

平成 21年 6月 7日現在

研究種目： 基盤研究(C)

研究期間： 2007~2008

課題番号： 19540512

研究課題名(和文) I-Xe年代測定に基づいた太陽系初期の惑星物質進化過程の解明

研究課題名(英文) Evolutional history of planetary materials at the early stage of solar system based on I-Xe age determination

研究代表者

長尾 敬介 (NAGAO KEISUKE)

東京大学・大学院理学系研究科・教授

研究者番号： 40131619

研究成果の概要：我々が立ち上げた国内唯一の I-Xe 年代測定装置を用いて、太陽系初期の惑星形成史を解明するため、非平衡コンドライトや太陽風を含む角礫岩質コンドライトの年代を調べた。この結果、多くのコンドライトが炭素質コンドライトより 2000 - 5000 万年後にリセットされたことを示しており、この間に母天体で水質変質などの変成作用が継続したことが分かって来た。また、中性子照射されたこれら試料に含まれる微量ハロゲンの定量も可能になってきた。

交付額

(金額単位：円)

	直接経費	間接経費	合計
2007年度	2,200,000	660,000	2,860,000
2008年度	1,200,000	360,000	1,560,000
年度			
年度			
年度			
総計	3,400,000	1,020,000	4,420,000

研究分野：同位体惑星科学

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：隕石、希ガス同位体、質量分析、中性子照射、I-Xe年代、水質変質、ハロゲン

1. 研究開始当初の背景

始原的隕石には、その構成鉱物や組織に様々な変質(水質変質、酸化、変成など)の痕跡が存在する。このような変質が、原始太陽系星雲中で析出した固体粒子やその集合体とガスとの反応によるものか、固体粒子が集合してできた微小天体中で起こったかを明らかにすることは、微惑星形成過程を解明する上で避けて通れない研究課題である。現実には、珪酸塩が含水鉱物に完全に変質するような水質変成を全体的に強く受けたものから、その影響が乏しいものまで種々の隕石が存在しており、その全体または組織や鉱物

ごとに、そのような変質が星雲ガス中で起こったものか微惑星内で起こったかが議論されている段階である。星雲中での変質は、先にガスから凝縮した鉱物種と周囲のガスの化学組成、温度、圧力条件にコントロールされるのに対して、微惑星中では天体内部に蓄積される熱によって生成される液体の水や、水に溶存する元素やpH、温度などが強く影響すると考えられる。主として隕石の鉱物学的観察に基づいたこのような研究を進展させるためには、変質が起こった時間やその継続期間を明らかにする年代測定法を導入することが有効であり、この場合は特に I-Xe

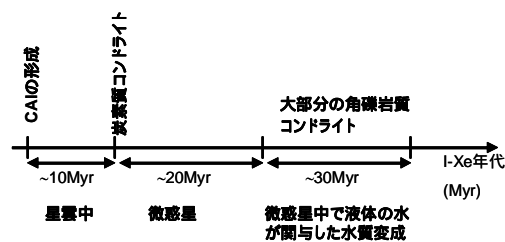
年代測定法が有用である。しかし炭素質隕石などについて報告された数少ない I-Xe 年代は、C A I 形成から高々1000 万年後を示しており、星雲中か微惑星中かを明確に区別するには至っていない。

我々は、いくつかのハロゲン濃度の高い非平衡コンドライトや太陽風を多く含む角礫岩質コンドライトなどが、炭素質コンドライトの年代より 2000-5000 万年若い(炭素質コンドライトより後にリセットされた)年代を示すことを見いだした。星雲の存在期間として予想される 500-1000 万年より遙かに後の年代は、I-Xe 系のリセットが微惑星で液体の水が関与して起こったことを示唆する。

2. 研究の目的

(1) 日本で初めて実用化した I-Xe 年代測定を、炭素質コンドライト、オーディナリー・コンドライトおよび角礫岩化した隕石などに対して行い、異なるいくつかのステージで起こったと予想される水質変質の年代を確定して、隕石母天体で起こった変質過程に時間軸を導入して議論できるように

する。これまでに得られている予備的な結果と、初期太陽系形成史のモデルを考慮すると、以下のような結果が予想される。星雲中でのガスとの反応による変質の後、微惑星形成後の低温での反応が起こったことが炭素質隕石に記録される。更に大きな天体に成長したものは、内部に放射性同位体の壊変熱が蓄積される。この頃に、隕石物質の爆撃を受けて角礫岩質コンドライトが形成されるとともに、内部からもたらされた液体の水により破碎された地殻物質が水質変質を被り、I-Xe 年代の時計がリセットされる。



(2) この研究では、中性子照射した放射能を持つ物質から希ガスを加熱抽出する必要がある。この操作を安全かつ能率的に行える改良型希ガス抽出炉を製作して実用化する。

(3) 固体試料を中性子照射して希ガス同位体を測定することにより、I-Xe 年代ばかりでなく、Ar-Ar 年代や中性子捕獲により希ガス同位体に変換される元素(同位体)を高感度で測定することが可能である。この方法を隕石や地球物質に適用して、通常では測定できない微量ハロゲンや ^3H などの定量を試みる。

3. 研究の方法

(1) 本研究は I-Xe 年代測定が主要な柱になっている。この年代測定では、隕石を原子炉の熱中性子源を使って照射して、安定同位体 ^{127}I を (n, β) 反応を経由して ^{128}Xe に変換し、消滅核種 ^{129}I の壊変生成核種 ^{129}Xe との相関を調べることにより、I-Xe 時計がリセットされた時の $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ 比を求める。同様にして測定した I-Xe 年代の標準とされる隕石の $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ 比と比較することにより、標準隕石に対する相対年代を求める。この中性子照射の段階で隕石試料は放射化されるため、放射性物質を扱う管理区域内での分析作業と、熱中性子照射を行う施設の利用が可能であることが必要である。管理区域での隕石の Xe を含む希ガス同位体分析は、東京大学アイソトープ総合センターに我々が設置・調整した質量分析装置を用いて行うことができる。また、中性子照射は東北大学金属材料研究所附属量子エネルギー材料科学国際研究センターの共同利用として、Ar-Ar 年代および I-Xe 年代測定を目的とした中性子照射を行っている実績がある。

(2) 分析試料加熱炉の改装: 我々が東京大学アイソトープ総合センターに I-Xe および Ar-Ar 年代測定を目的に、初期に開発した放射性物質の希ガス抽出を行う加熱炉は、加熱温度をコンピュータコントロールで行えることや、小型で入力電力に対する昇温の効率が良いなどの長所があった。しかし、放射性物質を扱うことを考えて、試料と接触する可能性がある部品を簡単に取り外して廃棄できることを重視したため、加熱時に試料から蒸発する物質が真空炉内に拡散することに対する対処が十分でないことが、3 年間に及ぶ多数の Ar-Ar および I-Xe 年代測定を通じて明らかになってきた。本研究では多数測定する試料に対応するため、改良版の炉を設計し直して、製作することを計画した。この設計では、I-Xe 年代測定に必要な段階加熱(加熱温度を段階的に上昇させて、各温度段階で放出される希ガスを測定する方法)が可能で、同時に真空に入れた多数の試料を容易に真空外から選択して炉に移動出来るようにすることも目標とした。

(3) 本研究で行う I-Xe 年代測定法はハロゲンの一つである I (ヨウ素) を中性子を用いて希ガスの同位体の Xe に変換して測定する。一方、Ar-Ar 法では K を Ar に変換して測定する。いずれも、通常の分析法では測定困難な同位体を、超高感度希ガス分析法により測定するものである。この手法は中性子を用いて希ガスに変換出来る元素(同位体)の超微量分析に応用可能である。我々は中性子照射した隕石や地球の岩石・鉱物の全希ガスを分析できるので、同一試料から Ar-Ar、I-Xe 年代のみならず、これら微量元素

の情報も得ている。本研究では、積極的にこのようなデータを活用して、微量のハロゲンなどの定量分析も可能とする。

4. 研究成果

本研究期間中に中性子照射試料を扱う RI センターの耐震補強工事が行われたため、計画がややずれ込んだが、これを機に質量分析装置のセッティングをやり直し、新しい改良型希ガス抽出炉の導入や、ガス生成ラインの整備を行うことができた。この結果、分析の操作性も大幅に向上し、従来よりもバックグラウンドを一桁下げて、更に精度の高い分析が可能となった。

I-Xe 年代測定を目的とした試料についても、Xe の分析のみならず、段階加熱を併用した Ar, Kr, Xe 同位体分析を行い、Ar-Ar 年代やハロゲン濃度など多くの情報を得ることが可能となった。最近 I-Xe 年代標準として使われるようになった Sallowater 隕石や、太陽風希ガスを持つ角礫岩質隕石、起源の不明な高濃度 Ar を含有する隕石などについて、Ar-Ar 年代をも含めた重要なデータが得られている。さらに、中性子照射による核変換を応用した、希ガス・ハロゲン及びその他元素の多元素同時分析の手法を確立するための分析手法の開発を行い、Allende 隕石ではこれまでの報告値と矛盾しない K, Ca, Cl 濃度と Ar-Ar 及び I-Xe 年代を得た。段階加熱法を組み合わせることにより、I のほとんどが地表におけるコンタミネーション由来であることが示唆される。また、これらの研究を支える希ガス高感度分析法の開発も現有の別の質量分析装置を用いて進めてきた。

(1) 新型の希ガス抽出炉は、タンタル製加熱管と希ガス精製ラインとが直結するようにし、内部に入れたモリブデン製ルツボ内で隕石や鉱物試料を加熱する方式である。加熱は、タンタル製管で仕切られた真空内にセットしたタングステン製ヒーターに流す電流量をコントロールすることにより、ヒーターの輻射熱で外部からおこなう。従来型に比べて、希ガス抽出部の容積が大幅に減少したため、真空度とブランクレベル(希ガスのバックグラウンド)は一桁以上向上した。更に、抽出精製ラインの容積減少の結果、質量分析装置全体としての感度向上が達成された。この希ガス抽出炉は小型で比較的安価に製作できること、多くの研究室で使用している(我々も4台使用)従来型に比べて消費電力がほぼ3分の1となり経済的であること、超高真空状態を維持しながら2000程度まで加熱できることなど、多くの長所を有している。

(2) Ar-Ar 年代測定においては、中性子照射により生成された短半減期核種の³⁷Arが存在する間(<1年)に測定する必要がある。

一方、I-Xe 法にはこのような制限が無いことと、ハロゲンの中性子捕獲断面積が大きい熱中性子を照射することにより他の核種の放射化が起こるため、安全な分析作業のために比較的長い冷却期間を置くことが望ましい。このため我々は、本研究の継続を見込んで多くの隕石の中性子照射を本研究期間に行い、現在冷却中である。

上記のように改良した質量分析装置を用いて、一部の隕石試料の I-Xe 年代測定に加えて Ar-Ar 年代やハロゲン起源の希ガス同位体分析を行ったが、得られたデータが膨大であるため、現在もまだ解析中であるものが多い。従来から用いられてきた I-Xe 年代標準試料である Bjurböle 隕石と、最近用いられ始めた Sallowater 隕石との年代値の比較をおこない、ほぼ一致する年代が得られることを確認したが、微小な年代値のずれの有無を検討中である。Bjurböle 隕石と Allende 隕石はほぼ同様な形成年代を示し、両者ともに45億6600万年頃に形成されたことを示している。これら古い形成年代を示す隕石に比べて、Zag 隕石、Yamato 74191 隕石や Cook 011 隕石などは、明らかに若い形成年代を示す。例えば Yamato 74191 隕石は約2500万年、Zag 隕石は1800から3500万年、Cook 011 は3000万年などである。特に角礫岩である Zag 隕石は、異なる岩相で異なる年代を示しており、複雑な形成過程を反映していると考えられるため今後の詳細な研究が必要である。これらの結果は、母天体上で起こった角礫化やハロゲン濃集を伴う水質変質などが、始源的隕石が形成された後の数千万年間に集中して起こったことを示唆しており、太陽系初期史の重要な知見を与えるものである。

(3) 上述したように、中性子照射と希ガス同位体分析を組み合わせることにより、希ガスの超高感度分析の特徴を生かして極微量のハロゲンや K, Ca, Ba, U などの定量分析も、Ar-Ar 年代や I-Xe 年代測定の副産物として可能である。我々は、Xe のみならず他の希ガス元素の同位体も測定することにより、本研究目的である I-Xe 年代に加えて、これら微量元素の分析も実用化しつつある。ハロゲンなどからの希ガス同位体生成率のモニターとしては Ar-Ar 年代の国際標準試料である Hb3gr 角閃石を用いて、原子炉内の照射域における熱中性子束および速中性子束を求めている。また I-Xe 年代標準試料である Sallowater 隕石(消滅核種¹²⁹I 起源の¹²⁹Xe と¹²⁷I の比が既知)を、Br や I, U などからの中性子照射による希ガス同位体への変換率の見積りに用いている。

代表的な始源的隕石の一つである Allende 隕石の分析結果は、K, Ca, Cl, Br 濃度がこれまで報告されている値と矛盾しないのに対して、幅広い値(200-2000ppb)が報告されている I 濃度は、そのほとんどが地球への落下後の汚染であり、実際に隕石に含まれる I の濃度は 10ppb 程

度以下であることが示されている。 ^{235}U の中性子誘導核分裂により生成される Xe 同位体分析からも、地球での汚染に起因する成分が卓越していることが示されている。

以上の例でわかるように、この手法の特に有用な点として、段階加熱法を併用することにより、試料との結合が弱い汚染成分と、試料内部に本来含有している成分とを分離して検出することが出来ることである。中性子照射前に汚染成分を完全に除去することが要求される通常の中性子放射化分析に対して有利な点である。さらに、中性子捕獲断面積の大きいハロゲンの分析においては、通常の方法による検出限界の数桁も低い濃度の分析も期待できる。

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 1 件)

(1) Nagao K., Park J. and Choi H.G., Noble gases of the Yamato 000027 and Yamato 000097 lherzolitic shergottites from Mars. *Polar Science* **2**, 2008, 195-214 (査読あり).

[学会発表] (計 6 件)

(1) 角野浩史、馬上謙一、長尾敬介、希ガス質量分析を用いた極微量ハロゲンの検出、第 57 回質量分析総合討論会、2009 年 5 月 15 日、大阪市 (大阪国際交流センター)、要旨集 492-493.

(2) Nagao K., Park J., Okazaki R., Imae N. and Kojima H., Noble gas distributions in the Yamato 000593 nakhlite deciphered by laser ablation analysis and mineral separation. 40th Lunar and Planetary Science Conference, March 24, 2009, Houston, USA.

(3) Nagao K. and Park J., Noble gases in bulk and mineral separates from the MIL 03346 nakhlite. 39th Lunar and Planetary Science Conference, March 11, 2008, Houston, USA.

(4) Nishiizumi K., Caffee M.W., Kohno M., Misawa K., Nagao K. and Tomiyama T., Exposure histories of micrometeorites found in a 434 kyr old layer in the Dome Fuji ice core, Antarctica. 39th Lunar and Planetary Science Conference, March 14, 2008, Houston, USA.

(5) Nagao K. and Park J., Noble gases and cosmic-ray exposure ages of two Martian shergottites, RBT 04262 and LAR 06319. 71st Meeting of the Meteoritical Society, July 31, 2008, Matsue, Japan.

(6) Nagao K., Park J. and Choi H., Noble gases of the Yamato 000027 and Yamato 000097 lherzolitic shergottites. 31st Symposium on Antarctic Meteorites, June 6, 2007, NIPR, Tokyo, Japan.

6 . 研究組織

(1) 研究代表者

長尾 敬介 (NAGAO KEISUKE)
東京大学・大学院理学系研究科・教授 0
研究者番号 : 40131619

(2) 研究分担者

(3) 連携研究者