

令和元年5月23日現在

機関番号：13901

研究種目：挑戦的萌芽研究

研究期間：2016～2018

課題番号：16K13915

研究課題名(和文) 消滅核種Cs-135の原始太陽系存在度決定と年代学への応用

研究課題名(英文) Determination of the initial abundance of presently extinct nuclide Cs-135 in the early solar system and its chronometrical applications

研究代表者

日高 洋(Hidaka, Hiroshi)

名古屋大学・環境学研究科・教授

研究者番号：10208770

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 2,700,000円

研究成果の概要(和文)：太陽系内始原惑星物質の母天体上での水質変成過程は、最初期に起きるイベントの一つである。本研究では、水質変成の痕跡のある5つの隕石について、段階的酸処理を施した試料から化学分離したバリウム同位体等の精密測定を行い、太陽系外からの複数の原子核合成成分が存在すること、これらの成分が付加することでCs-135による壊変生成物の存在が判断できなくなることを同位体化学的に検証した。本研究に用いた試料の一つ、Tagish Lake隕石についてはイオンマイクロプローブを用いた局所分析による個々の微小鉱物のバリウム同位体測定を試みたが、Cs-135の壊変によるBa-135の過剰成分は発見できなかった。

研究成果の学術的意義や社会的意義

太陽系の進化については、天文学、宇宙物理学における観測や数値シミュレーションによるアプローチから構築されるモデルと、太陽系の始原惑星物質であるコンドライトの鉱物学的観察や化学組成・同位体組成などの物質科学的な分析データに基づく進化モデルとの融合は必須である。本研究で太陽系の始原惑星物質に含まれるバリウムの同位体不均一性を見出したことは、原始太陽系の物理化学的環境を考察するうえで宇宙科学的意義がある。本研究で用いた炭素質コンドライトは、現在進行中である、2020年に帰還予定のハヤブサ2のリターンサンプル計画と今後、密接に関係してくることから社会的関心は高く、意義がある。

研究成果の概要(英文)：The aqueous alteration is one of the primitive activities on the early solar planetary bodies. In this study, precise determination of Ba isotopic compositions for the chemical separates with stepwise acid leaching technique were performed on five carbonaceous chondrites. As the isotopic results, it is concluded that several kinds of nucleosynthetic components out of the solar system were added heterogeneously in the meteorite parent bodies, and that these additional nucleosynthetic components interfere the existence of radiogenic Ba-135 decayed from Cs-135. Additionally, in-situ Ba isotopic analyses by using an ion micro probe were performed on individual minerals of one of five samples, the Tagish Lake meteorite. No isotopic evidence for the radiogenic Ba-135 was found in the individual minerals.

研究分野：同位体宇宙地球化学

キーワード：隕石 バリウム セシウム 同位体

## 様式 C-19、F-19-1、Z-19、CK-19 (共通)

### 1. 研究開始当初の背景

数十万年～数千万年の半減期を有する放射性核種、いわゆる消滅核種は、現在は全て壊変し尽くしているが、原始太陽系にはある程度の量で存在し、太陽系内惑星始原物質の中にとりこまれていたと考えられている。I-129 や Al-26 など、消滅核種の放射壊変系のいくつかは太陽系初期年代学に有効に応用されている。これらの消滅核種は主に r-過程で生成されると考えられており、一度のプロセスでは生成されず、質量数が 140 より大きい核種 ( $A > 140$ ) と小さい核種 ( $A < 140$ ) で生成過程は異なると考えられている。その中であって、特に Cs-135 は質量的には  $A=140$  の境界付近に位置する数少ない消滅核種であるため、その太陽系初期存在度の正確な見積もりは宇宙化学的に重要な位置づけにある。したがって、他の消滅核種と同様、Cs-135 について太陽系始原物質の同位体化学データをもとにその初期存在度を見積もることには大きな意義がある。

これまで Allende 隕石中の高温凝縮包有物 CAI、炭素質コンドライト隕石の酸溶出成分、コンドライト隕石のアルカリ元素に富む成分の Ba 同位体測定をもとに原始太陽系における Cs-135 の存在度を見積もりが試みられているが(引用文献 ~ )、必ずしも整合性のある結果には至っていない。

### 2. 研究の目的

太陽系始原物質の中でも特に母天体での水質変成を激しく受けている痕跡が認められるタイプ 2 の炭素質コンドライト等を研究対象とし、それらのバリウム同位体組成を精密に測定することにより、消滅核種 Cs-135 の壊変起源の Ba-135 同位体過剰成分を見出し、Cs-135 の太陽系初期存在度を見積もり、太陽系初期年代学への応用を試みる。

### 3. 研究の方法

本研究代表者のこれまでの研究から、太陽系始原惑星物質中の Cs/Ba は軽度の初期分化作用でも有意に分別することが予想される(引用文献、)。本研究では太陽系内始原物質試料として、炭素質コンドライトである Tagish Lake、Cold Bokkeveld、Murray、Nogoya、NWA4428 の 5 試料を対象に、太陽系初期に Cs-135 が濃集したと考えられる特定部位のみを有効に分析することを考え、(1)酸による段階溶出実験によりアルカリ元素に富む特定部位を可能な限り回収する化学処理を伴う高精度同位体分析、(2)レーザープローブ及びビオンプローブによる隕石試料表面の鉍物組成分析及び局所領域分析、これら二つの実験手法を用いる。Ba-135 同位体過剰成分の有無について、バリウム同位体データをもとに考察する。

### 4. 研究成果

消滅核種 Cs-135 の原始太陽系における存在度を定量的に評価することを目的とし、母天体上で激しく水質変成を起こした形跡のある Tagish Lake 隕石について以下の 2 つのアプローチによる Ba 同位体比測定を試みた。

(1)試料を粉砕し、酸による段階溶出によって得られた 5 つのフラクションについて熱イオン質量分析計により精密な同位体測定を行った。まず、得られたフラクションについて Sr 同位体比測定を含む Rb-Sr 壊変系が構築できるか否かを試みたところ、Rb-Sr 壊変系は大きく乱され、年代を示すアイソクロンを形成しないことがわかった。これにより Cs-Ba 壊変系も閉鎖系を保持できていないことが示唆された。各フラクションの Ba 同位体比は、太陽系形成直後に太陽系外からの原子核合成付加成分が不均一に存在していることを示す結果が得られた。

(2)厚片研磨試料を準備し、光学顕微鏡およびレーザーラマン分光により試料内の主構成鉍物を確認した後、同試料内の特定フェーズ(ドロマイト、一部が蛇紋石化したオリピンなど水質変成の影響が大きいと考えられる部分)に焦点をしばり、高感度高分解能イオンマイクロプローブを用いて微小領域の Ba 同位体測定を行った。化学分離を伴わない本研究結果においては Ba 同位体の質量スペクトル上に正体不明の複合化合物の同重体の干渉があり、正確な同位体比データを得るに至らなかった。しかし、Rb/Sr 及び Cs/Ba 局所分析を行った結果、上記(1)では見出せなかった Cs/Ba 比が異様に高いフェーズの存在を発見するに至った。Cs/Ba とともに Rb/Sr にも大きな変動が見られ(Rb/Sr: 0.038 ~ 1.3、Cs/Ba: 0.015 ~ 1.3)、その中には全岩の Cs/Ba 比(0.015)に比べ優位に高い Cs/Ba 比を示す特定部位が確認できた。これらの特定部位についてイオンマイクロプローブによるバリウム同位体局所分析を行っているが、現時点ではまだ顕著な Ba-135 同位体過剰成分は認められていない。

同様に、母天体上で激しく水質変成を起こした形跡のあるタイプ 2 の炭素質コンドライト隕石である Cold Bokkeveld、Murray、Nogoya、NWA 4428 の 4 つの試料について、化学処理を行い、各々の試料から 5 つのフラクションを回収した。その後、試料溶液は二分し、その大部分は所定のイオン交換法により、Sr、Ba を分離回収し、同位体分析を行った。残りの試料溶液は、Rb、Sr、Cs、Ba、希土類元素の定量分析に用いた。

酸溶出フラクションのBa同位体データの多くは、Ba-135、Ba-137 および Ba-138 に連動した正の同位体異常が見られた。一方、酸残渣には Ba-130、Ba-132、Ba-135、Ba-137 および Ba-138 に連動した負の同位体異常が見られた。これらのBa同位体データからは、原始太陽系において太陽系外からの原子核合成成分が不均質に分布していたことが示唆される。本研究で用いた試料の一つである Cold Bokkeveld 隕石を酸処理して得られたフラクション L1~L4、酸処理後の残さ L5、および段階的酸処理を伴わない試料全体 WR についてのバリウム同位体変動パターンの例を図1に示す。各フラクションにより変動パターンは異なるが、特に酸残さフラクション

L5 において大きな同位体変動を示している。L5 フラクションには物理化学的に安定で通常の酸処理では分解しないSiCなどが濃集していると考えられる。太陽系始原物質の中に含まれる先太陽系物質としてのSiCはs-過程の原子核合成成分の担体として知られており(引用文献) 図1に示すように、Ba-135、Ba-137 および Ba-138 に見られる連動した負の同位体異常は、s-過程の原子核合成成分が付加することによって現れる特徴的なパターンである(引用文献 ~ )

Cs-135からの壊変起源による<sup>135</sup>Ba同位体の過剰成分を見積もるために、太陽系外からの原子核合成成分を定量的に補正する新しいモデルの構築について現在検討中である。

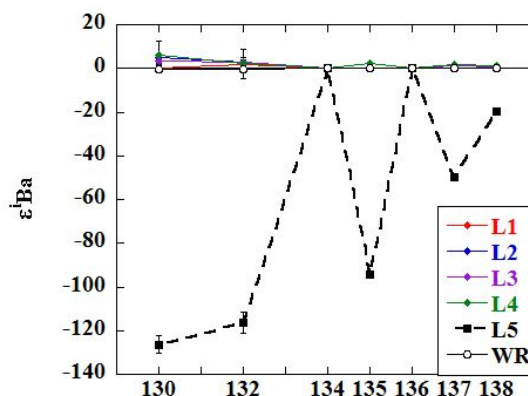


図1 .Cold Bokkeveld 隕石を4段階にわたって酸処理したフラクションから得られたバリウムの同位体変動パターン

#### <引用文献>

McCulloch M., Wasserburg G.J., Barium and neodymium isotopic anomalies in the Allende meteorite, *The Astrophysical Journal*, 220 巻, 1978, L15-L19

Birmingham K.R., Mezger K., Desch S.J., Scherer E.E., Horstmann M., Evidence for extinct <sup>135</sup>Cs from Ba isotopes in Allende CAIs?, *Geochim. Cosmochim. Acta*, 133 巻, 2014, 463-478

Hidaka Hiroshi, Ohta Youhei, Yoneda Shigekazu, Nucleosynthetic component of early solar system inferred from Ba isotopic compositions in carbonaceous chondrites, *Earth Planet. Sci. Lett.*, 214 巻, 2003, 455-466

Hidaka Hiroshi, Ohta Youhei, Yoneda Shigekazu, Diverse nucleosynthetic components in barium isotopes of primitive meteorites: Incomplete mixing of s- and r-process isotopes and extinct <sup>135</sup>Cs in the early solar system, *Geochim. Cosmochim. Acta*, 75 巻, 2011, 3687-3697

Ott U., Begemann F., Discovery of s-process barium in the Murchison meteorite, *The Astrophysical Journal*, 410 巻, 1990, L57-L60

#### 5 . 主な発表論文等

[雑誌論文](計5件)

Saito Takaharu, Hidaka Hiroshi, Lee Seung-Gu, <sup>176</sup>Lu-<sup>176</sup>Hf and <sup>87</sup>Rb-<sup>87</sup>Sr systematics and rare earth element abundances of nine diogenites meteorites: Evidence for their crystallization from partial melts of the Vestan mantle, *The Astrophysical Journal*, 査読有、印刷中

Gu Lixin, Zhang Bin, Hu Sen, Noguchi Takaaki, Hidaka Hiroshi, Lin Yangting, The discovery of silicon oxide nanoparticles in space-weathered of Apollo 15 lunar soil grains, *Icarus*, 査読有、303 巻, 2018, 47 - 52

DOI : 10.1016/j.icarus.2017.12.028

Sakuma Keisuke, Hidaka Hiroshi, Yoneda Shigekazu, Isotopic and Chemical Evidence for Primitive Aqueous Alteration in the Tagish Lake Meteorite, *The Astrophysical Journal*, 査読有、853 巻, 2018, 92 (8pp)

DOI : 10.3847/1538-4357/aaa1e3

Haba Makiko K., Yamaguchi Akira, Kagi Hiroyuki, Nagao Keisuke, Hidaka Hiroshi, Trace element composition and U-Pb age of zircons from Estherville: Constraints on the timing of the metal-silicate mixing event on the mesosiderite parent body, *Geochimica et Cosmochimica Acta*, 査読有、215 巻, 2017, 76 - 91.

DOI: 10.1016/j.gca.2017.07.028

Hidaka Hiroshi, Sakuma Keisuke, Nishiizumi Kunihiro, Yoneda Shigekazu, Isotopic Evidence for Multi-stage Cosmic-ray Exposure Histories of Lunar Meteorites: Long Residence on the Moon and Short Transition to the Earth, *The Astronomical Journal*, 査読有、153 巻, 2017, 274 (7pp)

DOI: 10.3847/1538-3881/aa7139

〔学会発表〕(計 15 件)

Hidaka Hiroshi、Mizutani Yuki、Yoneda Shigekazu、Neutron energy spectrum at the surface of the moon studied from the REE isotopic compositions、Goldschmidt Conference 2018、2018

Hidaka Hiroshi、Yoneda Shigekazu、Isotopic variations of Sm, Dy, Er and Yb induced from the neutron capture reactions on the Moon、The 81st annual meeting of the Meteoritical Society、2018

Hidaka Hiroshi、Yoneda Shigekazu、Lee Seung-Gu、La-Ce chronology of eucrites and diogenites、The 49th Lunar and Planetary Science Conference、2018

Hidaka Hiroshi、Systematic REE isotopic analyses for cosmochemistry、The 9th Symposium on Polar Science、2018

Sakuma Keisuke、Hidaka Hiroshi、Yoneda Shigekazu、Sr and Ba isotopic compositions of Cold Bokkeveld (CM2) meteorite、The 9th Symposium on Polar Science、2018

Saito Takaharu、Hidaka Hiroshi、Lee Seung-Gu、REE abundances and  $^{87}\text{Rb}$ - $^{87}\text{Sr}$  and  $^{176}\text{Lu}$ - $^{176}\text{Hf}$  systematics of diogenites meteorites、The 9th Symposium on Polar Science、2018

Hidaka Hiroshi、REE isotopic study for cosmochemistry: A case study of La and Sm、The 5th International Conference on Analytical Science and Technology、2017

Hidaka Hiroshi、Yoneda Shigekazu、Isotopic evidence for intense activity of young Sun from REE isotopic compositions in CAIs、Goldschmidt Conference 2017、2017

Hidaka Hiroshi、Yoneda Shigekazu、Cosmic-ray exposure histories of eucrites studied from Sm and Gd isotopic compositions、The 8th Symposium on Polar Science、2017

Sakuma Keisuke、Hidaka Hiroshi、Yoneda Shigekazu、Rb-Sr and Cs-Ba systematics of the Tagish Lake meteorite、The 8th Symposium on Polar Science、2017

Hidaka Hiroshi、Yoneda Shigekazu、Systematic isotopic variations of barium, lanthanum and samarium due to cosmic-ray irradiation in lunar surface materials、The 48th Lunar and Planetary Science Conference、2017

Hidaka Hiroshi、Yoneda Shigekazu、Systematic REE isotopic studies of eucrites、The 80th annual meeting of the Meteoritical Society、2016

Hidaka Hiroshi、Higuchi Takuya、Yoneda Shigekazu、Ba isotopic analysis of chondrules from the Sayama meteorite: Application for the development of  $^{135}\text{Cs}$ - $^{135}\text{Ba}$  chronometry in the early solar system、The 7th International SHRIMP Workshop、2016

Hidaka Hiroshi、Yoneda Shigekazu、Rb-Sr and Cs-Ba in eucrites、The 79th annual meeting of the Meteoritical Society、2016

Hidaka Hiroshi、Nishiizumi Kunihiko、Yoneda Shigekazu、Cosmic-ray Exposure Histories of Lunar Meteorites、Goldschmidt Conference 2016、2016

〔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〕

アウトリーチ活動情報

横須賀高校学部学科探求講座「太陽系惑星物質の科学:地球外物質としての隕石の存在価値」、2018年7月9日

香川県高等学校教育研究会「隕石学からとらえる太陽系の進化」2017年11月7日

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。