

平成22年 9月30日現在

研究種目：基盤研究（C）
 研究期間：2007～2009
 課題番号：19540516
 研究課題名（和文） 消滅核種および年代学的研究による太陽系初期におけるアルカリ金属元素の挙動の解明
 研究課題名（英文） Research on behaviors of the alkaline metal elements in the early solar system by the extinct nuclides chronology
 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・研究主幹
 研究者番号：60210788

研究成果の概要（和文）：太陽系初期に形成された炭素質コンドライト中のバリウム同位体比を分析し、アルカリ金属元素であるセシウムの消滅核種（半減期が短いため現在は存在しない核種）セシウム-135の存在を確認した。特に水質変成を強く受けた炭素質コンドライトである狭山隕石のコンドルールから大きな同位体異常を発見した。また、得られたデータは年代値ではなく、太陽系初期に起こった水質変成による混合を示している可能性が高い。

研究成果の概要（英文）：The barium isotopic compositions of carbonaceous chondrites, which formed in the early solar system, were analyzed and the evidence of the extinct nuclide Cs-135, a nuclide which had decayed out due to its short half-life, were found. Cesium is one of the alkaline metal elements. Especially, those from chondrules of the Sayama meteorite, one of the heavily altered carbonaceous chondrites by aqueous alteration, have large isotopic anomaly. The obtained data may not account for the time of formation but may be explained by mixing at the aqueous alteration in the early solar system.

交付決定額

(金額単位：円)

	直接経費	間接経費	合計
2007年度	1,800,000	540,000	2,340,000
2008年度	1,000,000	300,000	1,300,000
2009年度	600,000	180,000	780,000
年度			
年度			
総計	3,400,000	1,020,000	4,420,000

研究分野：宇宙地球化学・隕石学

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：消滅核種、セシウム、バリウム、同位体、隕石、狭山隕石、コンドルール、セシウム-135

1. 研究開始当初の背景

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、全体が熔融する

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。アルカリ金属元素は典型元素で存在量も多いが、その特異な性質のために、太陽系初期の多様な分別過程において非常に大きな移動・分配を起こして

おり、その痕跡は隕石中の各種構成成分に見つけることができる。また、地球-月系形成等の大規模な現象においても大きな分別を起こしており、その存在度や同位体組成は惑星物質形成過程の推定に大きな制約を与えている（例えば、A.N. Halliday 2004）。

アルカリ金属元素は(1)原始太陽系における凝縮温度が低く蒸発しやすい、(2)陽イオンになり水に溶けやすい、(3)年代学で重要となる放射性核種を多く含む（K-40, Rb-87, Cs-135 など）といった特徴がある。即ち、移動しやすく、その年代を推定するための情報を得やすい元素群である。

上述の3点の特徴に関連して次のような課題が存在する：

(1) 最も始原始的な炭素質コンドライト中に見られる白色包有物は、原始太陽系星雲から最初に凝縮した固体であると考えられており、凝縮温度の高いCaやAlなどの元素で構成されている（例えば Yoneda & Grossman 1995）。ところが白色包有物の中には本来含まれないはずのNaを多量に含んでいるものが知られており、これは包有物形成後の比較的低温の環境における変成のためと考えられる。この環境が太陽系星雲内であるのか、隕石母天体上であるのかは現在も議論が続いている。

(2) 形成直後の隕石母天体では、鉱物の変成にみられるように、液体の水が存在していた証拠がある。水の存在は有機化合物とともに生命の誕生に深くかかわっているが、その重要性にもかかわらず水の存在時期に関する情報は非常に限られている。しかし最近、相次いで2つの隕石から太古の塩水が蒸発してできた岩塩結晶が発見された。そのうちの1つである Monahans 隕石の岩塩には、結晶中の気泡の中に液体の水が閉じ込められていた(Zolensky et al. 1999)。

(3) K-40 と Rb-87 はそれぞれ K-Ar 法と Rb-Sr 法という絶対年代測定法の親核種である。また、Cs-135 は半減期 230 万年の核種で、太陽系形成時には存在していたが、半減期が短いため 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である。消滅核種はしかし、隕石中等で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、我々は普通コンドライトである Beardsley 隕石から Cs-135 による Ba-135 の明確な同位体異常を世界で初めて発見した(Hidaka et al. 2001)。

特に上記(3)の Cs-135 の検出に関して平成

15年度より17年度まで科学研究費補助金を受け、年代学への応用に取り組んできた。Monahans 隕石と同じく岩塩結晶の発見された Zag 隕石からも Cs-135 の痕跡を検出し、年代推定を行った。また、種々の炭素質コンドライトの Ba 同位体比を分析し、Cs-135 だけでなく、原子核合成起源の成分が含まれることを示した (Hidaka et al. 2003, Hidaka & Yoneda 2005, 2006)。

2. 研究の目的

アルカリ金属元素は典型元素で存在量も多いが、その特異な性質のために、太陽系初期の多様な分別過程において非常に大きな移動・分配を起こしており、その痕跡は隕石中の各種構成成分に見つけることができる。本研究は、隕石中のアルカリ金属元素の存在度とそれに関連する元素の同位体比を精密測定し、これらの元素がいつどのような過程で移動したかを解明することを目的とする。

本研究では前述のような状況を踏まえて、隕石包有物の高温変成や隕石母天体上の水質変成を、アルカリ金属元素とその放射性核種を利用して、明らかにして行こうとするものである。特に水質変成に関する年代学的研究は、炭酸塩鉱物の Rb-Sr 年代で太陽系形成後約 1 億年以内 (Macdougall et al. 1984) という値と、炭酸塩やカンラン石の消滅核種 Mn-53 (半減期 370 万年) による年代で太陽系形成後それぞれ約 1650 万年後 (Endress et al. 1996)、700~1600 万年後 (Hutcheon et al. 1998) とした値に対して、Zag 隕石の岩塩から検出された消滅核種 I-129 (半減期 1570 万年) による太陽系形成直後約 200 万年以内という値 (Whitby et al. 2000) が矛盾しており、Cs-135 が新たな情報を与えられると期待できる。

3. 研究の方法

多くの種類の隕石からアルカリ金属元素とそれに関係する元素の分析を行った。適切な隕石試料を入手、アルカリ金属元素を多く含む部分を酸による抽出あるいは顕微鏡下でハンドピッキングにより取り出し、元素濃度を ICP 質量分析法で求めた。また、Rb-Sr 年代測定には Sr を、Cs-135 の痕跡の検出には Ba を化学分離した後、表面電離型質量分析計を用いて精密同位体比分析を行った。岩塩結晶などのアルカリ金属元素を多く含む部分は水に溶けやすいため、試料の前処理には水を用いないことが必要である。また、試薬はすべて高純度試薬を用い試薬からの汚染を避ける。

(1) 試料

国立科学博物館所蔵の隕石および内外の研究者より入手した隕石試料を用いた。これまでに Cs-135 の痕跡を検出した 2 つの隕石は普通コンドライトであるが、その他の種類の隕石の分析を進めた。日本に落下した炭素質コンドライトである狭山隕石に含まれる炭酸塩鉱物中の気泡に液体の水の存在が確認されている (Zolensky et al., 2001)。この隕石の一部は研究用に国立科学博物館に寄贈されており、分析に使用した。その他、欧米の博物館に所蔵されている隕石をリクエストした。なお、使用する隕石は、できるだけ落下直後に回収されたものを選んだ。Beardsley 隕石は数年経ってから回収された破片が存在するが、この破片は Rb-Sr の同位体体系が乱されていることが知られており、雨等による風化でアルカリ金属元素の移動があったものと考えられる。

(2) 化学処理

現在、アルカリ金属元素の濃度の高いフラクションを得るために、粉末にした隕石をいくつかの弱い酸で溶解する方法を行っている。これはこれまで Rb-Sr 法等でいくつかのフラクションを取るために行われてきた方法を改良したものである。非常に効率よく Cs/Ba 比の高いフラクションが得られ、これが最初の Beardsley 隕石からの Cs-135 の痕跡の発見につながった。したがって、本研究においても全岩の試料についてはこの方法を行った。しかしながら、この方法の短所として、実際に溶けている相が何であるのか分からない点があげられる。また、Cs と Ba の化学分離は通常の陽イオン交換法により分離を行った。

(3) 質量分析法

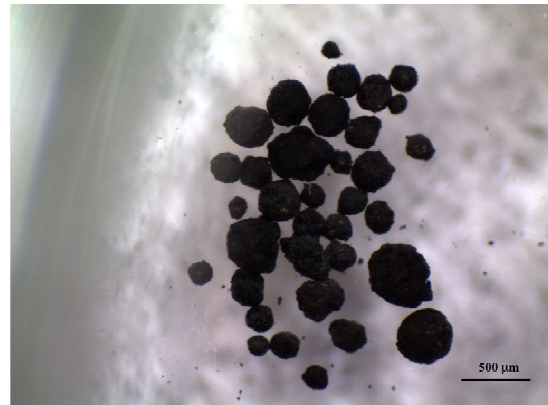
精密同位体比測定には国立科学博物館に設置されている Sector 54-30 表面電離型質量分析計 (英国 G V I 社製) を用いた。この質量分析計は平成 16 年 3 月に 7 つのファラデーコレクタをすべて新しいものに交換し、10ppm の相対誤差で 7 つの同位体の測定が可能となっている。化学分離した Ba は Re リボンに塗布し、イオン化室にセットし、リボンに電流を流すことにより加熱しイオン化を行う。Ba 同位体の測定では、Ba-134~Ba-138 の 5 つの同位体を測定し、同重体が干渉する La と Ce を残りの 2 つのコレクタでモニターする。測定は未知試料と標準試料を適宜測定し、時間的な感度変化がないかを確認した。

4. 研究成果

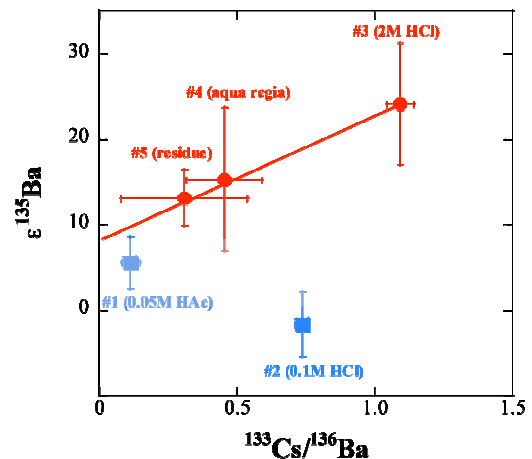
(1) 狭山隕石コンドラールの水質変成

非常に強い水質変成を受けた炭素質コン

ドライトである狭山隕石 (Yoneda et al., 2001) 中のコンドラールを顕微鏡下でハンドピッキングにより取り出し、さらに酸による多段階抽出を行ってアルカリ金属元素の定量と Ba 同位体分析を行った。狭山隕石は炭酸塩鉱物中の気泡に液体の水の存在が確認されているが (Zolensky et al., 2001)、バルクの Ba 同位体組成は Ba-135 と Ba-137 に異常がある s-過程元素合成により生成された成分の影響を大きく受けており、アルカリ金属元素 Cs の消滅核種 Cs-135 によると考えられる異常はわずかに検出されたのみであった (Hidaka et al., 2003)。狭山隕石のコンドラールは水質変成によりかなりの部分がフィロケイ酸塩となっており、一部に元の鉱物であるかんらん石が残っている。



ハンドピックした狭山隕石コンドラール



狭山隕石コンドラールの各フラクションによるアイソクロン様プロット

狭山隕石のバルクの Ba 同位体組成は Ba-135 と Ba-137 に異常がある s-過程元素合成により生成された成分の影響を大きく受けているが、コンドラールでは酢酸で抽出したフラクションのみが同じパターンを示し、0.1 モル塩酸による抽出フラクションでは、ほとんど同位体異常が観察されなかった。さらに強い酸 (2 モル塩酸、王水) で抽出したフラクションと酸残渣のフラクションでは

消滅核種 Cs-135 からできる Ba-135 の明確な異常が見られた。

ただし、得られたデータをアイソクロン様にプロットすると原点を通らない直線となり、傾きも白色包有物から求められた値よりも数倍大きくなった。したがってこの結果はアイソクロンではなくミキシングであると考えられる。2モル塩酸ではかんらん石が溶け出すため、これらの結果から水質変性によるかんらん石のフィロケイ酸塩への変質の時期に制約を与えることができるものと考えられる。すなわち、水質変性により Cs が一部鉱物に選択的に移動したことを示すと共に、水質変性が隕石母天体形成直後に起こったことを示している。

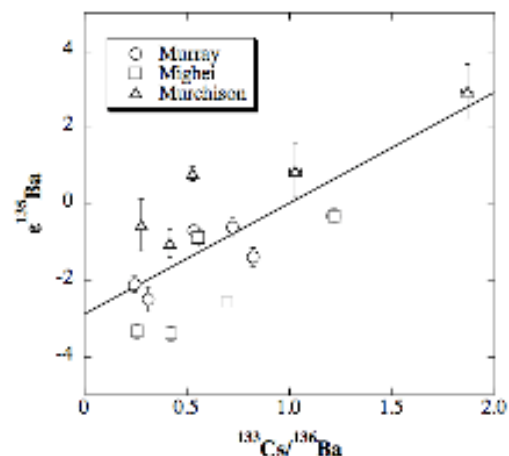
(2) その他の炭素質コンドライト

狭山隕石に加え、6種類の炭素質コンドライト Orgueil (CI), Mighei (CM2), Murray (CM2), Efremovka (CV3), Kainsaz (CO3), Karoonda (CK4) からアルカリ金属元素の定量と Ba 同位体分析を行った。

狭山隕石のコンドライトでは強い酸で抽出したフラクションと酸残渣のフラクションで消滅核種 Cs-135 からできる Ba-135 の明確な異常が見られたが、バルクの Ba 同位体組成は Ba-135 と Ba-137 に異常がある s-過程元素合成により生成された成分の影響を大きく受けていた。分析した6種の炭素質隕石のうち、CIコンドライトやCMコンドライトに分類される3種の隕石も同様に s-過程成分の影響が大きかった。

詳しく解析すると、s-過程成分を差し引いて得られた Cs-135 の同位体異常はCMコンドライトでは Cs/Ba 比に相関し、一方、CIコンドライトや他の炭素質コンドライトグループでは相関が見られなかった。これは後者が消滅核種 Cs-135 の壊変後に水質変成で元素が大きく移動したことを示している。また、前者のデータより、太陽系初期の Cs-135/Cs-133 比は $2.2\text{--}3.1 \times 10^{-4}$ と見積もることができた。

しかしながら、この値は太陽系最古の固体である白色包有物から得られた値の 4.8×10^{-4} (Hidaka et al., 2001) と比較してあまり減少しておらず、年代値にすると 150-260 万年の差でしかない。これは、Zag 隕石の岩塩から検出された消滅核種 I-129 (半減期 1570 万年) による太陽系形成直後約 200 万年以内という値 (Whitby et al. 2000) とは矛盾しないが、より確かであると考えられている消滅核種 Mn-53 (半減期 370 万年) による炭酸塩やカンラン石の年代で太陽系形成後それぞれ約 1650 万年後 (Endress et al. 1996)、700~1600 万年後 (Hutcheon et al. 1998) とした値とは大きく違っており、慎重に結果を吟味する必要がある。



CM コンドライトの各フラクションによるアイソクロン様プロット

(3) その他

中性子照射による同位体の変動を見るために、研究協力者の広島大学の日高洋教授とともに火星隕石やガスリッチ隕石の同位体分析を行い、研究発表を行った。

その他、分析精度向上のために質量分析計の検出部のプリアンプボードを新規に購入し、また、オイルミストを防ぐために真空ポンプをオイルフリーのダイヤフラムポンプと交換した。また、プリアンプボードに使用されているオペアンプを交換し、ノイズに強くなるようさらに改良を行った。

上述のように、2001年に Beardsley 隕石から消滅核種 Cs-135 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 (Hidaka et al. 2001) して以来、様々な隕石の分析を行い、また本研究では、水質変成の影響を詳しく調べてきたが、今後の研究の進展のためには、旧来の質量分析計の改良で得られる以上の測定精度の大幅な向上が必要である。近年のエレクトロニクスの進歩はめざましく、Ba 同位体比測定においても測定誤差が ϵ 値で 0.1 程度の超高精度測定が報告 (Brennecka et al., 2010) されるようになっており、新たな飛躍が期待される。

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3件)

(1) H. Hidaka, S. Yoneda and K. Nishiizumi (2009)

Cosmic-ray exposure histories of Martian meteorites studied from neutron capture reactions of Sm and Gd isotopes.

Earth Planet. Sci. Lett., 288, 564-571.

- (2) H. Hidaka and S. Yoneda (2009)
Isotopic evidence of non-thermalized neutron irradiation in solar-gas-rich meteorites: Possibility of the interaction with solar neutrons and activity from the early Sun.
Earth Planet. Sci. Lett., 285, 173-178.
- (3) Hiroshi Hidaka and Shigekazu Yoneda (2007)
Sm and Gd isotopic shifts of Apollo 16 and 17 drill stem samples and their implications for regolith history
Geochimica et Cosmochimica Acta, 71, 1074-1086

[学会発表] (計5件)

- (1) H. Hidaka and S. Yoneda, (2009. 7. 17).
Cosmic-Ray Exposure Histories of Gas-rich Brecciated Meteorites.
72nd Annual Meeting of the Meteoritical Society, Nancy, France. (*Meteoritics and Planetary Sciences*, 44: A90)
- (2) 近藤倫世・日高洋・米田成一 (2009. 9. 16)
中性子捕獲反応によるオーブライイト(エンスタタイトエコンドライト) 隕石の Sm 同位体変動.
2009 年度日本地球化学会年会, 広島. (講演要旨集 p. 164)
- (3) H. Hidaka and S. Yoneda, (2008. 7. 31).
Barium Isotopic Composition of Chondrules in the Sayama Meteorite.
71st Annual Meeting of the Meteoritical Society, Matsue, Japan. (*Meteoritics and Planetary Sciences*, 43: A56)
- (4) T. Kondo, H. Hidaka, and S. Yoneda, (2008. 7. 29).
Large Samarium Isotopic Shift of the Norton County Meteorite by Neutron Capture Effect.
71st Annual Meeting of the Meteoritical Society, Matsue, Japan. (*Meteoritics and Planetary Sciences*, 43: A80)
- (5) S. Murakami, K. Kato, N. Fujikawa, K. Terada, S. Yoneda, 他7名 (2008. 7. 29).
Comprehensive Studies of the Hiroshima H-chondrite.
71st Annual Meeting of the Meteoritical Society, Matsue, Japan. (*Meteoritics and Planetary Sciences*, 43: A105)

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・研究主幹
研究者番号: 60210788
- (2) 研究分担者
なし
- (3) 連携研究者
なし