

論文内容の要旨

論文題目 Halogen-derived Noble Gases and I-Xe Dating of Primitive Meteorites: Constraints on Halogen Behaviors in the Early Solar System

(始原的隕石中のハロゲン由来希ガスとI-Xe年代測定:初期太陽系におけるハロゲンの挙動に関する研究)

氏名 海老澤 紀子

始原的隕石は太陽系形成初期の蒸発・凝縮・熱変成および水質変成等の情報を保持している。ハロゲンは揮発性が高く、イオン化して水中にも存在可能なことから、熱変成史と水質変成史の両方を探る有効なツールとなるはずである。しかし微量ハロゲンのその場定量が難しいことや、地球上で受けるコンタミネーションの問題もあり、これまでその宇宙化学的挙動について十分な解明がなされていなかった。そこで本研究では、隕石中のハロゲンの一部が宇宙空間での中性子捕獲反応で希ガスになっていることを利用し、ハロゲンを直接分析する代わりに、高感度質量分析計を使って希ガス同位体を測定する。段階加熱法による全岩分析や、レーザーによる局所的ガス抽出法を組み合わせ、ハロゲンの存在形態を明らかにしていく。それにより隕石形成およびコンドリュールやインクルージョンの形成・変成過程でハロゲンが移動・

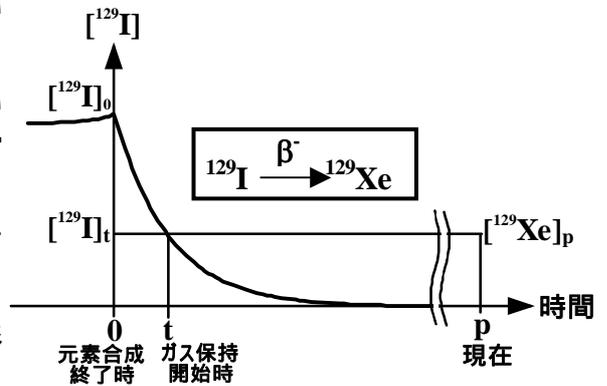


図 1. I-Xe 系

再分布した様子を調べ、同時に得られるハロゲン由来ではない希ガス同位体の情報も含めて、最終的には太陽系形成初期に起こった出来事を解明することを目的とした。この手法では宇宙線と隕石構成元素との核反応で形成される二次中性子を利用しているため、地球のハロゲンに汚染されてしまった隕石についても、その汚染とは無関係に隕石固有のハロゲンを分析することができるという利点がある。

修士課程では太陽系初期の情報を保持している始原的隕石の一つ Allende 隕石に含まれている白色の不定形包有物(CAI)を研究対象とした。その結果、主に sodalite からなる CAI の変成域に消滅核種 ^{129}I の壊変核種 ^{129}Xe が高濃度で存在することを見出した。これはハロゲンの濃集を伴った変成作用が ^{129}I の残存していた太陽系のごく初期に起こった証拠であり、原始太陽系におけるハロゲンの存在形態の一つを明らかにすることができた。

太陽系初期の星雲中や形成直後の小天体上で起こったハロゲン分配の時系列を知るには、消滅核種 ^{129}I (半減期 1570 万年) とその娘核種 ^{129}Xe (図 1) を利用した I-Xe 年代が重要な情報源となる。試料を原子炉で中性子照射することにより安定核種 ^{127}I を ^{128}Xe に変換し、高精度で測定可能な $^{129}\text{Xe}/^{128}\text{Xe}$ 比からハロゲン含有組織が形成された時の $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ 比を求め、標準物質との差から相対形成年代を決める。I-Xe 年代は太陽系形成期のイベントの発生時期を 100 万年単位で決められる他に代替のない重要な情報であるにもかかわらず、中性子照射した試料の分析は放射線管理区域で行うことが義務付けられていることや、微量希ガス同位体分析の困難さなどの制約から、これまで国内では測定が試みられていなかった。そこで、東京大学アイソトープ総合センターに設置されて $^{40}\text{Ar}-^{39}\text{Ar}$ 年代測定に用いられていた質量分析計 VG3600 を改造して利用することにし、国内初の I-Xe 年代測定を目指した。

【I-Xe 年代測定用希ガス質量分析システムの開発】

質量分析計は、既存の二種のイオン検出器の低ノイズ・高安定化を行なうとともに、微量の Kr や Xe を高感度分析するためにイオンカウンティング装置を組み込んだ。希ガス抽出精製ラインでは、抵抗加熱炉とレーザーによる局所的加熱の 2 種の希ガス抽出法ができるようにした。新たに設計したコンピューターで温度制御できる全岩試料加熱用の炉は、タングステンフィラメントでモリブデン製ルツボを加熱する方式である。約 700 ワットで 1700 °C を達成し、通常の隕石の分析に十分な温度を効率よく得ることができた。レーザー加熱による希ガス抽出では、数十ミクロン径に集光させた Ar レーザーで試料を局所的に加熱する。抽出された極微量希ガスを分析するために、精製ラインの内容積はできるかぎり小さくし、プランクの低下に努めた。

測定試料はそれぞれアルミホイルに包み、直径 11 mm 長さ 60 mm の純アルミ製カプセルに図 2 のように詰め、日本原子力研究所大洗研究所材料試験炉で中性子照射を行なった。I-Xe 年代の標準試料として一般的に用いられている Bjurböle 隕石(L4)は図 2 に示した部分に入れ(計 12 個)、カプセル内での中性子束のモニターとした。各 Bjurböle 試料から 1200 °C 以上で放出された Xe の $^{128}\text{Xe}/^{132}\text{Xe}$ 、 $^{129}\text{Xe}/^{132}\text{Xe}$ 比を図 3 に示す。いずれもほぼ一直線上に並んでおり、カプセル各部で中性子フラックスが一定であることを示している。

ヨーク法(x と y それぞれの測定誤差の逆数の二乗を重みとした)で回帰した直線の傾き 2.20 を基準に他の試料の I-Xe 年代を決定できる。

レーザーによる局所加熱法では、集光させた Ar レーザーで厚さ 300 μm の試料片の直径約 100 μm の領域を局所的に加熱できる。ここで、段階加熱法では 1100 °C 以下で放出される低 $^{129}\text{Xe}/^{132}\text{Xe}$ かつ高 $^{128}\text{Xe}/^{132}\text{Xe}$ の

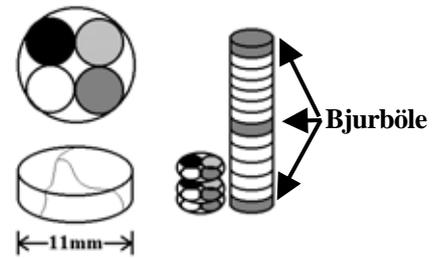


図 2. 中性子照射

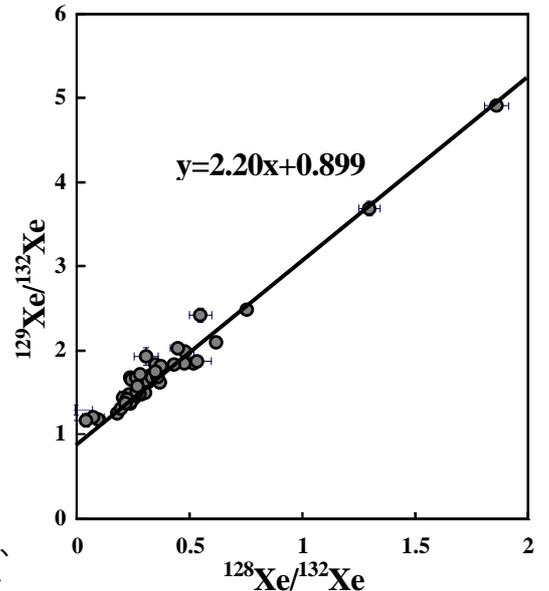


図 3. Bjurböle (>1200°C)

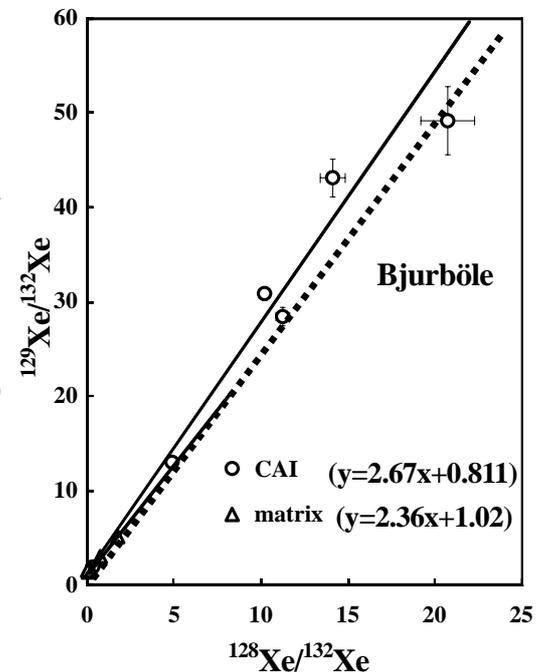


図 4. laser 分析 (Allende)

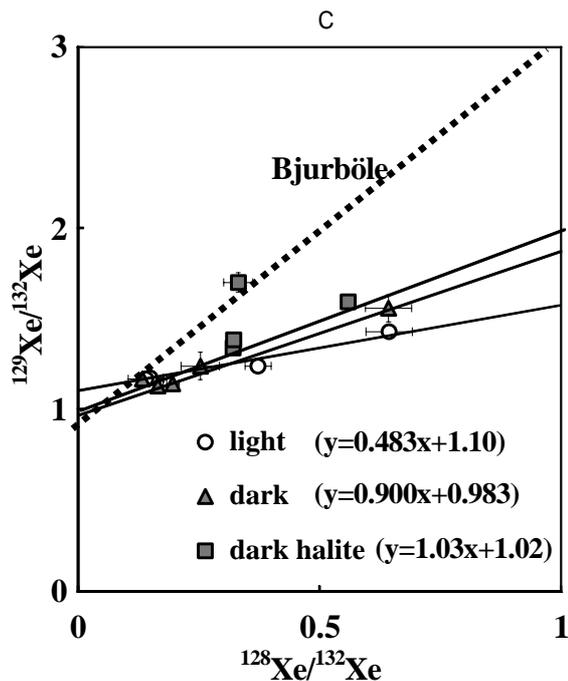


図 5. Zag (>1200°C)

成分が、年代測定のための相関を得る妨げとなることがわかった。この影響を除くため、試料片を真空チャンバー導入後、レーザー用ガラス窓を通してイメージ炉で試料を 700 以上に加熱した。上記と同カプセル内で中性子照射した Allende 隕石の研磨片(厚さ 300 μm)を分析した結果を、CAI と細粒物質(matrix)に分けて図 4 に示す。いずれも比較的良好な相関が取れ、得られた Bjurböle に対する相対 I-Xe 年代 (CAI: -435 ± 73 万年、matrix: -160 ± 140 万年)も過去の報告と整合的であった。

【Zag】

Zag 隕石は 1998 年にモロッコに落下した角礫岩隕石(H3-6)で、内部から mm サイズの岩塩結晶(halite)が見つかったことで有名である。halite は隕石母天体上での熱水活動により形成されたとみられている一方、太陽系最古の I-Xe 年代を示し、形成プロセスはいまだ明らかになっていない。

本研究で用いた Zag 隕石には、肉眼で暗く見える部分(dark phase)と明るく見える部分(light phase)があり、dark phase の表面に 0.4mm 程度の halite が見つかった。段階加熱法による希ガス同位体分析を行ったところ、halite が見つかった dark phase から過剰 ^{129}Xe が検出された。走査型電子顕微鏡を用いてこの dark phase を観察したところ、halite は確認できなかったが塩素を含む鉱物 chlorapatite $\text{Ca}_5(\text{PO}_4)_3\text{Cl}$ が存在していることがわかった。レーザーによる局所的ガス抽出法を使って chlorapatite の希ガス同位体分析を行ったが、段階加熱法で検出された量を説明するだけの過剰 ^{129}Xe は検出されなかった。このことから、chlorapatite の形成時には ^{129}I はすでに消滅していたか、ヨウ素を取り込みにくい鉱物学的性質を持つ、などの可能性が示唆された。次に岩塩が水に可溶なことを利用し、 ^{129}Xe の過剰が検出された dark phase を様々な粒径に粉碎し精製水で 3 時間煮沸した。水処理を行ったものを行わなかったものとの ^{129}Xe 量を比較したところ、80%以上の岩塩が溶解していないことがわかった。このことから、岩塩結晶のサイズはかなり小さく(0.15 mm 以下)、ケイ酸塩に完全に覆われていたため水に触れず残存したと推測した。

Zag 隕石の各 phase の I-Xe 年代測定の結果を図 5 に示す。halite が見つかった dark phase では 1720 ± 120 万年、見つからなかった dark phase では 2030 ± 140 万年、light phase では 3440 ± 710 万年、Bjurböle より若い I-Xe 年代を示すことがわかった。これらは一般的に知られている原始太陽系星雲の寿命(~100 万年)よりも長く、形成年代とは考えにくい。I-Xe 年代系は熱変成や水質変成などによりリセットされやすい性質を持つため、いずれかの変成が起こった年代を示しているものと考えられる。ただし、1200 以上で放出された Xe について相関を得ているので、熱変成で年代をリセットするにはこれ以上の温度が必要となり、この場合 halite(融点約 900)の共存が説明できない。熱変成後に母天体外部から halite がもたらされた可能性もある。水質変成であった場合、halite が母天体上の熱水活動で形成されたとするなら、その約 2000 万年後に再び母天体上に水が登場したことになる。以上のことから、halite の存在形態や形成プロセス、さらに隕石母天体上熱水史に新たな知見を加えることができた。

【Yamato-74191】

Takaoka and Nagao が 1979-1980 年に行った希ガス同位体分析の結果、Yamato(Y)-74191 隕石(L3)には ^{129}I 起源の ^{129}Xe を含め、ハロゲン由来の希ガス同位体が高濃度に存在することがわかっている。しかし高濃度ハロゲンの存在形態や濃集時期は不明であった。

ハロゲンの存在形態を明らかにするために、SEM による組織観察の後、レーザー抽出法による希ガス同位体分析を行った。その結果、変成を受けたような組織にハロゲン由来の希ガス同位体が局所的に濃集していることがわかった。

I-Xe 年代測定の結果を図 6 に示す。3 試料とも、それぞれ Bjurböle よりも 2760 ± 180 万年、 1660 ± 110 万年、 1620 ± 90 万年、若い年代を示した。変成度の低い普通コンドライトでこのように若い年代を示した例はこれまでに報告されていない。これは水質変成により起こったと思われるハロゲンの移動・濃集が隕石母天体上で起きたことを示すものであり、母天体上に水が存在していた期間について新たな制約を加えることができた。

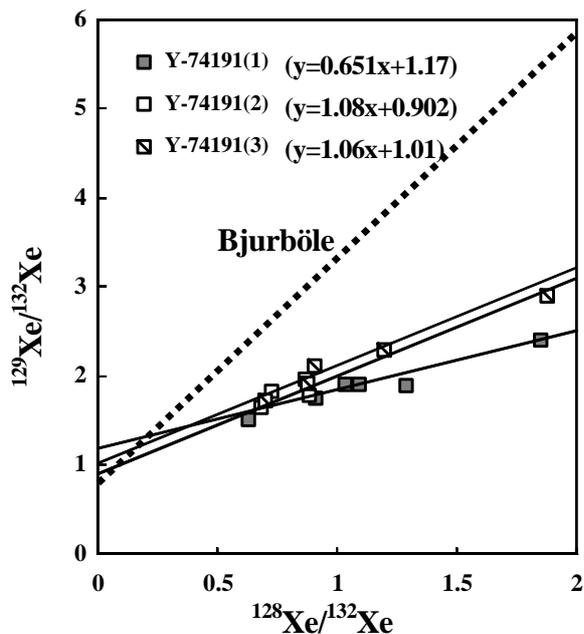


図 6. Y-74191 (>1200°C)