

令和 2 年 6 月 10 日現在

機関番号：92605

研究種目：基盤研究(C)（一般）

研究期間：2017～2019

課題番号：17K05722

研究課題名（和文）質量分析を用いた海底試料中の超微量r核の分析

研究課題名（英文）Search for ultra-trace r nuclei in deep-sea archives by using mass spectrometry

研究代表者

木下 哲一（Kinoshita, Norikazu）

清水建設株式会社技術研究所・その他部局等・主任研究員

研究者番号：40455324

交付決定額（研究期間全体）：（直接経費） 3,400,000 円

研究成果の概要（和文）：太平洋で採取したマンガンクラスト試料から、現在の太陽系内には存在しない鉄-60（半減期：262万年）とプルトニウム-244（半減期：8000万年）が検出された。鉄-60の分析値は、過去1000万年の間に太陽系は200から300光年離れた場所で起こった超新星爆発の影響を少なくとも2回受けたことが示された。また、超新星爆発内での核反応シミュレーションに基づくと、超新星爆発では鉄-60は生成するが、アクチノイドは生成しない。検出された鉄-60とプルトニウム-244は起源が異なり、プルトニウム-244は中性子星の合体により生成したものが太陽系内に流入し、地球上でも検出された。

研究成果の学術的意義や社会的意義

最近では中性子星合体の研究が理論天文学の研究者を中心に進められている。重力波の成果が中性子星合体に関する唯一の観測データであり、時間スケールや放出エネルギーの規模など多くが謎に包まれている。本研究のプルトニウム-244の成果は、中性子星合体における生成核や宇宙空間における拡散に関する観測データになるため、関連分野への波及効果が大きい。また、化学的手法による目的核種の分析結果と物理的手法による生成核種のシミュレーション結果を用いた天文学の研究である。宇宙・地球化学、原子核物理、天文学が交わる新たな研究分野の創設に貢献した。

研究成果の概要（英文）：Iron-60(half-life:2.62Myr) and plutonium-244(half-life:80Myr) were detected in the manganese crust sample collected from the Pacific Ocean. The signal of the iron-60 showed that the solar system has been exposed by the effect of supernovae in the past 10 Myr, which occurred at least twice within 200-300 light years from the solar system. Besides, iron-60 can be produced by a supernova but actinoids cannot be produced according to the simulation of the nucleosynthesis in a supernova. The origin of iron-60 and plutonium-244 detected in the manganese crust are different one another. The plutonium-244 detected in the manganese crust was produced in a neutron star merger and inflowed into the solar system.

研究分野：天体核物理

キーワード：超新星爆発 中性子星合体 元素合成 鉄-60 プルトニウム-244 加速器質量分析 ネットワーク計算

様式 C-19、F-19-1、Z-19（共通）

1. 研究開始当初の背景

太陽系が誕生した約 46 億年前の原始太陽系には、鉄-60（半減期：262 万年）やプルトニウム-244（半減期：8000 万年）を含め様々な不安定核が存在していたことが隕石の分析により明らかになっている。しかしながら、ウラン-235、238、トリウム-232 の短寿命の系列核種および宇宙線と大気との核反応により生成する核種を除くと、半減期が 1 億年以下の核種は放射壊変により現在では検出できない量まで減衰している。鉄-60 やプルトニウム-244 は、中性子数と陽子数のバランスが取れた安定核よりも中性子が過剰核で、超新星爆発などの天体の爆発的環境下における高温高中性子密度下で中性子を短時間に無数に捕獲することにより生成するとされている。短時間に無数の中性子の捕獲により中性子過剰核が生成する現象は r プロセスと呼ばれ、 r プロセスにより生成する原子核は r 核と呼ばれている。これまでの研究では、三大洋（太平洋、インド洋、大西洋）から採取したマンガンクラスト、マンガノジュール、海底堆積物より鉄-60 の検出を試みた。海底堆積物は、粘土などが時間をかけてゆっくり堆積し、マンガンクラストとマンガノジュールは鉄やマンガンやその他の微量元素をゆっくりと取り込みながら成長する。これらのすべての試料より 150-300 万年前と 680-850 万年前に鉄-60 を検出した。鉄-60 は大気と宇宙線との核反応でも生成せず、超新星爆発以外の生成要因は考えられないことより、その時期に太陽系は超新星爆発の影響にさらされたことが明らかになった〔文献 1-1〕。一方、地球上の試料からプルトニウム-244 の検出がここ 20 年にわたり試みられてきた。地球上には 1950 年代から 1960 年代に行われた大気圏内核実験で生成したプルトニウム-244 も多く存在する。これまで、加速器質量分析を用いて海底堆積物やマンガンクラストからプルトニウム-244 の検出が試みられたが、1 カウントしか検出されなかった。大気圏内核実験による影響を差し引くと、太陽系外起源のプルトニウム-244 は上限値しか得られていない状況である。オーストラリア原子力科学研究所(ANSTO)では、近年、アクチノイド専用の加速器質量分析装置(VEGA)が納入された。これまで 1 カウント検出、上限値のみの議論しかできなかった超新星爆発起源のプルトニウム-244 の研究は、VEGA を用いれば従来の加速器質量分析よりも高感度に測定でき、議論も進歩することが期待される。

また、超新星爆発では鉄-60 やプルトニウム-244 以外にも様々な核種が作られる。プロトン、光子、中性子、アルファとおよそ 3000 個の原子核が絡んだ複雑な核反応と放射壊変により生成する。実験データを取得できる核反応は超新星爆発の中の数万にもなる核反応の極々一部であるため、その核反応の大部分にはモデルによる推定値が使用される。これまで様々な研究グループにより、核反応実験や核反応モデルの改良、コンピュータシミュレーションによる超新星爆発環境下で生成する核種についての研究が行われてきた。モデルによる核反応断面積の予測精度は対象とする原子核の準位密度や光学モデルに強く依存する。多くの実験データにより、測定値を最もよく再現する準位密度や光学モデルが明らかになりつつある。超新星爆発の高温環境下の核反応は Talys や Non-smoker などのコードを用いて計算できる一方で、その核反応率データベースも公開されている。個々の核反応において準位密度や光学モデルによる影響が考察されているが、超新星爆発における無数の核反応が絡み合う環境において、準位密度や光学モデルがどの程度生成核に影響するのかはまだ検討されていない。

2. 研究の目的

マンガンクラストから超新星爆発由来の鉄-60 を探索において、150-300 万年前のみならず 680-850 万年前にも超新星爆発の影響があったことが明らかになった。その一方で 680-850 年前の超新星爆発は 5mm 厚に削ったマンガンクラスト 1 試料のみからの検出であり、時間分解能が粗い問題点がある。他の試料からも 680-850 万年前の超新星爆発イベントが検出されれば信頼性が向上する〔文献 1-1〕。また同一試料から鉄-60 とプルトニウム-244 の 2 核種を検出できれば、同一の超新星爆発により生成したと仮定するとこれら 2 核種の生成量の違いが明らかになる。また異なるイベントで生成したならば、プルトニウム-244 は鉄-60 よりも半減期が長いいため、生成してから宇宙空間での飛行時間も鉄-60 より長い。本研究では、同一のマンガンクラストから鉄-60 とプルトニウム-244 の 2 核種の検出を行い、超新星爆発における生成量の違いや超新星爆発後の宇宙空間での拡散の様子を実験的に得ることを目的とした。また r プロセスでは質量数 180 から 200 程度の核種が多く作られることが報告されている。質量数 180 から 200 は原子番号がおよそ 72 から 80 の元素に相当する。安定元素であるため、地球上にすでに微量存在しているものと差がみられるか定かではないが、 r プロセスでの生成量の多いこれらの白金族の流入量の変化の測定も試みる。

一方で、検出された核種の超新星爆発中での生成に関して理論的な解釈を深めるために、天体環境での核反応率データベース(Bruslib と Reaclib) 異なる光学モデルや準位密度を用いて得られる核反応断面積を用いて、超新星爆発の中で生成する核種のシミュレーションを行い、鉄-60 やプルトニウム-244 がどの程度生成し、それに対してマンガンクラストの中に観測されたこれらの核種の量や比を用いて、超新星爆発により生成してから試料に蓄積するまでの履歴を解明することを目的とした。

3. 研究の方法

○マンガンクラスト試料からの超新星爆発由来の核種の探索

1995年にウェーク島とジョンストン島の間の水深1410mの海山上で採取された表面積がおよそ 10×10 cm マンガンクラスト試料(写真1)の一部(およそ 1×1 cm)を約1mm厚に削り、各層を鉄-60とハフニウム、タンタル、タングステン、レニウム、イリジウム、白金、金の分析、および、ベリリウム-10を用いた年代測定に使用した。それぞれの試料を酸に溶解し、その1/1000の部分を用いてAgilent 8800 ICP-MSを用いて、鉄、ハフニウム、タンタル、タングステン、レニウム、イリジウム、白金、金の元素分析を行った。残りの部分に既知量のベリリウムを添加し、イオン交換法を用いて鉄とベリリウムを単離・精製した。鉄-60はオーストラリア国立大学にて、ベリリウム-10は東京大学MALTにて、加速器質量分析の手法により定量した。ベリリウム-10深度分布より得られた各年代における目的核種の蓄積量を得た。

残りのマンガンクラストを0-3mm、3-10mm、10-20mmの3つの層にスライスした。0-3mmの層は核実験由来の影響の測定を目的とした。3-10mmと10-20mmの層はベリリウム-10による年代測定よりそれぞれ110-450万年前と450-870万年前の年代であることが明らかになっており、また各層には鉄-60の流入イベントが観察されている。3-10mmと10-20mmの層に検出された鉄-60とプルトニウム-244の比較を行うことを目的とした。3-10mmと10-20mmの層をそれぞれ酸に溶解し、収率補正のためプルトニウム-242でスパイクしたのち、イオン交換によりプルトニウムを精製し、オーストラリア原子力科学研究所の静電加速器VEGAを用いた加速器質量分析の手法によりプルトニウム-239, 240, 241, 242, 244を定量した。



写真1 用いたマンガンクラスト試料

○超新星爆発の中での核種生成数値計算

超新星爆発の高温環境下での核反応は、中性子、プロトン、アルファのエネルギースペクトルには温度依存のマクスウェル分布、そして、光子のエネルギー分布にはプランクの黒体放射が用いられる。それぞれのスペクトルと核反応断面積の積の積分値が温度依存の核反応率になる。Hauser-FeshbachコードのTALYS1.6を用いて準位密度と光学模型に最も実験値を再現するモデルを用い、反応率を計算した。またTALYS1.6およびTALYS1.8の標準インプットを用いて核反応率を計算した。TALYS1.6の標準インプットは、アルファ粒子の光学模型に古いモデルを使用しているため、アルファの放出反応が1桁以上大きく、古い文献値を検討できるデータになる。さらに、天体環境の核反応率データベースとして公開されているReaLibとBrusLibも用いて、合計5種類の核反応率データベースを用いて超新星爆発の中での核反応数値計算を行った。

核反応には (γ, n) 、 (γ, p) 、 (γ, α) 、 (α, n) 、 (α, p) 、 (α, γ) 、 (p, n) 、 (p, α) 、 (p, γ) 、 (n, p) 、 (n, α) 、 (n, γ) の合計12種類を考慮し、リチウムからキュリウムまでの合計3050核種を対象とした。Nomoto et al(1984), Astrophys. J. 286, 644-658により報告されているW7モデルによるIa型超新星爆発の中での温度と密度変化の中での各核種存在量の時間変化をオイラー法を用いて計算した。計算にあたり、C++でコーディングした。

超新星爆発の中での生成核数値計算において超新星爆発が起こる前の初期状態には、原子番号3のリチウムから原子番号69のガリウムまでは太陽系内の組成、原子番号69のガリウムから原子番号83のビスマスまではsプロセスにおいてAs/Pb比がおおよそ太陽系内組成となる理論値を用いた。超新星爆発における最高到達温度 $T_{\max}$ が3.6 GK ($1 \text{ GK} = 1 \times 10^9 \text{ K}$)、3.3 GK、3.1 GK、2.9 GK、2.7 GK、2.4 GK、2.0 GKになる層において、超新星爆発開始から1年後までの各核種の存在量の時間変化を計算した。最高到達温度に達した後は時間と共に温度は降下し1.5 GKまで核反応を考慮した。1.5 GK未満の温度では核反応を無視し、放射壊変のみを考慮した。

4. 研究成果

○マンガクラスト試料からの超新星爆発由来の核種の探索

・マンガクラストの成長速度

マンガクラスト試料中のベリリウム-10 深度分布を指数関数でフィッティングして得られた傾きをベリリウム-10 の半減期 151 万年で割ることにより、2.39 mm/100 万年の成長速度が得られた。

・ハフニウム、タンタル、タングステン、レニウム、イリジウム、白金、金の分析

ICP-MS を用いて、ハフニウム、タンタル、タングステン、レニウム、イリジウム、白金、金の分析を試みたが、どの年代層にも数 cps 程度の極微量が検出された。マンガクラストにもこれらの元素は ppt から ppm のオーダーで存在する。各年代における有意な変化は見られなかった。

・鉄-60 の分析

図 1 にマンガクラストへの鉄-60 の蓄積率を示す。また下記に示すプルトニウム-244 の取り込み率も示した。0-420 万年前と 550-710 万年前に鉄-60 濃度の極大が検出された。これまでの研究では 150-300 万年前の 680-850 万年前のイベントを報告したが、それぞれにおける先行データと本研究による原子数比はおおよそ一致した。しかしながら、これまでの先行研究と鉄-60 の流入のあった年代にばらつきがみられる。これは、本研究で用いた試料の表面にはひび割れが多く、鉄-60 は拡散しやすかったものと思われる。一方で、550-710 万年前のイベントの測定値はバックグラウンドをわずかに上回る程度であったが、先行研究と同様な時期のイベントを改めて確認することができた。

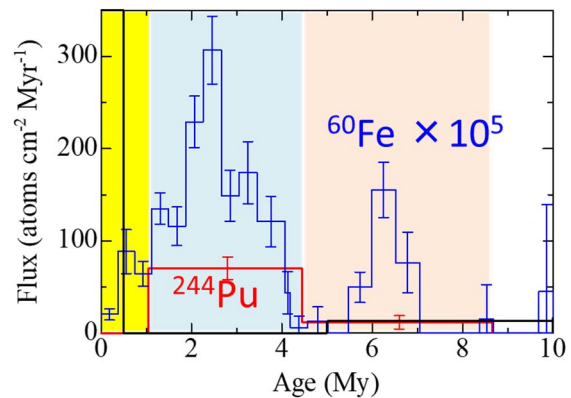


図 1 鉄-60 とプルトニウム-244 の蓄積率

・プルトニウム-244 の分析

図 2 に各年代における $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$ 、 $^{241}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$ 、 $^{244}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$ 原子数比を示した。 $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$ と $^{241}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$ は各層において誤差を含めると原子数比に顕著な違いは見られていない。環境中の大気圏内核実験由来のプルトニウム同位体に関する様々な研究で報告されている原子数比と誤差内で一致した。そのため、マンガクラストの各層に検出されプルトニウム-239、240、241 は過去に行われた大気圏内核実験起源である。

一方、プルトニウム-244 は 0-150 万年前の層では 1529 カウント、150-450 万年前の層では 366 カウント 450-880 万年前の層では 12 カウント検出された。これまでの研究では 1 カウントのみの検出であったが 10 倍以上の統計を得ることができた。ANSTO の VEGA を用いたプルトニウムの加速器質量分析は、これまでよりもおおよそ 100 倍程度の感度で測定ができた。 $^{244}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$ 原子数比は各年代層で固有の原子数比が測定された。0-3mm の深さである 0-140 万年前の層は大気圏内核実験由来の $^{244}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$ 原子数比と一致した。核実験由来のプルトニウム-239、240、241 が 140 万年前よりも古い層にも検出されているので、140 万年前よりも古い層にも核実験由来のプルトニウム-244 の影響が見られるはずであるが、誤差を含めても $^{244}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$ 原子数比に優位な違いが測定された。

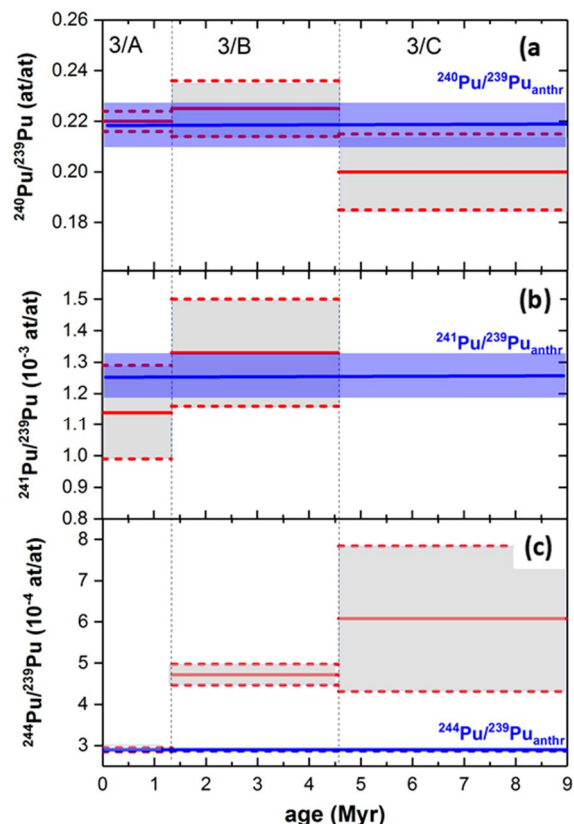


図 2 検出されたプルトニウム同位体比

大気圏内核実験起源の $^{244}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$ 原子数比を差し引いて計算したマンガングラスト試料へのプルトニウム-244 の取り込み率を鉄-60 と共に図 1 に示した。これまで地球上の試料から超新星爆発起源のプルトニウム-244 の検出が試みられてきたが、本研究の成果が大気圏内核実験起源の影響の排除に成功した初めての成果となった。超新星爆発における鉄-60 の生成量と超新星爆発の残骸の拡散速度より、2 回の鉄-60 の流入イベントの原因となった超新星爆発の時期と位置を見積もるとおよそ 310 万年前に太陽系から 330 光年離れた位置とおよそ 700 万年前に太陽系から 180 光年離れた位置での超新星爆発が鉄-60 を作った超新星爆発の起源と見積もられた。プルトニウム-244 の起源については以下の節に示す。

○超新星爆発の中での核種生成数値計算

図 3 に本研究におけるシミュレーションにおいて鉄-60 の最も多い生成が確認された最高到達温度が 2.4 GK になる層における核種の生成量の分布を示した。温度が高いと (γ, α) 反応が支配的になり、質量数大きな核は生成しにくくなる傾向がみられた。また、最高到達温度が 2.0 から 3.6 GK になるいかなる層においても、アクチノイドの生成は見られなかった。数値計算上すべての核種の生成量はゼロにはならないが、プルトニウム-244 の生成量は超新星爆発前の鉄-56 の 10^{-100} 以下であった。これは、超新星爆発では温度が高すぎ、且つ、中性子密度が低すぎるためプルトニウムは生成しないことが明らかになった。5 種類の核反応データベースを用いて数値計算したが、全てのデータベースを用いたシミュレーションでもプルトニウムの生成は見られなかった。

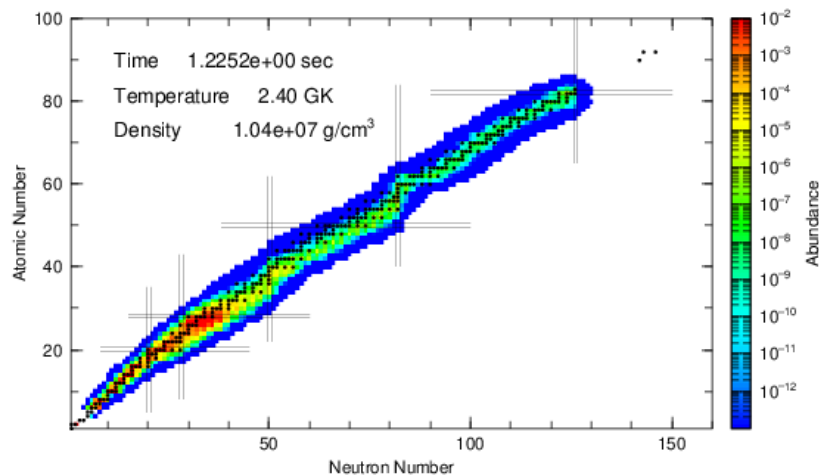


図 3 最高到達温度 2.4GK の層にて生成した核種の相対値

一方で、最高到達温度が 2.0 から 2.7 GK に達する層にて鉄-60 の生成は確認された。マンガングラストに検出された鉄-60 は超新星爆発起源であるが、プルトニウム-244 は超新星爆発起源でないことが数値計算により明らかになった。本研究では温度の減衰時間の早い Ia 型超新星を想定したシミュレーションを実施したが、Ia 型超新星爆発は最高到達温度が 2.4 GK になる層は天体の外縁付近であるため、2.4 GK 以下の温度に曝される物質量は少ない。II 型超新星爆発では 2.4 GK 以下の温度にさらされる物質量が多く、鉄-60 は II 型超新星爆発が主な生成源と考えられる。また、中性子星やブラックホールが合体する際に、プルトニウム-244 の生成に必要な低温・高中性子密度環境になると考えられている。中性子星やブラックホールの合体の頻度は超新星爆発よりも 2、3 桁少ないと報告されている。マンガングラスト中のプルトニウム-244 は少ない頻度で起こる中性子星やブラックホールの合体で作られた核種が飛来して蓄積したものと考えられる。本研究におけるプルトニウム-244 の蓄積率は中性子星やブラックホールの合体における生成量に結び付く観測データになる。

参考文献

[1-1] Wallner, A., Feige, J., Kinoshita, N., et al. Nature **532**, 69-72 (2016).

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計0件

〔学会発表〕 計8件（うち招待講演 3件 / うち国際学会 1件）

1. 発表者名 木下 哲一
2. 発表標題 海底試料からの超新星爆発起源のr核の探索
3. 学会等名 核データと重元素合成を中心とする宇宙核物理研究会（招待講演）
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 木下 哲一
2. 発表標題 核データから太陽系の進化と元素の誕生へ
3. 学会等名 核データと重元素合成を中心とする宇宙核物理研究会（招待講演）
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 木下 哲一、A. Wallner、M.B. Froehlich、M. Hotchkis、M. Paul、S. Pavetich、S.G. Tims、L.K. Fifield、D. Schumann、本多 真紀、松崎 浩之、山形 武靖
2. 発表標題 太陽系近傍の超新星爆発活動とr過程
3. 学会等名 AMSシンポジウム
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 木下 哲一
2. 発表標題 Hauser-Feshbach統計モデルを用いたIa型超新星爆発の中でのp核生成理論計算
3. 学会等名 2018年度放射化学会年会
4. 発表年 2018年

1．発表者名 木下哲一、A. Wallner、M.B. Froehlich、M. Hotchkis、J. Feige、M. Paul、S. Pavetich、S.G. Tims、L.K. Fifield、D. Schumann、本多真紀、松崎浩之、山形武靖
2．発表標題 マンガクラスト中のr核 ⁶⁰ Feと ²⁴⁴ Pu
3．学会等名 2017年度日本地球化学会年会
4．発表年 2017年

1．発表者名 木下哲一、A. Wallner、M.B. Froehlich、M. Hotchkis、J. Feige、M. Paul、S. Pavetich、S.G. Tims、L.K. Fifield、D. Schumann、本多真紀、松崎浩之、山形武靖
2．発表標題 マンガクラスト中の太陽系外起源の ⁶⁰ Feと ²⁴⁴ Pu
3．学会等名 2017日本放射化学会年会
4．発表年 2017年

1．発表者名 N. Kinoshita, A. Wallner, M.B. Froehlich, J. Feige, M. Hotchkis, M. Paul, L.K. Fifield, R. Golser, M. Honda, H. Matsuzaki, S. Pavetich, D. Schumann, S.G. Tims, P. Steier, T. Yamagata, S.R. Winkler
2．発表標題 Search for Pu-244 in manganese crusts
3．学会等名 Actinides2017 (国際学会)
4．発表年 2017年

1．発表者名 木下哲一
2．発表標題 超微量分析より見えた超新星爆発からの飛来物
3．学会等名 第11回学生研究発表会～原子力・放射線分野～（招待講演）
4．発表年 2017年

〔図書〕 計0件

〔産業財産権〕

〔その他〕

-

6. 研究組織

	氏名 (ローマ字氏名) (研究者番号)	所属研究機関・部局・職 (機関番号)	備考
研究協力者	Wallner Anton (Wallner Anton)	Australian National University	
研究協力者	Michaela Froehlich (Michaela Froehlich)	Australian National University	
研究協力者	Stefan Pavetich (Stefan Pavetich)	Australian National University	
研究協力者	Paul Michael (Paul Michael)	The Hebrew University of Jerusalem	
研究協力者	Hotchkis Michael (Hotchkis Michael)	ANSTO	