

科学研究費助成事業 研究成果報告書

平成 30 年 6 月 25 日現在

機関番号：82617

研究種目：基盤研究(C) (一般)

研究期間：2015～2017

課題番号：15K05356

研究課題名(和文) 隕石中のバリウム精密同位体測定による太陽系初期の水の存在時期の推定

研究課題名(英文) Estimation of the existence period of water in the early solar system by the precise barium isotopic ratio measurements of meteorites

研究代表者

米田 成一 (Yoneda, Shigekazu)

独立行政法人国立科学博物館・理工学研究部・グループ長

研究者番号：60210788

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 3,600,000円

研究成果の概要(和文)：太陽系初期に水が存在した証拠は隕石に残っている。本研究では隕石中のバリウムの同位体比を精密測定し、消滅核種Cs-135によるBa-135の同位体異常の検出を行い年代測定を試みた。スタンダード溶液では約10-40ppmの同位体測定精度が得られ、Ba-130濃縮同位体等でダブルスパイク法を検討した。Tagish Lake炭素質隕石ではBa-135およびBa-137に顕著な同位体異常が見られた。これらはプレソーラー粒子によって原始太陽系にもたらされ不均質に保持されていると考えられる。また、Cs/Ba比と同位体過剰には関連が見られず、セシウムが初期の水質変成で移動したためと推測される。

研究成果の概要(英文)：Evidence of the existence of water in the early solar system remains in meteorites. In this study, the isotopic ratios of barium in meteorites were precisely measured, and the age determination was examined by detecting the isotopic anomalies of Ba-135 due to the extinct nuclide Cs-135. About 10-40 ppm isotopic measurement accuracy was obtained with the standard solution, and the double spike method was studied using the Ba-130 and other concentrated isotopes. In Tagish Lake carbonaceous chondrites, significant isotopic anomalies were observed in Ba-135 and Ba-137. These are thought to be brought to the primitive solar nebula with presolar grains and are retained heterogeneously in meteorites. No correlation was found between the Cs/Ba ratio and the isotopic excess, hence it is presumed that cesium migrated due to the water at the early metamorphic process.

研究分野：宇宙化学、隕石学

キーワード：同位体・放射年代 隕石 バリウム ダブルスパイク法 太陽系初期

1. 研究開始当初の背景

(1) 隕石中に残る水

隕石、特に始原的なコンドライトは、太陽系が形成されたとき最も初めに固化した物質の集まりであり、その後、全体が溶融することなく保存されてきたため、原始太陽系の情報をそのまま留めている。水は原始太陽系星雲において高温では水蒸気、低温では氷として普遍的に存在したと考えられているが、液体の水の存在条件は限られている。しかし、Zolensky らは普通コンドライトである Monahans 隕石中に太古の塩水が蒸発してできた岩塩結晶を見だし、その結晶中の気泡に液体の水が閉じこめられていることを発見した[1]。また、多くの炭素質コンドライトでは、隕石母天体(小惑星と考えられる)上において、水により無水鉱物が含水鉱物へ変わる水質変性を受けている(例えば、[2])。このように太陽系初期には液体の水が存在した証拠が多く残されているが、それがいつ頃、どれくらいの期間に渡って存在したかは詳しく分かっていない。

(2) 消滅核種

この疑問に答えるために、さまざまな年代学的研究が行われてきた。特に、太陽系形成時には存在していたが、半減期が短いために46億年経った現在では壊変し尽くして存在しない消滅核種は、壊変してできた娘核種の同位体異常として検出できる場合があり、太陽系初期の年代学に応用されている。このような消滅核種として Be-10, Al-26, Ca-41, Mn-53, Fe-60, Pd-107, I-129, Sm-146, Hf-182, Pu-244 の10核種がこれまで確認されているが、申請者らは普通コンドライトである Beardsley 隕石から Cs-135(半減期230万年)によると考えられる Ba-135 の明確な同位体異常を世界で初めて発見した[3]。この Cs はアルカリ金属元素であり、水質変成によって大きく移動する可能性がある。

2. 研究の目的

本研究では隕石中のバリウムの同位体比を測定し、消滅核種 Cs-135 による Ba-135 の同位体異常を検出して年代測定を行う。セシウムはアルカリ金属元素であり水に良く溶けて移動するため、この年代により太陽系初期の水の存在時期に新たな制約を与えることを目的とする。またこの目的のために、ダブルスパイク法を用いて隕石中のバリウムの同位体比を精密に測定する方法を確立する。

3. 研究の方法

(1) 質量分析計の測定精度・確度の向上

国立科学博物館では新宿分館にあった研究部門の筑波移転に伴い、平成22年度末に質量分析計を最新のものに更新し、これまでの質量分析計に比べて同位体比の測定精度を5-10倍向上させることができた。例えば Sr と Nd においては、それぞれ4ppm と3ppm

の繰り返し測定精度を得られた[4]。Ba においても測定精度が10ppmの超高精度測定が報告されており[5]、本研究でも目標とする。新質量分析計には9つの通常のファラデー検出器に加えて、微小なイオンビームを検出できる7つのマルチイオンカウンティングシステムが搭載されている。これまで同時検出を行っていなかった同位体存在度の低い Ba-130 や Ba-132 などの p-プロセス核種の同位体比を、同時かつ精度よく測定を行うことも目指す。一方、このような精度を得るためには質量分析計内で測定の際に起こる質量分別効果を補正する必要がある。通常はある2つの同位体の比を既知で一定の値と仮定して計算する。しかし隕石試料の場合、選んだ2つの同位体に宇宙線照射や核合成由来の同位体が変わり、地球と違った同位体比になっている可能性がある。ダブルスパイク法は既知量の濃縮安定同位体を2種類同時に加えることにより、質量分別の補正を仮定を用いずに行うことができ、正確な真の同位体比測定を行えるとともに、同時に定量分析も可能とする。

(2) 隕石中のバリウム同位体分析測定

これまで消滅核種による Ba-135 の同位体異常は分析精度の限界により一部の隕石にしか明確な異常を発見できなかった。しかし、新質量分析計とダブルスパイク法の導入により飛躍的に分析精度が高まるため、再度、様々な隕石の測定を行い同位体異常の検出を目指す。

4. 研究成果

(1) バリウム精密同位体比測定

測定には国立科学博物館筑波研究施設に設置された表面電離型質量分析計 Triton plus を用いた。Nd スタンダード溶液では3ppm の同位体比測定精度を達成しているが、Ba スタンダード溶液では約10-40ppm(同位体存在度が低い Ba-130, Ba-132 を除く)の同位体測定精度が得られた(一例を表1に示す)。これは Brennecka ら[5]と同等の測定精度である。同位体存在度が低い Ba-130, Ba-132 の測定精度は通常ファラデー検出器で100-200ppm 程度であった。

表1. Ba スタンダード溶液の同位体比 ($^{134}\text{Ba}/^{136}\text{Ba}=0.307776$ で規格化) [雑誌論文1]

	$^{130}\text{Ba}/^{136}\text{Ba}$	$^{132}\text{Ba}/^{136}\text{Ba}$	$^{135}\text{Ba}/^{136}\text{Ba}$
Ba standard	0.0134819	0.0128990	0.839304
±2	0.0000011	0.0000019	0.000017
(ppm)	85	147	20
	$^{137}\text{Ba}/^{136}\text{Ba}$	$^{138}\text{Ba}/^{136}\text{Ba}$	
Ba standard	1.429093	9.12955	
±2	0.000011	0.00021	
(ppm)	8	23	

(2) ダブルスパイク法

ダブルスパイク法は Ba の濃縮安定同位体を 2 種類組み合わせ未知試料に既知量加えることにより質量分別効果を補正する。主に Ba-130 や Ba-132 と Ba-138 の組み合わせを使って検討を行った。スパイク溶液の同位体比測定結果を表 2 に示す。Ba-130 および Ba-132 スパイクは濃縮度があまり高くなく、それぞれ約 38% と 22% で、同程度以上の Ba-138 を含んでいた。このため、Ba-138 スパイクと混合する必要はなく、そのままダブルスパイクとして使用できるのではないかと考えられる。そのためには真の同位体比を求める必要があるが、重量法が使えないため、total evaporation 法を検討している。また、地質調査所の標準岩石試料と普通コンドライトの隕石試料について実試料への適用を検討しているが、まだ確立に至っていない。

表 2. Ba スパイク溶液の同位体比

spike	¹³⁰ Ba/ ¹³⁶ Ba	¹³² Ba/ ¹³⁶ Ba	¹³⁴ Ba/ ¹³⁶ Ba
Ba-130	6.698633	0.1627603	0.6344326
±2	0.000108	0.0000025	0.0000046
Ba-132	0.0658315	2.696688	1.9224486
±2	0.0000030	0.0000078	0.0000288
Ba-138	0.00750	0.00867	0.29012
±2	0.00016	0.00020	0.00022

spike	¹³⁵ Ba/ ¹³⁶ Ba	¹³⁷ Ba/ ¹³⁶ Ba	¹³⁸ Ba/ ¹³⁶ Ba
Ba-130	1.1352537	1.1992221	7.020201
±2	0.0000068	0.0000077	0.000050
Ba-132	1.7913737	0.8859319	4.003298
±2	0.0000143	0.0000066	0.000056
Ba-138	0.87459	6.57994	2704.08
±2	0.00029	0.00139	0.54

(3) 隕石や月試料中のバリウム同位体分析

従来の同位体分析法により、分化した隕石であるユークライト[学会発表 1, 3, 4, 9]および月の表層土壌試料[学会発表 8, 12]の Ba 同位体の測定を行った。ユークライトは地球の標準物質と測定精度内でよく一致し(図 1)、ユークライト母天体での大規模溶融時には同位体の均一化が起こっていたことが示唆される。一方、月試料では軽い同位体 Ba-130, Ba-132 と重い同位体 Ba-137, Ba-138 に同時に顕著な同位体過剰が見られた。前者は宇宙線による核破砕反応、後者は中性子捕獲反応によるものと思われるが、今後の検証が必要である。

また、炭素質隕石の一種である Tagish Lake 隕石の Ba 同位体測定を行った[雑誌論文 1, 学会発表 2, 6]。酸による段階溶出を行い酸残渣と全岩を含め 6 つのフラクションを分析し

たところ、Ba-135 および Ba-137 に顕著な同位体異常が見られた(図 2)。これらは s-プロセスで作られた核種であり、プレソーラー粒子によって原始太陽系にもたらされ隕石内に不均質に保持されていると考えられる(図 3)。また、Cs/Ba 比と Ba-135 の同位体の過剰には関連が見られず、セシウムが太陽系初期の水質変成で移動したためと推測される(図 4)。

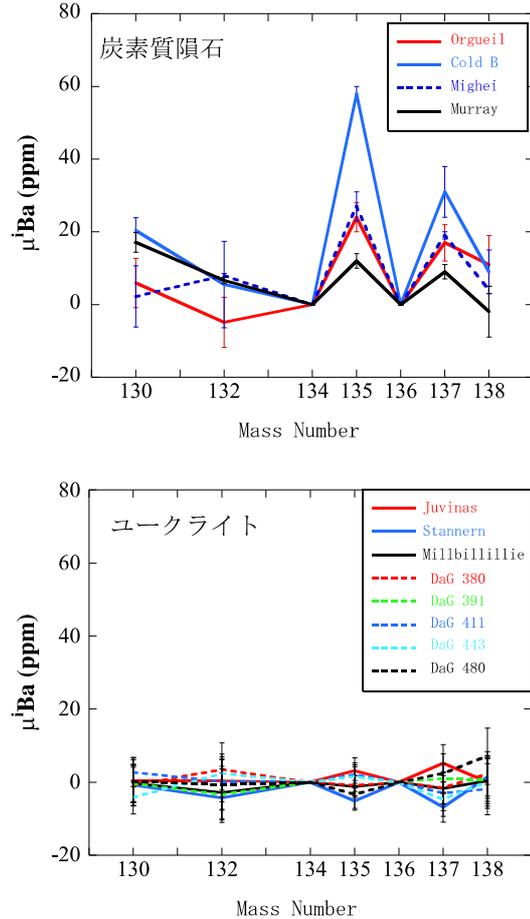


図 1. ユークライト(下)と炭素質隕石(上)の Ba 同位体比(縦軸は標準物質からの変動値)

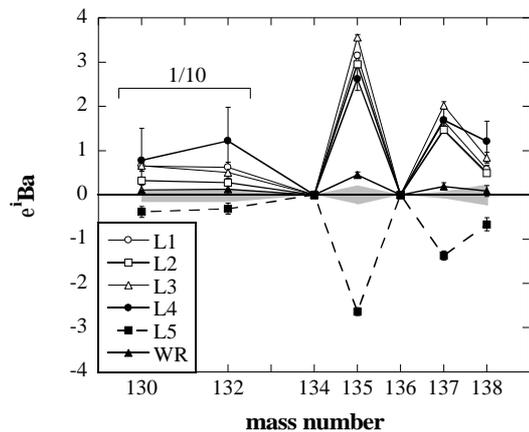


図 2. Tagish Lake 隕石の Ba 同位体比 (1 は 1/10⁴ = 100 ppm)

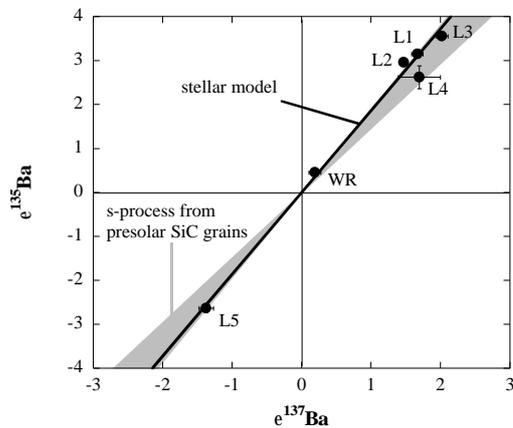


図 3. Ba-135 と Ba-137 の同位体異常の相関とプレソーラー粒子による組成変化範囲

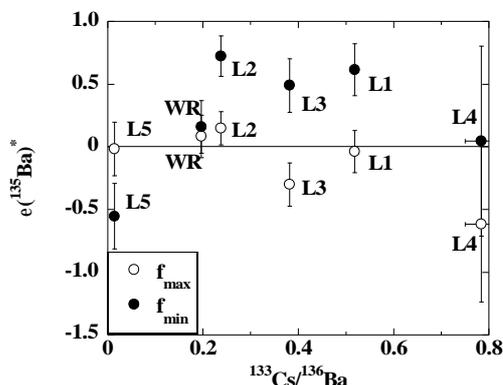


図 4. Cs/Ba 比と Ba-135 同位体過剰の相関図

<引用文献>

Zolensky M. et al., 1999. Science 275, 1377
 Brearly A.J., 2006. "Meteorites and the Early Solar System II" p.587
 Hidaka, H., Y. Ohta, S. Yoneda and J.R. DeLaeter, 2001. Earth Planet. Sci. Lett., 193, 459-466.
 Yoneda, S., H. Hidaka, et al., 2012. Bulletin of the National Museum of Nature and Science, Series E, 35, 1-6.
 Brennecka et al., 2010. Meteoritics & Planet. Sci. 45, #5318

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)

Sakuma, K., H. Hidaka and S. Yoneda, 2018. Isotopic and Chemical Evidence for Primitive Aqueous Alteration in the Tagish Lake Meteorite. Astrophys. J., 853: 92 (8pp).
<https://doi.org/10.3847/1538-4357/aa1e3>

[学会発表](計 12 件)

Hidaka, H., S. Yoneda and S.-G. Lee, 2018. La-Ce Chronometry of Eucrites and Diogenites. 49th Lunar and Planetary Science Conference, Houston, U.S.A. Abstract #1842.
 Sakuma, K., H. Hidaka and S. Yoneda, 2017. Rb-Sr and Cs-Ba systematics of the Tagish Lake meteorite. The 8th Symposium on Polar Science, Tokyo. Abstract #0A_00215.
Hidaka, H. and S. Yoneda, 2017. Cosmic-ray exposure histories of eucrites studied from Sm and Gd isotopic compositions. The 8th Symposium on Polar Science, Tokyo. Abstract #0A_00182.
Hidaka, H. and S. Yoneda, 2017. Systematic REE Isotopic Studies of Eucrites. 80th Annual Meeting of the Meteoritical Society, Santa Fe, U.S.A. Meteoritics and Planetary Sciences, 52: Abstract #6091.
Hidaka, H. and S. Yoneda, 2017. Isotopic evidence for intensive activity of young Sun from REE isotopic compositions in CAIs. 27th V. M. Goldschmidt Conference 2017, Paris, France. Abstract #3608.
 佐久間圭佑・日高 洋・米田成一, 2017. 水質変成の痕跡を示す Tagish Lake 隕石の Rb-Sr および Cs-Ba 壊変系. 2017 年度日本地球化学会年会, 東京工業大学. 3A03. 講演要旨集, p.214.
日高 洋・米田成一, 2017. 太陽宇宙線初期照射説の同位体化学的検証: Allende 隕石の CAI 中の La 同位体比測定. 2017 年度日本地球化学会年会, 東京工業大学. 3A15. 講演要旨集, p.227.
Hidaka, H. and S. Yoneda, 2017. Systematic isotopic variations of barium, lanthanum, and samarium due to cosmic-ray irradiation in lunar surface materials. 48th Lunar and Planetary Science Conference, Houston, U.S.A. Abstract #1783.
Hidaka, H. and S. Yoneda, 2016. Rb-Sr and Cs-Ba Systematics of Eucrites. 79th Annual Meeting of the Meteoritical Society, Berlin, Germany. Meteoritics and Planetary Sciences, 51: Abstract #6125.
Hidaka, H., T. Higuchi and S. Yoneda, 2016. Redistribution of alkaline elements in chondrules of the Sayama (CM2) meteorite: Possible alteration effect in association with aqueous activity in the early solar system. 47th Lunar and Planetary Science Conference, Houston, U.S.A. Abstract

#1782.

Hidaka, H. and S. Yoneda, 2015. Ba isotopic heterogeneity in the solar system. 25th V. M. Goldschmidt Conference 2015, Prague, Czech Republic. Abstract #3239.

Hidaka, H. and S. Yoneda, 2015. Systematic isotopic variations of strontium, barium and REE of surficial lunar soils. 78th Annual Meeting of the Meteoritical Society, Berkeley, U.S.A. Meteoritics and Planetary Sciences, 50: Abstract #5101.

6. 研究組織

(1) 研究代表者

米田 成一 (YONEDA, Shigekazu)

国立科学博物館・理工学研究部・グループ
長

研究者番号：60210788

(2) 研究分担者

日高 洋 (HIDAKA, Hiroshi)

名古屋大学・環境学研究科・教授

研究者番号：10208770