

## 様式 C-19

# 科学研究費助成事業（科学研究費補助金）研究成果報告書

平成24年 5月 11日現在

機関番号：15401

研究種目：基盤研究(A)

研究期間：2009～2011

課題番号：21244086

研究課題名（和文） 素粒子物理学との境界で展開される同位体地球化学

研究課題名（英文） Interdisciplinary study on isotopic geochemistry and particle physics

研究代表者

日高 洋 (HIDAKA HIROSHI)

広島大学・大学院理学研究科・教授

研究者番号：10208770

研究成果の概要（和文）：月表土試料，火星隕石，ガスに富む隕石，宇宙線照射年代の長い石質隕石，石鉄隕石，オクロ天然原子炉試料等，異なる自然環境下で中性子捕核反応が進行したと考えられる試料について，中性子捕獲反応断面積の大きい核種  $^{149}\text{Sm}$ ， $^{155}\text{Gd}$ ， $^{157}\text{Gd}$  に着目し，その同位体比  $^{150}\text{Sm}/^{149}\text{Sm}$ ， $^{156}\text{Gd}/^{155}\text{Gd}$ ， $^{158}\text{Gd}/^{157}\text{Gd}$  の変動を利用して，生じた中性子捕獲反応を定量的に特徴づけすることを試みた。

研究成果の概要（英文）：The variable types of neutron capture reactions under the variable environmental conditions were found from the isotopic results of lunar surface materials, martian meteorites, gas-rich meteorites, stony meteorites having long cosmic-ray exposure ages, stony-iron meteorites, and the Oklo natural reactor samples. The quantitative characterization of the neutron capture reactions were performed from the isotopic shifts of  $^{150}\text{Sm}/^{149}\text{Sm}$ ， $^{156}\text{Gd}/^{155}\text{Gd}$ ，and  $^{158}\text{Gd}/^{157}\text{Gd}$  in individual samples because of the large neutron capture cross sections of  $^{149}\text{Sm}$ ， $^{155}\text{Gd}$  and  $^{157}\text{Gd}$ .

交付決定額

（金額単位：円）

	直接経費	間接経費	合計
2009年度	25,300,000	7,590,000	32,890,000
2010年度	4,900,000	1,470,000	6,370,000
2011年度	5,000,000	1,500,000	6,500,000
年度			
年度			
総計	35,200,000	10,560,000	45,760,000

研究分野：数物系科学

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：中性子捕獲，同位体，消滅核種，天然原子炉，隕石，ジルコン

### 1. 研究開始当初の背景

原子核の構造・安定性は同位体の存在度に反映される。

太陽系内に存在する惑星物質に含まれる元素の同位体組成を精密に測定することにより，その同位体変動から原子核の性質を把握することができる。さらに，いくつかの核反応に起因する同位体変動からは原子核の中の素粒子に関する情報を引き出すことができる。同位体をプローブとした地球化学的

手法によって素粒子の性質を探ることができる。

自然法則の中の数ある基本的な定数の中で，重力定数（ニュートン定数） $G$ および素粒子間に働く相互作用結合定数（微細構造定数） $\alpha$ については，これらが真の定数ではなく，宇宙の加齢とともに変化してきたのではないか，という考え（巨大数仮説）が提唱された（Dirac, 1937）。その後，この巨大数仮説は少なからずの実験・観測に携わる科学者

の興味を惹き、物理定数の変化の可能性について数々の研究が行われてきた。

物理定数の時間変化の上限について、例えば素粒子間に働く相互作用結合定数（微細構造定数） $\alpha$ においては、QSOのスペクトル観察（Wolfe et al., 1976; Webb et al., 1999）、原子時計の周波数標準測定（Godone et al., 1993）、長半減期放射性核種  $^{187}\text{Re}$  の存在度（Dyson, 1967）など様々なアプローチに基づいた結果が報告されているが、これらの中でも特に、20億年前に大規模な自発核分裂連鎖反応を起こした、いわゆる「天然原子炉」として知られるオクロ鉱床内の核反応から見積もられた $\alpha$ の時間変化の上限に関する結果（Shlyakhter, 1976）は、他のあらゆるアプローチと比較して最も厳しい制約を与えているという現状にある。

## 2. 研究の目的

本研究では自然界の中で生じた核反応の蓄積に基づく同位体変動を通して、素粒子の結合定数の時間変化にさらに厳しい制約を加える可能性を見出すことを目的とした。

本研究では、古い形成年代をもつジルコンに着目し、その内部に蓄積していると期待される $^{96}\text{Zr}$ - $^{96}\text{Mo}$ 壊変に基づく $^{96}\text{Mo}$ 同位体過剰の有無を検出することにより、極めてまれな原子核壊変である二重ベータ崩壊を同位体化学的に検証し、ニュートリノの特性に関する情報を得ること、素粒子の結合定数の時間変化に厳しい制約を与えているオクロ天然原子炉試料の中性子捕獲反応について、他に自然界の中で中性子捕獲反応を起こしている事例との詳細な比較を行い、オクロ天然原子炉の場合と同様なアプローチによって制約を与えることが可能かどうかの検討を試みた。

## 3. 研究の方法

地球化学的観点に基づく同位体研究（天然の核反応に基づく元素の同位体組成変動）から素粒子の特性解明に結びつくことが期待できる研究課題として、(1)宇宙線と惑星物質の相互作用によって惑星物質表面で起きる核反応の一つである中性子捕獲反応の定量的評価、(2)オクロ天然原子炉内の核反応の同位体化学的特徴づけ、について実施・検討を行った。

## 4. 研究成果

(1)地球の始生代岩石中に含まれるジルコンの年代測定・結晶性評価・NdおよびMoの精密同位体分析

局所U-Pb同位体分析を効率よく行うために、既存の高感度高分解能イオンマイクロプローブの制御システムの改良をおこない、研究期間内に800粒子を超えるジルコンのU-Pb年代

測定を実施した。特にグリーンランド南西部のItsaq片麻岩複合岩体から採取した12個のトータル質片麻岩中のジルコンについて年代測定を行った結果、その年代分布は37~38.5億年と28~29億年の二つに大別でき、全220粒子中、37.5億年以上の古い形成年代を示す107粒子を発見した（図1）。

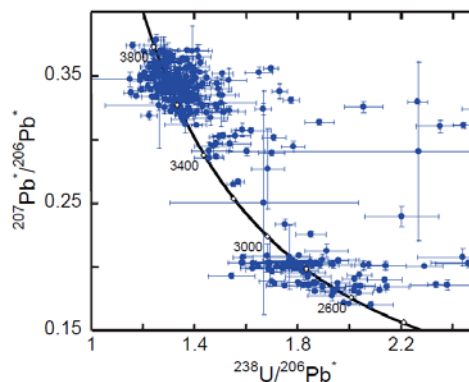


図1. 西南グリーンランドItsaq片麻岩複合岩体試料から採取されたジルコンのU-Pb同位体結果を示すコンコーディア図

年代既知のジルコンについて、後方散乱電子（BSE）、カソードルミネッセンス、レーザーラマン分光を用いてその結晶性の評価を行ったところ、図2のように放射線による損傷が少なく、高い結晶性を保持しているジルコン粒子も複数存在することがわかった。

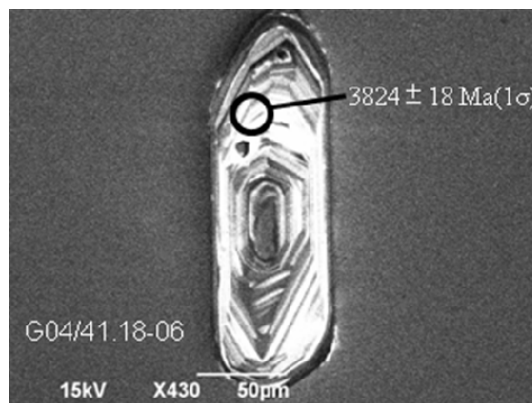


図2. 西南グリーンランドItsaq片麻岩複合岩体試料から採取されたジルコンの後方散乱電子（BSE）像。累帯構造を有しているが結晶内部に割れ目などの損傷は見られない。

38億年以上の古い形成年代を示すジルコン粒子について、(1)Nd同位体測定による消滅核種 $^{146}\text{Sm}$ の壊変に基づく $^{142}\text{Nd}$ 同位体過剰検出、および(2)Mo同位体測定により $^{96}\text{Zr}$ の二重ベータ壊変に基づく $^{96}\text{Mo}$ 同位体過剰検出を試みた。本測定にあたっては、まず国立科学博物館に既存の表面電離型質量分析計VG54-30を用い

た。Nd同位体に関しては $\mu^{142}\text{Nd}=+16.8\pm 7.3$  ( $\mu$ は100万分の1の偏差を示す単位)の同位体過剰が検出された。その後、国立科学博物館研究部に2011年度に新規導入された高精度表面電離型質量分析計 (Triton Plus) を用いてNdおよびMoの精密同位体測定することを2011年度までに計画していたが、東北大震災の影響により同博物館の移転ならびに同装置の据え付け・立ち上げが遅れたため、これに関しては現在実施しているところである。

### (2) オクロ天然原子炉試料内の核反応の同位体化学的キャラクタリゼーション

中性子捕獲反応を顕著に受けている天然原子炉試料の同位体測定を行うための化学操作 (試料の分解, Sm, Gd, Cd等の化学分離) の確立を行った。さらに、一部の試料については同位体測定を行い、中性子捕獲反応の影響による顕著な同位体変動が認められることを確認した。また、同試料中に存在する金属微粒子 ( $\epsilon$  粒子) の同位体分析を行い、Ru, Rh, Pdなどの核分裂起源白金族元素が濃集していることを発見した。さらに $^{99}\text{Ru}$ の同位体存在度の変動が他の元素同位体にくらべて顕著に大きいことから水の放射線分解によってもたらされたラジカル分子が局所的な酸化雰囲気をつくり出す可能性を見出した。

### (3) 宇宙線との相互作用による隕石試料中の中性子捕獲反応の定量的評価

天然原子炉試料以外に自然界で中性子照射の履歴のある対象として地球外物質がある。厚い大気に覆われていない惑星表面では宇宙線照射の影響を受けている。宇宙線と惑星物質の相互作用によって惑星物質表面で起きる核反応の一つである中性子捕獲反応を同位体変動をとらえることによって定量的に評価することができる。本研究では、対象となる地球外試料として、(1) 巨大石質隕石として知られるJilinコンドライト隕石、(2) 石質隕石の中で長い宇宙線照射年代をもつことで知られるNorton County隕石、(3) 石質隕石とは構成成分が全く異なる石鉄隕石に属するメソシデライト、(4) 火星隕石、についてSmおよびGd同位体測定を行い、各々の中性子捕獲反応の違いを明らかにした。

① 巨大石質隕石Jilin: 巨大石質隕石として知られているJilin隕石から採取された9種のコア試料についてSm, Gd同位体分析を行い、宇宙線が石質標的に照射された場合の深さ方向に及ぼす影響を実験的に確かめ、理論値との比較を行った。図3にJilin隕石のコア試料の深さ方向におけるSmの同位体比 $^{150}\text{Sm}/^{149}\text{Sm}$ の変動を示すプロファイルを示す。実験的に得られたSm同位体比の深さ方向の変動は理論的に求められるものと分析誤差範囲内で一致し

ており、本研究の結果からはJilin隕石は初期段階で10m以上の半径をもつ天体として母天体から放出されて700万年経過後、その天体が部分的に衝突等によって崩れ、数m径の天体として地球に到達するまで数十万年の期間、浮遊していたと考えられている。

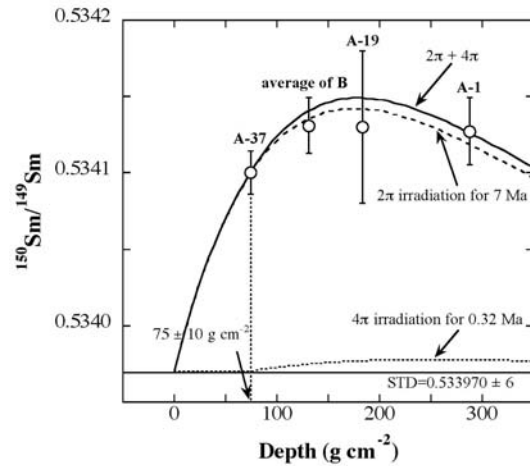


図3. Jilin隕石の本体から取り出したコア試料について中性子捕獲反応によるSm同位体比変動の表面からの深さ依存性を示す図。図中の点線はJilin隕石が二段階の宇宙線照射を受けたとするモデルの各々の理論値、実線は二段階照射モデルの二成分を合算した値。

② 長い宇宙線照射年代をもつNorton County隕石: 1億年以上の長い宇宙線照射年代を示すことで知られているNorton County隕石について化学的、あるいは鉱物学的に異なる複数のフェーズを分離し、各フェーズごとに個々にSm, Gd同位体分析を行った。同位体変動を中性子量に換算すると、同一隕石内においても異なるフラクションごとにその中性子量は一定の値を示すことなく非常に不均一であり、特にエンスタタイト ( $\text{Mg}_2\text{Si}_2\text{O}_6$ ) を主成分とする鉱物分離フラクションからは全岩 (全体の平均値) にくらべて10倍以上高い中性子発生量を記録することがわかった。図4の結果に示されるように、中性子の発生量が高いフラクションでは、SmとGdの同位体変動のずれから見積もられる中性子エネルギーのレベルも高いことがわかった。エンスタタイトのような特定部位に見られるような中性子の高フラックス量・高エネルギーは、隕石が形成される前に原始太陽からの高エネルギー照射の影響を受けたものであり、それが隕石母天体形成の際に部分的に混入している可能性を示唆している。本結果は原始太陽が現在の太陽よりも活動が高かったという太陽宇宙線初期照射説を裏付けるデータとなり得ることが考えられる。

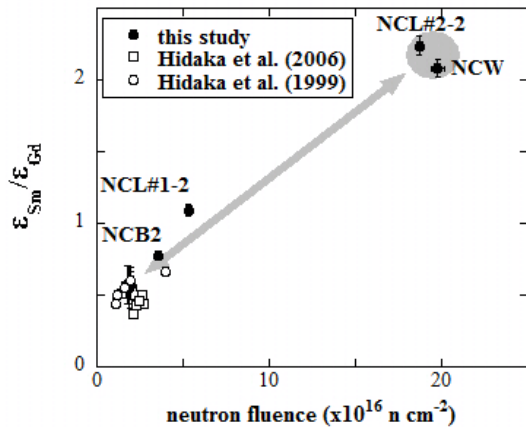


図4. Norton County 隕石から分離した各フラクションの Sm, Gd 同位体比測定して得られた中性子発生量とそのエネルギーを示す相関図。平均的な値 (○) に比べてエンスタタイト (NCW) や弱酸で溶出したフラクション (NCL#2-2) は著しく高い値を示すことがわかる。

③石鉄隕石メソシデライト：石質隕石とは構成成分の全く異なる石鉄隕石の一種であるメソシデライトについて、Sm, Gd同位体比分析を行い、宇宙線照射に誘発して生成される中性子のエネルギーの違いについて検討した。その結果、メソシデライト中で発生する中性子は石質隕石中のものと比べて高いエネルギーをもつ傾向があることがわかった。さらにメソシデライトの一種であるVaca Muerta隕石には他の一連のメソシデライトにくらべて過剰に宇宙線照射を受けた痕跡が確認された (図5)。

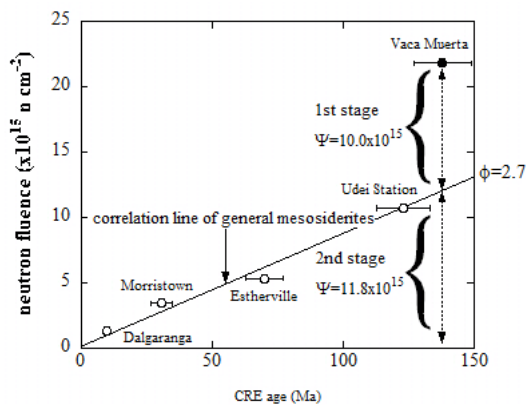


図5. メソシデライト隕石の宇宙線照射年代と発生した中性子量との相関。他の4種の隕石 (○) から得られる相関直線に対し、Vaca Muerta 隕石 (●) は単段階の宇宙線照射履歴では説明できない大きな過剰を示している。

本結果はVaca Muerta隕石が母天体から脱

出する前に母天体表面にて受けていた宇宙線照射の履歴を反映しているものと考えられる。

④火星隕石：火星の大陸地殻に起源をもつ隕石12種について、その宇宙線照射による中性子捕獲反応の履歴を調べるためにSm, Gd同位体測定を行ったところ、一連の玄武岩質シャゴットイト隕石において他の隕石よりも高い中性子フラックスを示すことがわかった (図6)。過去の希ガス同位体分析データの結果から玄武岩質シャゴットイト隕石は火星地殻表面に存在する古いレゴリスを取り込んで固化した可能性が指摘されていたが (Rao et al., 2002), 本研究による同位体データはその仮説を強く支持する結果となった。本研究によれば、火星大陸地殻表面に40億年前に形成されたレゴリスが存在していたとすれば、それらを微量 (<0.5重量%) 取り込んでシャゴットイトが形成されたとしても、中性子捕獲反応履歴には大きく影響することがシミュレーションできる。

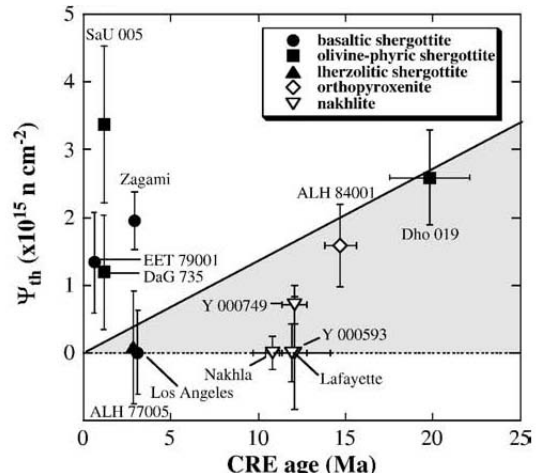


図6. 火星隕石の宇宙線照射年代と中性子フルエンスの相関。図中の実線は理論的に得られる中性子フラックスの上限値を示し、通常、単段階の宇宙線照射による中性子フラックスは図中のグレー色の領域で説明される。4つのシャゴットイト隕石 (●, ■) は理論値を顕著に越えている。

⑤ガスリッチ隕石：石質隕石の中には他に比べて大量にガス成分を含む隕石があり、希ガス同位体分析の結果からは、そのガス成分の多くは太陽風であり、隕石母天体形成時期に天体周囲の初期レゴリスが集積・固化形成をしていく過程において太陽風を取り込んだものと考えられている。本研究においては、ガスリッチ隕石として知られているKapoeta隕石をはじめレゴリス質隕石など太陽風を取り込んでいる可能性のある4種の隕石について、各試料を酸による段階溶出によって4つのフラクションに分け、各々についてSmおよびGd

同位体測定を行い、中性子補獲反応履歴を詳細に調べた。本研究の結果、すべての試料中でKapoeta隕石の酸による連続溶出によるフラクションの中に顕著に高い中性子フラックスを示すものが見出された (図7)。このフラクションについては他と異なり、SmとGdの同位体変動のずれから見積もられる中性子エネルギーのレベルも高いことがわかった。通常の宇宙線照射による中性子補獲とは反応のタイプが明らかに異なっており、原始太陽からの高エネルギー粒子の照射に由来する反応であることを示唆している。

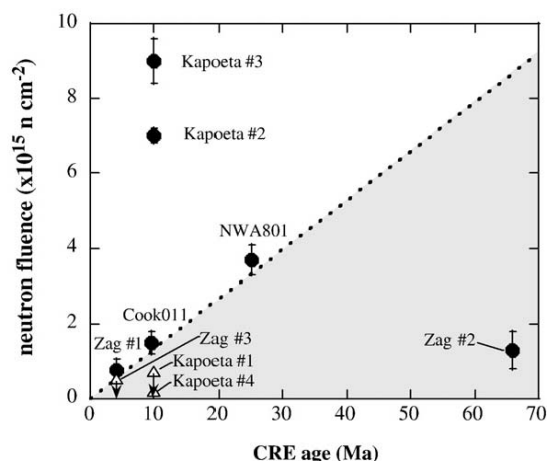


図7. ガスリッチ隕石およびレゴリス質隕石の宇宙線照射年代と中性子フルエンスの相関。図中の実線は理論的に得られる中性子フラックスの上限値を示し、通常、単段階の宇宙線照射による中性子フラックスは図中のグレー色の領域で説明される。Kapoeta 隕石から得られた 2 つの酸溶出フラクションは理論値を顕著に越えた異常を示している。

## 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15件)

1. H. Hidaka, T. Kondo and S. Yoneda, Heterogeneous isotopic anomalies of Sm and Gd in the Norton County meteorite: Evidence for irradiation from the active early Sun. *Astrophysical Journal*, 査読有, 746, 2012, 132-1-8
2. H. Hidaka and S. Yoneda, Neutron capture records of mesosiderites and an iron meteorite. *Geochimica et Cosmochimica Acta*, 査読有, 75, 2011, 5706-5715
3. H. Hidaka and S. Yoneda, Diverse nucleosynthetic components in barium isotopes of primitive meteorites: Incomplete mixing of s- and r-process

isotopes and extinct  $^{135}\text{Cs}$  in the early solar system. *Geochimica et Cosmochimica Acta*, 査読有, 75, 2011, 3687-3697

4. H. Hidaka, S. Yoneda and K. Nishiizumi, A neutron capture study of the Jilin chondrite. *Meteoritics and Planetary Sciences*, 査読有, 45, 2010, 1973-1981

5. H. Hidaka and M. Kikuchi, SHRIMP in situ isotopic analyses of REE, Pb and U in micro-minerals bearing fission products in the Oklo and Bangombe natural reactors: A review of a natural analogue study for the migration of fission products. *Precambrian Research*, 査読有, 183, 2010, 158-165

6. M. Kikuchi, H. Hidaka and F. Gauthier-Lafaye, Formation and geochemical significance of micro-metallic aggregates including fissionogenic platinum group elements in the Oklo natural reactor, Gabon. *Geochimica et Cosmochimica Acta*, 査読有, 74, 2010, 4709-4722

7. K. Horie, M. Yamashita, Y. Hayasaka, Y. Katoh, Y. Tsutsumi, H. Hidaka, H. Kim, M. Cho (2010) Eoarchean-Paleoproterozoic zircon inheritance in Japanese Permo-Triassic granites (Unazuki area, Hida Metamorphic Complex): Unearthing more old crust and identifying source terranes. *Precambrian Research*, 査読有, 183, 145-157

8. K. Horie, A. P. Nutman, C. R. L. Friend and H. Hidaka (2010) The complex age of orthogneiss protoliths exemplified by the Eoarchaen Itsaq Gneiss Complex (Greenland): SHRIMP and old rocks. *Precambrian Research*, 査読有, 183, 25-43

9. M. Mange, B. Idleman, Q.-Z. Yin, H. Hidaka and J. Dewey (2010) Detrital heavy minerals, white-mica and zircon geochronology in the Ordovician South Mayo Trough, western Ireland: signatures of the Grampian Progeny. *Journal of Geological Society, London*, 査読有, 167, 1147-1160

10. K. Horie, Y. Tsutsumi, M. Cho, Y. Morishita and H. Hidaka (2010) Crystallization of REE minerals and redistribution of U, Th, and REE at contact boundary between granite and gabbro during hydrothermal alteration. *Physics and Chemistry of the Earth*, 査読有, 35, 284-291

11. H. Hidaka, S. Yoneda and K. Nishiizumi, Cosmic-ray exposure histories of Martian meteorites studied from neutron capture reactions of Sm and Gd isotopes. *Earth and*

Planetary Science Letters, 査読有, 288, 2009, 564-571

12. H. Hidaka and S. Yoneda, Isotopic evidence of non-thermalized neutron irradiation in solar-gasrich meteorites: Possibility of the interaction with solar neutrons and activity from the early Sun. Earth and Planetary Science Letters, 査読有, 285, 2009, 173-178

13. Y. Tsutsumi, A. Miyashita, K. Terada and H. Hidaka (2009) SHRIMP U-Pb dating of detrital zircons from the Sanbagawa Belt, Kanto Mountains, Japan: need to revise the framework of the belt. Journal of Mineralogical & Petrological Science, 査読有, 104, 12-24

14. M. Kikuchi and H. Hidaka (2009) In-situ U-Pb analyses of highly altered zircon from sediments over laying the Bangombé natural fission reactor. Geosciences Journal, 査読有, 13, 257-264

15. K. Horie, Y. Tsutsumi, H. Kim, M. Cho, H. Hidaka, K. Terada (2009) A U-Pb geochronological study of migmatic gneiss in the Busan gneiss complex, Gyeonggi massif, Korea. Geosciences Journal, 査読有, 13, 205-215

[学会発表] (計 27 件)

1. H. Hidaka, Ba isotopes of carbonaceous chondrites, 2011 Japan-Korea joint meeting of Isotope-ratio mass spectrometry, 23-25 November 2011, Busan, Korea.

2. H. Hidaka, Isotopic evidence for the interaction of cosmic rays with planetary surface materials, International workshop on chemical evolution of the universe, 31 October-2 November 2011, Tokyo, Japan.

3. T. Kamiichi and H. Hidaka, Chronological study of Archean igneous activities from the Itsaq Gneiss Complex, in southern West Greenland, International field workshop on the Precambrian crustal evolution in Korea and east Asia Tectonics, 19-23 September 2011, Ochang, Korea.

4. H. Hidaka and S. Yoneda, Neutron capture records of mesosiderites. 74th Meteoritical Society Annual Meeting, 7-12 Aug 2011, London, British Kingdom.

5. H. Hidaka, Geochemical evidence for the radiolysis of water in the Oklo natural fission reactors, International Workshop on Radiation effects in Nuclear Technology, 8-10 March 2011, Tokyo, Japan.

6. H. Hidaka, K. Nishiizumi and S. Yoneda, A neutron capture study of the Jilin

chondrite. 73rd Meteoritical Society Annual Meeting, 26-31 July 2010, New York, USA.

7. M. Kikuchi, K. Nagao, K. Bajo and H. Hidaka, Noble gas isotopic compositions of zircons above the Bangombe natural fission reactor, Goldschmidt 2010, 13-18 June 2010, Knoxville, USA.

8. H. Hidaka and S. Yoneda, Cosmic-ray exposure histories of gas-rich brecciated meteorites. 72nd Meteoritical Society Annual Meeting, 13-18 July 2009, Nancy, France.

9. H. Hidaka and S. Yoneda, Incomplete mixing of nucleosynthetic components in Ba isotopes of primitive chondrites, Goldschmidt 2009, 21-26 June 2009, Davos, Switzerland.

10. M. Kikuchi and H. Hidaka, Formation process of micro-metallic aggregates in the Oklo natural reactor, Goldschmidt 2009, 21-26 June 2009, Davos, Switzerland.

[図書] (計 1 件)

1. 日高洋, 地球化学講座 8 : 地球化学実験法 4.12 二次イオン質量分析 (SIMS), 倍風館, 2010, 213-218.

[その他]

総説

1. 日高洋, オクロ天然原子炉についての基礎知識と最近の研究の進歩, RADIOISOTOPES, 査読有, 2012, 印刷中

2. 日高洋, 20 億年前の原子炉 (オクロ現象) と同位体化学, 化学と教育, 査読有, 58, 2010, 456-457

3. 日高洋, 天然における核反応現象に基づく地球化学および宇宙化学的研究, 放射化学会ニュース, 査読有, 19, 2009, 16-18.

6. 研究組織

(1) 研究代表者

日高 洋 (HIDAKA HIROSHI)

広島大学・大学院理学研究科・教授

研究者番号 : 10208770

(2) 研究分担者

なし

(3) 連携研究者

なし