盤モデルの数値シミュレーションコード開発を進めた。同時に関係する物理的・化学的素過程の洗い出し作業も進めた。

(5b) 太陽系における重元素同位体異常について、我々のグループで測定した元素 (Sr・Nd・Te・Mo・Os) に加え、これまで報告された隕石の同位体異常データをコンパイルすることにより、同位体異常が生じるメカニズムについて考察を行った。まず、各元素は 隕石全岩および隕石構成要素ともに同位体異常を持つ (Sr・Mo・Ru・Cr など)。

隕石全岩に同位体異常はなく、隕石構成要素に同位体異常を持つ (Os・Hf など) および 隕石全岩および構成要素ともに同位体異常を持たない (Te など) という3つのグループに大別されることが明らかとなった。それぞれのグループは元素の揮発性と強い相関があり、 α は 50%凝縮温度が 1600K 以上の難揮発性元素、 β は 50%凝縮温度が 1300K 以下のやや揮発性元素、 γ はその中間の凝縮温度を持つ。従って、隕石母天体スケールの同位体異常を引き起こすのは 50%凝縮温度が

1300-1600K 程度の元素に限られることが分かった。このことは初期太陽系に存在したダストの温度安定性と各元素の揮発性により同位体異常が引き起こされたことを意味しており、これまで考えられてきた超新星粒子のインプットやダストのサイズによる分別よりも、太陽系の温度構造とその進化が同位体異常の発生に強く寄与していることを示唆する。

理論面では原始惑星系円盤中のダストの移動を調べるためのコード開発を行ってきたが、新たに円盤の温度構造や、ダストの化学種と温度安定性に関する情報を付加する必要があることが分かった。これは本研究の期間を超えて取り組むべき新たな課題であり、今後の太陽系研究における重要な転換点となる可能性がある。

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22件) 全て査読有

Nagai, Y. and Yokoyama, T. Chemical Separation of Mo and W from Terrestrial and Extraterrestrial Samples via Anion Exchange Chromatography. Anal. Chem. in press, 2014. DOI: 10.1021/ac404223t

Fukami, Y. and Yokoyama, T. Precise tellurium isotope analysis by negative thermal ionization mass spectrometry (N-TIMS) J. Anal. St. Spectrom. 29, 520-528, 2014. DOI: 10.1039/c3ja50317h

Maruyama, S., Ikoma, M., Genda, H. Hirose, K., Yokoyama, T. and Santosh, M. The naked planet Earth: Most essential pre-requisite for the origin and evolution of life. Geoscience Frontiers. 4, 141-165, 2013. DOI: 10.1016/j.gsf.2012.11.001

Moynier, F., Day, J.M.D., Okui, W., Yokoyama, T., Bouvier, A., Walker, R.J. and Podosek, F.A. Planetary-scale strontium isotopic heterogeneity and the age of volatile depletion of early solar system materials. Astrophys. J. 758, 45-51, 2012. DOI:10.1088/0004-637X/758/1/45

Okabayashi, S., Yokoyama, T.D., Kon, Y., Yamamoto, S., Yokoyama, T., and Hirata, T. Evaluation of Laser Ablation in Liquid (LAL) technique as a new sampling technique for elemental and isotopic analysis using ICP-mass spectrometry. J. Anal. Atom. Spectrom. v.26, p.1393-1400, 2011. DOI: 10.1039/c0ja00200c

ほか 17 件

〔学会発表〕(計62件)

Yokoyama, T., Fukami, Y., Nagai, Y., Nakamoto, T. Volatility control of isotope heterogeneity in the early solar system. Lunar and Planetary Science Conference, 2014/3/17-21, The Woodlands, TX, USA.

Myojo, K., Yokoyama, T., Sano, Y., Takahata, N., Sugiura, N., Wakaki, S. Strontium isotope heterogeneity within single CAI from Allende. Lunar and Planetary Science Conference, 2014/3/17-21, The Woodlands, TX, USA.

Okui, W., Yokoyama, T., Usui, T., Iwamori, H., Uno, M. Strontium stable isotope anomalies in Allende chondrules. Lunar and Planetary Science Conference, 2014/3/17-21, The Woodlands, TX, USA.

Fukami, Y., Yokoyama, T., Okui, W., Yokoyama, T., Usui, T., Iwamori, H., Uno, M. Tellurium isotope anomaly in acid resistant fraction of Allende meteorite. Lunar and Planetary Science Conference, 2014/3/17-21, The Woodlands, TX, USA.

Yokoyama, T., Takahashi, H., Yamazaki, H. ^{142}Nd isotope anomaly in chondrite revisited. Goldschmidt Conference, 2014/8/25-30, Florence, Italy

ほか 57 件

〔図書〕(計2件)

横山哲也 地球と宇宙の化学事典 日本地球化学会編 朝倉書店 (執筆担当: 元素合成モデル、白金元素、同位体存在度、表面電離型質量分析計) 500 ページ, 2012

Hirata, T. Advances in laser ablation - multi-collector ICP-MS, in "Isotopic Analysis - Fundamentals and Applications using ICP-MS" eds by F. Vanhaecke and P. Degryse, Wiley VCH, 550 pages, 2012.

〔その他〕

ホームページ等

<http://www.geo.titech.ac.jp/lab/yokoyama/index.html>

6. 研究組織

(1) 研究代表者

横山 哲也 (YOKOYAMA, Tetsuya)

東京工業大学大学院理工学研究科・准教授

研究者番号: 00467028

(2) 研究分担者

平田 岳史 (HIRATA, Takahumi)
京都大学大学院理学研究科・教授
研究者番号： 1 0 2 5 1 6 1 2

中本 泰史 (NAKAMOTO, Taishi)
東京工業大学大学院理工学研究科・准教授
研究者番号： 6 0 2 6 1 7 5 7

(3)連携研究者
なし