

---

## 希ガス同位体からみた地球環境

—太陽系の一員としてその起源から現在まで—

Noble-gas isotopes as a clue to the earth's past and present

代表研究者 金沢大学理学部教授 坂本 浩  
Prof., Faculty of Science, Kanazawa Univ. Koh SAKAMOTO  
協同研究者 金沢大学理学部教授 阪上正信  
Prof., Faculty of Science, Kanazawa Univ. Masanobu SAKANOUÉ  
金沢大学理学部講師 中西 孝  
Lecturer, Faculty of Science, Kanazawa Univ. Takashi NAKANISHI

1. Significances and current activities of elemental and isotopic study on noble gases in terrestrial and extraterrestrial materials are first reviewed. Recent extensive studies for noble gas abundances in our living environments and the searches for their implications are stressed.

2. Most aspects of our research developments including instrumentation and the related accelerator and analytical studies are referred to the 1978-1981 annual progress reports of the Nissan Science Foundation and the references quoted there- and here-in, and the emphasis here is placed on a few latest results as follows.

3. The origin of metals of Kuroko (black ore) is discussed for hydrothermal extraction from the base ores erupted before the Kuroko deposition, based on the studies of distribution of major and minor chemical elements among the associated dacite and basalt samples and of their partitions between phenocrysts and groundmass. Some details of the experimental results are described. This study is a by-product of the present project concerning cosmic-ray effects on the earth surface in progress, i.e.,  $^{130-138}\text{Ba}$  ( $\mu^-$ , xpyn)  $^{124-136}\text{Xe}$  in barite, one of the associated ores with Kuroko.

4. Studies on the isotopic structure of xenon of the solar system materials performed in the preceding years have been extended further. A large variation of p-Xe ( $^{124}\text{Xe}/^{126}\text{Xe}$ ) was tried to relate with those of s-Xe ( $^{128}\text{Xe}/^{130}\text{Xe}$ ), s+r-Xe ( $^{131}\text{Xe}/^{132}\text{Xe}$ ) and r-Xe ( $^{134}\text{Xe}/^{136}\text{Xe}$ ), as mixing correlations could be expected from explosion of a massive star of Heymann and Dziczkaniec (1980). The interpretation of the variation as due to nucleogenetic heterogeneity in the star at Si-burning stage seems to be partly correct, in contrast with a conclusion reached last year. If this is the case, the carrier phase(s) of anomalous noble gases would be high-temperature mineral(s) or be those with no appreciable thermal damage. The survival of the nucleogenetic component in carbonaceous chondrites and in the earth mantle would suggest that one can construct a noble gas-based scenario of the whole history of chemical elements and our planet earth. However, more refined quantitative treatments of the theory and experiments are necessary before a firm conclusion.

---

### 研究目的

本研究は、(1) 地球の表面から深部にわたる各所の希ガス同位体の存在度パターンを測定して、その起源と変動を隕石・月のそれとの関連におい

て探検し、(2) それを介して太陽系の一員としての地球の起源と歴史の情報を得ること、並びに(3) 人間の生活圏に關与する大陸・大洋下の地殻・マントルおよび大気間の物質循環・移動分布

について、希ガスというレスポンスの早い検出物質の有効性を検討することを目的とした。このために、(I) 高感度希ガス用質量分析計を準備し、(II) 地球の入手し得る多様な年代・地域の試料を収集し、構成鉱物に分離するなどの処理後、含有希ガスを高真空中で加熱抽出して元素別に同位体測定を行ない、結果の対比のために、(III) 各種の隕石について同様の処理・測定を行ない、また、(IV) それらの理解に必要な希ガス生成反応の加速器・原子炉を用いる研究を計画した。

### 研究の経過・成果

希ガスは希有で化学的に不活性な、ほぼ気圏にのみ存在する地球化学的には興味の薄い無害・無益の元素とみなされてきた。確かに、たとえば、地球全体としては太陽系元素組成と比べて  $10^{-7}$  (Xe) へ  $10^{-11}$  (Ne) も少なく、そのほとんどは大気中にある。この大気（および海）がいつ、どのようにできたか、また、その組成は生成以来一定であったか、変化しつつあるか、は希ガス研究の大きな課題であるが、他方、固体部分にもさらにわずかとはいえ、ガス成分が存在している。He, Ne, Ar, Kr, Xe, Rn (放射性) の順に不活性度はわずかずつ小さくなり、固体への吸着溶存度はこの順に大きくなる。加えて、質量依存の分別度に違いがあり、元素分別の差が大きくなる。地球や隕石、他の惑星あるいはそれらの各部分の相互を比較すると、それぞれの起源や地質時代を通じての物質分化・分別を反映した特徴ある元素存在度が示される。さらに、He 2 個、Ne 3 個、Ar 3 個、Kr 6 個、Xe 9 個の同位体のそれぞれの相対的变化は各天体固有のパターンを示し、これに核変換の効果を加えて、後述のように全く新しい宇宙・地球の局面を伝える。固体の固化時に取り込まれる量が極度に少ないので、後から付加される分がそれだけ判別しやすいわけである。軽質量の同位体である  $^3\text{He}$ ,  $^{21}\text{Ne}$ ,  $^{38}\text{Ar}$ ,  $^{78-82}\text{Kr}$ , および  $^{124-132}\text{Xe}$  は宇宙線核反応の効果が大きく、重質量側に属する  $^4\text{He}$  は U, Th の壊変系列からの  $\alpha$  粒子として生じ、 $^{40}\text{Ar}$  は  $^{40}\text{K}$  の、 $^{129}\text{Xe}$  は  $^{129}\text{I}$  の各  $\beta^-$  壊変で、また、 $^{83-86}\text{Kr}$  や  $^{129, 131-136}\text{Xe}$  は U や Pu の核分裂で生成する。熱的に不安定で動

きやすいから混合均一化が起こりやすい一方で、同位体的にも質量依存の分別効果が現れやすい。これまでの研究から、固体岩石試料中の希ガスは  $800\sim 1200^\circ\text{C}$ 、ときに  $2000^\circ\text{C}$  まで加熱して初めて放出されるほど強固に捕捉されている成分があり、これは元素存在度、同位体存在度の両面で他の温度成分とは異なっていることが多い。岩石の固化時期、生成環境、その後の歴史、並びに組成鉱物の性質によって決定づけられていると考えられる。しかし、この高温成分を捕捉している鉱物相あるいは相内での結晶学的な場所については不明である。つまり、固体内では希ガスは元素・同位体的に極めて不均一に分布していて、同位体的にも地球や月・隕石、その他の惑星系の個々別に、あるいは隕石のタイプ別、地殻・マントルなど、およびこれらを作る代表的岩石種などの構成要素別にみる研究に加えて、それぞれを作る鉱物のミクロの分布状態を知る必要が生じてきた。

ところで、本研究計画の当初のころまでは、日本国内では希ガス用質量分析計が少ない (Xe 同位体まで測定できる機種は 1 台) こともあり、諸外国でも地球物質中の希ガスの研究は、元素分別ないし軽希ガス (He, Ar) の同位体分析がいくつかのグループによって行なわれていた程度であった。その後、国内では本研究グループを含めて 3 台増え、特に地球物質中の重希ガスを含む同位体研究が国内をはじめ、世界的に急激に盛んとなってきた。中でも軽希ガス ( $^3\text{He}/^4\text{He}$ ,  $^{21-20}\text{Ne}/^{22}\text{Ne}$ ,  $^{40}\text{Ar}/^{36}\text{Ar}$ ) についてのデータ蓄積が非常に盛んで、Tolstikhin ら (Geol. Inst., Kola Dept. USSR Acad. Sci.) の天然ガス、温泉ガス、大陸各地の熔岩類の研究、長尾と緒方 (岡山理大) や特に地震予知を踏まえた脇田ら (東大理) の日本列島火山フロントに沿った各地および御岳周辺の噴気の研究、Kirsten ら (Max Planck Inst., Heidelberg) と Storzer (Nat. d'Histoire Naturelle, Pars), Hart, Dymond, Hogan ら (Oregon State U.), Fisher ら (Florida Sate U.), 兼岡 (東大理) と高岡 (山形大理), Manuel ら (U. Mo., Rolla), Podosek ら (U. Mo., St. Louis), Basu と Alexander ら (U. Minn.)

の太平洋, 大西洋の海嶺起源玄武岩や米・アフリカ大陸の玄武岩中捕獲岩などマントル由来物質の研究, Lupton と Craig (U. Calif., San Diego) の東太平洋海膨や多くの沈・環太平洋の海嶺・沈み込み帯での噴出岩と近傍深海水の研究, Reynolds ら (U. Calif., Berkeley) や Torgerson (Australian Natl. U.) と Jenkins (Woods Hole Oceanographic Inst., Mass.) の Yellowstone, Iceland, Hawaii, Geysers その他の地熱帯の研究, Ne 異常を重点とした Zadnik (Murdock U., W. Australia) と Jeffery (U. Western Australia) の海嶺玄武岩のガラス・カンラン岩その他の研究, Ar 重点の Hayatsu (U. Western Ontario) の北米の各種岩脈や迸入岩, 玄武岩・安山岩の研究, 斎藤 (山形大理) の玄武岩構成鉱物中の希ガス分配の研究, Turner (Sheffield U., U. K.) の広い年代・地域にわたる珪岩の研究, 火星・金星の希ガスデータを地球・隕石などと比較して起源論を行なっている Marti (U. Calif., San Diego) や McElroy と Prather (Harvard U.) の研究, 等々である。得られつつある知見は,  $^3\text{He}/^4\text{He}$ ,  $^{40}\text{Ar}/^{36}\text{Ar}$  の大きい変動および He~Xe にわたる元素存在度の変化を指標とした大気の原因と変化 (地球の脱ガス), 地球深部での始源ガスの残存, および大気 ↔ 海 ↔ 地殻 ↔ マントルの物質循環である。特に南アフリカ産ダイヤモンド中の高  $^3\text{He}/^4\text{He}$  の小嶋ら (東大理) の発見は, マントル起源 He の始源太陽風との同一性の証明とそれを保持するマントルの構造, さらに地球全体の進化について興味深い示唆を与えている。これらは正に本研究が当初目的としてきた内容であるが, 世界の希ガス研究の大勢が地球試料に目を向けてきた中で, これと対比すべき隕石データの深化がやや低調に見える。特に, 炭素質隕石中の希ガス (特に Xe) は, 後述のように太陽系形成過程を超えて, 太陽系構成元素の起源 (星内核過程) まで遡行できる曙が見えてきた。他の元素の同位体研究と合わせて太陽系物質の生成から我々の惑星系の形成と進化を理解し, 現在から将来にかけての地球環境全体の変化を予測することが, この研究の最終目標

であるものの, 全体として記載・分類学的段階にあって, まだ緒についたところと言える。他方, 上述のような天然物質の研究の深化と平行して, 小嶋らが既に開始した各種岩石鉱物間の希ガス分配などのモデル実験や, 本研究で詳しい検討を行ってきた加速器などによる核反応研究がいっそう重要となってきた。

以下では, これまで詳しく触れられなかった二, 三に力点を置いて述べることにする。

### 1. 希ガス用質量分析計について

天然および加速器などで作られる極微量希ガスの元素存在度・同位体存在度を測定できる装置として, まず, 希ガス用高感度質量分析計 (米国 Nuclide 社, 6-60-SGA=6"-60° Static Gas Analyser) の本体部を購入し, 粗引ポンプ, 記録計部, その他の付属装置を国内で購入ないし自作で調達して基本部分を組み立てた。その概要と性能については, 54, 55 年度事業報告書 (各 p. 132 および p. 118) で述べた。さらに 55 年度開始の文部省科学研究費特定研究「太陽系の進化と惑星環境」の一環として, 本分析計とオンラインで自動測定とデータ処理を行なうミニコンピュータ (Sord Mark III, Z-80 CPU 64 KB) と入出力インターフェイスが付け加えられた (55 年度事業報告書 p. 118)。次いで, 56 年度文部省科学研究費一般研究により, 全ステンレス製の希ガス抽出炉 (タンタル抵抗炉; 2200°C まで可変) と精製系, およびターボ分子ポンプ他の強力排気装置を追加できた。これらを一体とした全システムの性能はデータを取りつつ現在, テスト運転中であるが, ほぼ完成した装置となった。他方, 高周波誘導による加熱装置を備えた全パイレックスガラス製抽出・精製系は, 本助成により増力され, off-line 装置として順調に稼働してきた。

### 2. 研究対象試料とその結果

地球岩石では, ①マントル物質湧出点としてのハワイ (Kilauea, Kauai) の玄武岩, ②太平洋プレートの沈み込み火山フロントに位置する秋田駒ヶ岳噴出熔岩, ③島弧・大陸縁に特徴的な安山岩 (浅間山, 桜島), ④縁海側噴出物として地質・鉱床学的に興味深い秋田北鹿地域の黒鉱とバライト

や玄武岩などの随伴岩類, ⑤黒鉱随伴パライトとの対比のための北米・南アフリカ, オーストラリア産の古いパライト, ⑥出生の不思議な Josephinite, などであり, 地球外物質では, 炭素質コンドライトである Allende (C3V) 隕石と Murchison (CM2) 隕石が主な試料である。いずれも, 造岩鉱物相を分離・濃縮し, 主要・微量元素, 特に希土類元素組成の分析に供する方法をまずとった。希ガス分析は未完であるが, それぞれ興味深い知見を得つつある。それぞれの試料のもつ意味と実験的研究の経過・結果については, これまでの 54~56 年度事業報告書でふれてきた。これらのうちで, 希ガスとは直接関係ないが一つの by-product として得た結果——黒鉱随伴岩の黒鉱生成前 (pre-ore) と生成後 (post-ore) での元素分布の違いと黒鉱の起源について——を, 次に若干詳しくふれる。

### 3. 黒鉱随伴岩における元素分布

54 年度報告において, 黒鉱随伴岩中の石英安山岩 dacite とパライトの結果にふれて, 黒鉱の起源についての問題点を提起した。黒鉱は, 約 1000 万年前, 日本海が閉じた形で, かつ, 開く時期に生じた火成作用に伴う海底温泉沈殿物と考えられ (Fig. 1.), 類似の現象が現在でも各地に見られる。しかし, 黒鉱を作った金属 (Fe, Cu, Pb, Zn など) については海水起源, 基盤岩起源など一定しない (たとえば, 海洋科学, 14 (4) 1982 の黒鉱鉱床特集)。我々はその後, 他の dacite および玄武岩質安山岩 (basalt と呼ぶ) の一つの pre-ore と二つの post-ore を加え, 全岩と各々の重液分画試料について放射化分析を主体とする元素分析を行なった。各岩石の新鮮表面試料を粉碎後, 200~300 mesh 分を取り (mesh size による変動は別途に検討済), 細分画重液法で  $2.4\sim 3.5\text{ g/cm}^3$  にわたる 20 程度の比重分画をとった (Fig. 2a, b)。dacite では pre, post で顕著な差はなかったが, basalt post-ore (#15) は  $2.65\sim 2.9\text{ g/cm}^3$ , 同 (#16) は  $2.5\sim 2.7\text{ g/cm}^3$  に単一の大ピークを持ち, Fig. 2b に示した同 pre-ore (#17) の二つの山にそれぞれ対応した。顕微鏡下では, いずれも変質が激し



Fig. 1. 中新世中期の日本列島付近と古地理と黒鉄鉱床の分布 (佐藤社郎: 科学, 48(3), 157 (1978) より)

く, 斑晶としては, dacite では sanidine, basalt では斜長石がそれぞれわずかに認められ, 石英は変質鉱物が多かった。分析は, 放射化法で La~Lu の 14 元素と Na, K, Rb, Cs, Ca, Sr, Ba, Co, Fe, Mn, Cr, Ta, Th の全部またはほとんどを定量したが, 比較標準の岩石試料 (JB-1, JG-1, JA-1, JB-2, G-1, W-1, GSP-1 および JB-1 または JG-1 と GSP-1 との混合試料 6 種で相互の比較検討を行ない, 文献値の評価を行なっているが) は齟齬があって信頼性の度合が異なる。

希土類元素 (REE) の分布は, Reedy 隕石の値で基準化してみる—Masuda—Coryell plot—と, barite では軽→重 REE に直線的に急減 ( $\text{La}/\text{Yb}\approx 10^2$ ) し, Eu が正異常 ( $\text{Eu}^{3+}\rightarrow\text{Eu}^{2+}$  への還元による  $\text{Eu}^{2+}$  の  $\text{Ba}^{2+}$  サイトへの置換) を示した。これは, 熱水起源および海成の barite のパターンとは異なり, むしろ陸成型に近いが, モデルパターンは十分確立したものとはいえない。dacite の REE パターンは pre-, post- とともに  $\text{La}/\text{Yb}\approx 7\sim 8$  の漸減型, basalt のそれは対 Reedy 比 10 で  $\text{La}/\text{Yb}\approx 1$  の水平型を示し, いずれにも

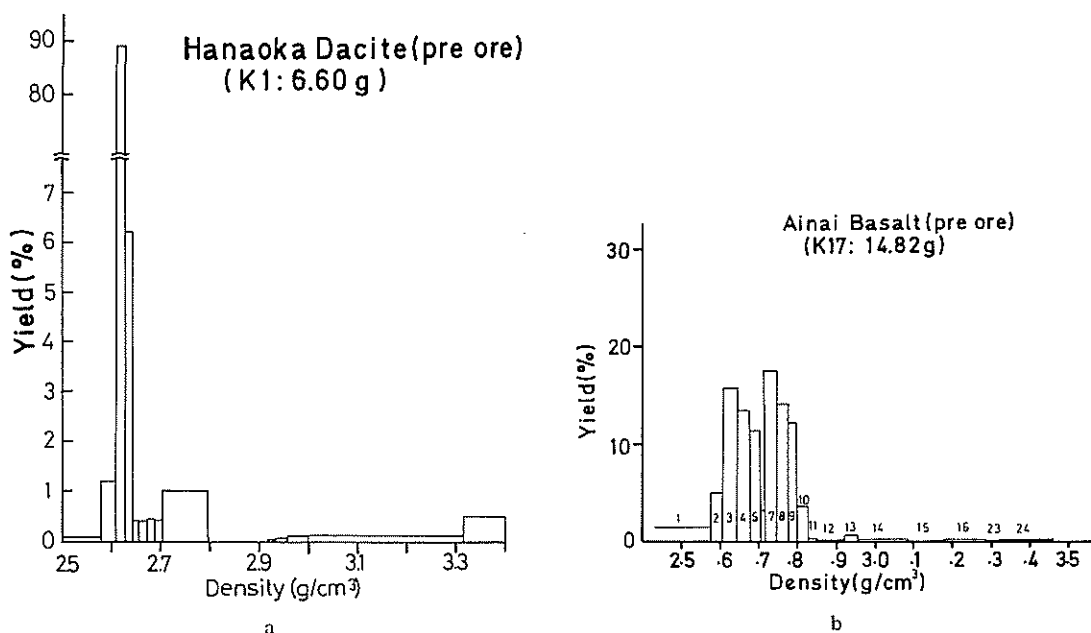


Fig. 2. 秋田北鹿地域黒鉱随伴基盤岩の細分画重液法で分画した密度分布分離取率は ca. 90%. 図中, 斑晶および石基の組成は薄片観察(金沢大・理・地学 佐藤博明博士)による。

- a. 花岡鉱床から採取の石英安山岩 (pre-ore) の例  
 Phenocryst (ca. 5%)  
 sanidine (mostly carbonate [(Ca, Fe)CO<sub>3</sub>])  
 Groundmass (ca. 97%)  
 quartz, alkali feldspar,  
 hydroiron oxide, carbonate,  
 chlorite, mica or kaoline (2~3%) } altered (~10%)
- b. 相内鉱床から採取の玄武岩質安山岩の例  
 Phenocryst  
 plagioclase (<1%; 0.1~0.6 mm idiomorphic)  
 partly altered to quartz and iron oxide  
 Groundmass  
 plagioclase (ca. 40% lath, but some skeletal),  
 opaque minerals (1%), chlorite and others (40%),  
 pores filled with chalcedony and brown isotropic  
 materials (15~20%)

Eu 正異常を示すものがある。分析された各元素の post/pre 比をとりイオン半径に対して plot した例が Fig. 3a (dacite, 54 年度報告書) と b (basalt) である。Fig. 3a の例は, post/pre= (小坂坑外 #6/花岡坑内 #1) であるが, 他に, post/pre= (小坂坑外 #14/小坂坑外 #7), = (小坂坑外 #14/深沢坑内 #3) の組合せも同様の形である。Fig. 3b の例は, post/pre= (深沢坑内 #15/相内坑外 #17) で, (相内坑内 #16/相内坑外 #17)

も類似である。Fig. 3a では半径 $\sim 0.8 \text{ \AA}$  の 2, 3 価イオンおよび  $1.4 \sim 1.5 \text{ \AA}$  の 1 価イオンにピークがあるが, Fig. 3b では  $0.8 \text{ \AA}$  より  $1 \text{ \AA}$  のピークが顕著で, 1 価の  $1.5 \text{ \AA}$  のピークがない。ピークの意味は post-ore への相対的濃集または pre-ore からの脱落である。Eu<sup>2+</sup> の存在が示す還元環境を考えれば, Cu<sup>+</sup>, Fe<sup>2+</sup>, Pb<sup>2+</sup>, Zn<sup>2+</sup> の存在は当然である。それぞれのイオン半径は 0.46, 1.04, 0.94~1.5, 0.75~0.90 であり, pre-ore

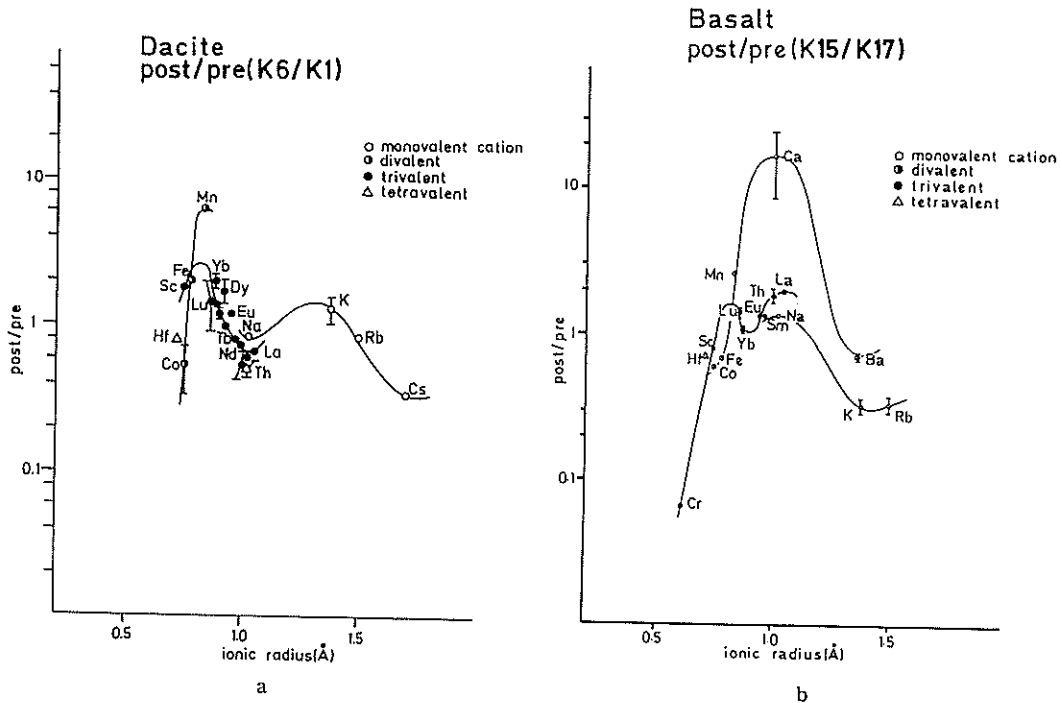


Fig. 3. 黒鉱晶出の前 (pre) と後 (post) に噴出の随伴岩全岩試料の元素濃度比のイオン半径に対する変化曲線はイオン価別に実験値を結んだもの  
 a. 石英安山岩; 小坂坑外 #6(post)/花岡坑内 #1 (pre) の例  
 b. 玄武岩質安山岩; 深沢坑内 #15 (post)/相内坑外 #17 (pre) の例  
 他の例については本文参照

基盤岩からの脱落と符号する。

この脱落が、pre-ore の噴出後に熱水抽出で行なわれたか、あるいはマグマ状態にある時に起こったかを見るには、火山岩の斑晶-石基における元素分配 (Partition Coefficient, PC) をみればよい。化学組成が同じマグマで晶出した斑晶は、鉱物結晶に特有の大きさの分配パターンを示すはずであるし、黒鉱生成に際してマグマに大規模に組成変化があったとすれば、その前と後で噴出した火山岩での分配パターンは、Fe, Cu, Pb, Zn などのところに差異が生じるであろう。前述のごとく、我々の試料は変質が激しくて斑晶分離がむずかしい。Fig. 2 の比重分画分のピーク部は主として石基からなると思われるが、ここでは各分画分対全岩の比をとって PC とし、イオン半径 (IR) に対する変化をみることにした。Fig. 4a, b は、それぞれ dacite と basalt について、pre-ore

(下半分) と post-ore (上半分) の同一比重分を比較した。この例では、pre-ore と post-ore の間では問題の元素にはほとんど差がないと見てよからう。pre-, post-ore の他の比重分では、この例のごとくほぼ同じパターンを示す場合があるが、すべてとはいえない。風化変質に対する耐性の差であろう。比重分画分の鉱物同定がむずかしいが、たとえば、Fig. 4b は斜長石-石基の PC-IR 図に類似しており、比重値と矛盾しない。風化変質の激しさを考えると、pre, post とともに同形のこのような PC-IR を保存している点は興味深い。

#### 4. 希ガス (Xe, Kr) 近傍核種を生成する核反応の研究

先に述べたように、希ガス同位体には宇宙線誘起核反応で作られる成分の付加がよく見える。反応生成率および同位体の生成比は、宇宙線のエネルギー・強度および物体の化学組成・大きさ (表

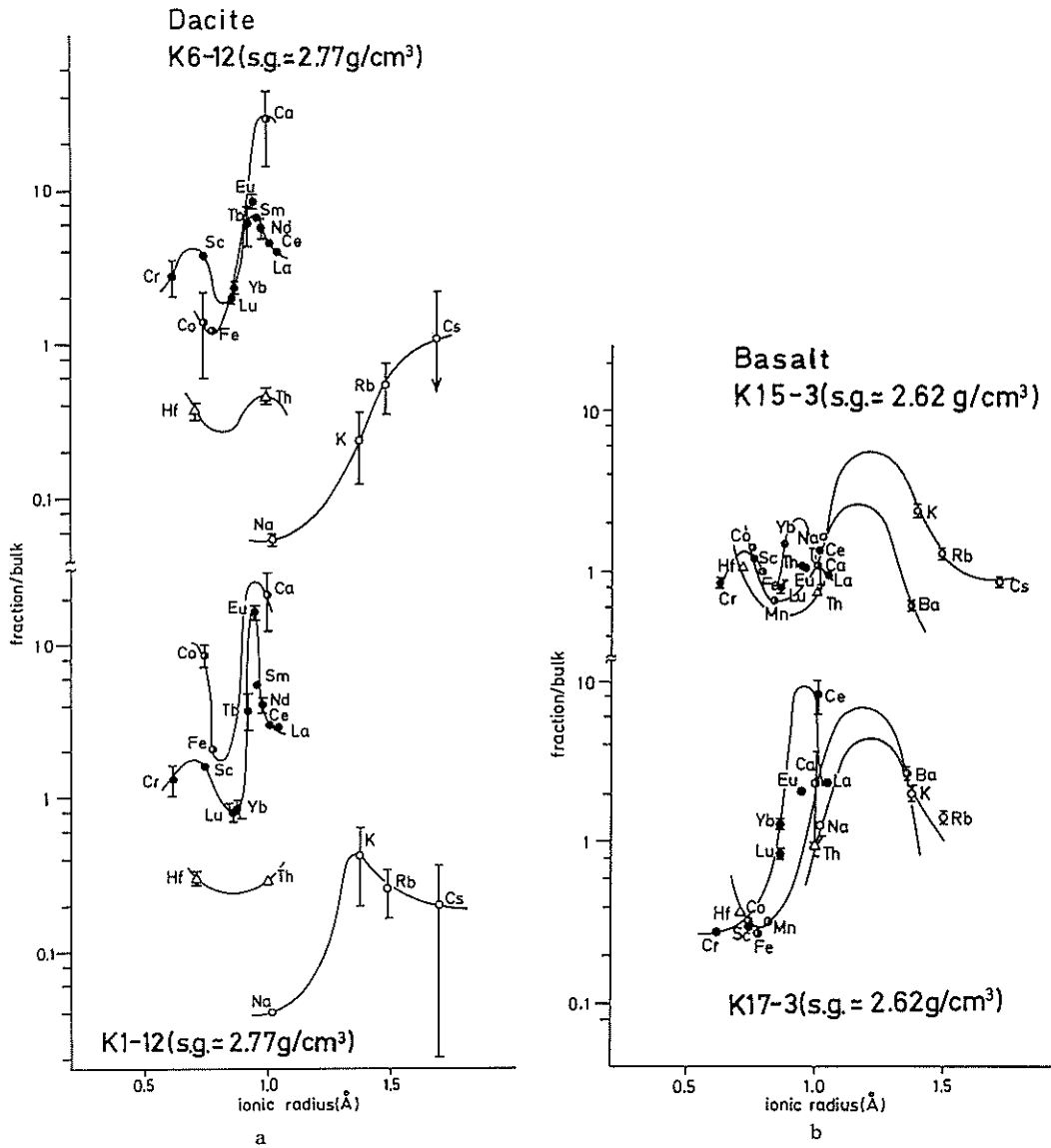


Fig. 4. 比重分画分 (斑晶) 対全岩 (ほぼ石基) の元素分配 (PC-IR 図)  
 マグマが高温であったとき、液相 (石基) と平衡に共存する固相 (斑晶) へ取り込まれるイオンは斑晶鉱物に特有の大きさをもつ。ピークの位置はその鉱物は最も好ましいイオン半径に対応し、ピークの高さは融体の化学組成の反映とみなせる。ここでは、風化変質が激しくて斑晶単離が困難で、比重分画分を斑晶、全岩 (石基相当分画分—Fig. 2 のピーク部—とは差はない) を石基とみなした。

a. 石英安山岩; 比重  $2.77 \text{ g/cm}^3$  分

b. 玄武岩質安山岩; 比重  $2.62 \text{ g/cm}^3$

各上半分は post-ore, 下半分は pre-ore を示す。

面からの深さ)、照射継続時間などによって異なる。後述のように、星内元素合成反応でも同様で、星内の温度(エネルギー)や組成などで同位体パターンが決まる。他方、天然の各所、各部からの試料の同位体組成から宇宙線生成成分を抽出して、宇宙線自体あるいは試料の生成条件や履歴の情報を得ることができる。そのためには、加速器を使って、既知エネルギー、既知組成の組合せで核反応の特徴を知っておく必要がある。

このようなことから、本研究では加速器・原子炉を使った希ガス生成反応の実験を一つの柱とし、これまで、①高エネルギー研究所の $\pi^-$ 中間子、②東北大電子線ライナックからの制動放射線、③東大核研の陽子、を使って特に Xe と Kr 領域核の生成率とその特徴を調べてきた。実験結果の概要は、特に 56 年度の報告に詳しく述べた。質量分析計による安定同位体の測定が遅れているが、これらの結果は、特に次に述べる太陽系物質の起源の追跡に有用な知見となっている。今後とも、さらに粒子種・エネルギーを変えての実験を続けて、他の希ガス生成反応も併せてより確かな系統的な知見を得てゆかなければならない。

#### 5. 希ガスから見た太陽系物質の起源

我々が手にして分析できる天然物質は、現在、地球の表層物質(および地球内部よりの噴出物)、月面物質、各種の隕石および宇宙塵である。最近の米ソによる惑星探査船がもたらした金星、火星表面の希ガスを含む分析値や木星、土星およびそれらの衛星の近接観測データは、我々の惑星環境理解に貴重な知識を加えたものの、手にとって詳しい研究ができるまでにはまだ時日を要する。

本研究では、地球物質と隕石の Xe 同位体を主な対象にして新しいデータを加えつつ、特に新しい視点から全データを解析してきた。先に述べたように、天然希ガスの同位体存在度はそれを含む物質の生成環境から取り込んだ捕獲成分(Trapped, T)、同時に取り込んだ放射性核種の壊変生成成分(Radiogenic, R)、宇宙線の照射で作られる宇宙線生成成分(Cosmogenic, C)の寄与によって決定される。捕獲成分自体は、捕獲される以前の、星内元素合成、恒星あるいは惑星としての

集積過程、惑星となってからの特に熱的歴史とそこで物質分別過程によって影響を受けている。放射性壊変は時間の関数であり、宇宙照射の効果は、宇宙線源の問題(宇宙線強度とその時間的变化)およびそれを受ける物体の大きさ(表面からの深さ;宇宙線種とエネルギー)やその時代的安全性(ターゲットの条件)に依存する。

我々は、9 個ある Xe 同位体のうち、最も単純な成分系(T+C)と考えられる $^{124}\text{Xe}$ 、 $^{126}\text{Xe}$ 、 $^{130}\text{Xe}$ の存在比をパラメータとして、他の同位体を詳しく調べてきた(55 年度事業報告書)。これらの同位体は存在度が最も低いために測定誤差が大きい欠点があるが、これを補って余りある有意の知見が得られている。まず、鉱物学的にみて変成度の大きい普通コンドライトとエイコンドライト、および地球試料の多くと月試料では、確かに T と C の 2 成分相関があり、それぞれ固有の T 成分に宇宙線効果( $^{124}\text{Xe}/^{126}\text{Xe}$ )<sub>0</sub>= $0.6\pm 0.1$ を付加した形となっている(55 年度報告の Fig. 5)。C 成分のこの値は、Xe より重い元素(Cs, Ba, La など)に加速器からの高エネルギー粒子を照射したときの生成比と一致する。また、T 成分は隕石では AVCC(炭素質コンドライトの全岩の平均)と、地球試料では大気 Xe と、月面試料では太陽風とそれぞれ一致し、互に質量依存の分別過程で関連づけられる。つまり、全体としては均質で共通な原始太陽系星雲からそれぞれ分化したものである。しかし、炭素質隕石(最も変成度が少なく、元素組成からみて太陽系物質の代表的材料; Carbonaceous Chondrites, C. C.)の分離鉱物や段階加熱の温度フラクションでは全く様子が異なる(55 年度報告の Fig. 5 および 6)。つまり、多くのデータは AVCC を中心に集るが、上記の三つの T 成分を結ぶ分別曲線に沿う値および( $^{124}\text{Xe}/^{126}\text{Xe}$ )<sub>T</sub>= $1.1\sim 1.2$ よりはるかに大きい値を持つ( $^{124}\text{Xe}/^{126}\text{Xe}$ )<sub>m</sub>が存在することである(m は測定値)。また、興味深いのは地球試料や他の隕石試料の一部、特に低温で加熱放出される Xe にも同様のデータが存在することである。

これに対する説明として、『“宇宙存在度”と考えられる始源的成分が分別過程と宇宙線照射によ



H - and He - shells	IV c	↑ {To surface of star}	
C - shell (n - capture dominated)	IV b	$^{134}\text{Xe} + ^{136}\text{Xe}$ {small neutron dose}	2.2
	IV a	H - Xe (CCF - Xe) monoisotopic $^{131}\text{Xe}$ ?	
Ne - shell (photoerosion n - capture)	III b	$^{134}\text{Xe} (+ ^{136}\text{Xe})$ holdup at $^{134}\text{Xe}$	2.5
	III a	$^{128}\text{Xe}$ - rich	
O - shell (photoerosion dominated)	II b	$^{124}\text{Xe}$ , $^{126}\text{Xe}$ -rich and high $^{124}\text{Xe}/^{126}\text{Xe}$ with no $^{131}\text{Xe}$	2.7
	II a	Monoisotopic $^{124}\text{Xe}$	
Si - shell Fe - core	I	No Xe {Center of star}	
Chemical shells	zone	Xe distribution	temp. ( $10^9$ °K)

Fig. 5. Si 燃焼段階における 20-25 太陽質量の星の構造の模式図

温度(右端)と密度によって決まる支配的核反応(左端カッコ内)で種核(s-過程核)から作られるXe同位体の特徴はI~IVcのzoneに區別けした(HeymannとDziczkaniec; Proc. Lunar Planet. Sci. Conf., 11th p. 1179 (1980)より筆者改編)。

って多様な同位体比を生み、そのまま隕石集塊体となり、熱変成の少ないC.C.ではかなりの部分が現在まで生き残ったが、熱変成の度合に応じて多くは均質化して固有の捕獲成分を示すようになった』ことを提案した。 $(^{124}\text{Xe}/^{120}\text{Xe})_m > 1.1 \sim 1.2$ については前節で述べたような研究結果からみて、通常の条件の宇宙線核反応では作れない。したがって、始源成分が $(^{124}\text{Xe}/^{120}\text{Xe})_T > 1.1 \sim 1.2$ のある大きい値をもっていたと仮定せざるを得ないからである。また、地球深部からの試料では、大気形成の突発的で大規模の脱ガス後でも未

変成的始源ガスが残存すること、宇宙線(貫通力の強い $\nu \rightarrow \mu$ ?)の効果が蓄積していることを示した。前者は、先に述べたマントル起源物質の軽希ガスのデータや消滅核種起源のXeデータと調和している。他方、多くの地下深部試料のデータが大気組成を示すことは、大気がプレートの動きとともにマントル(多分、上部の)まで循環していることを意味しよう。

ところで、太陽系(隕石、地球など)の形成前に始源成分に与えた分別過程と宇宙線核反応の具体的に定量的な場所と時を特定する必要があるが、容易でない。56年度事業報告書では、京大グループが10年余にわたって構築してきた太陽系形成理論と照合してもその説明がむずかしいことを述べた。ところで、ごく最近、Heymannら(Rice U., Houston)は、太陽質量の20~25倍の星のSi燃焼段階での各層におけるXe同位体の分布を求め、炭素質隕石での同位体異常を星内分布が化石化したものとして説明できることを主張し始めた。Fig. 5は、彼らによるXe同位体の生成分布の特徴に従って内層から外層にかけてI~IVcのゾーンに分けたもので、右側にピーク温度、左側に核融合反応の進化を示すおよその化学層を示した。各ゾーンと化学層の一致はおよそのものであり、また、ゾーンの大きさは実際の質量分布を示すものではなくて、左側にかっこで示した核反応の結果から生じるXe同位体の特徴のみで區別してある。つまり、Iの内核部は高温過ぎてFeより重い元素は存在しがたい。IIa~IIIaでは既に存在するs-過程核(中性子吸収のゆっくりした過程で作られる)を種とした光核反応 $\gamma, xn$ 、 $(\gamma, \alpha)$ などで軽い同位体の生成、photoerosion、が優勢で、さらに外層部は高密度の中性子による速い吸収、(r-過程)が顕著になる。この分布は、仮定されたピーク温度と継続時間によってかなり動く。Fig. 5は、超新星として爆発直前の様子であり、爆発とともにさらに核変換が起こって同位体変化を生むが、爆発膨張に従う冷却により固体塵(多様な鉱物)の析出が起こって層ごとのガス成分を取り込み得る。この固体塵が再び集積して我々の太陽系の材料になり、ガス放出

を起こすほどの再加熱を免れた部分が炭素質隕石に残っていると考える。

データに戻ってみると、IIb 層で作られた軽 Xe と IIIb~IVb 層の重 Xe は相関しているから、各層の Xe を固定した塵は類似の熱的性質を持っており、かつ、塵の姿のままかなりよく混

合したと考えなければならない。我々は、再度  $(^{124}\text{Xe}/^{126}\text{Xe})_m$  比をパラメータとして、星内核合成として近縁（合成法類似）の同位体の組合せ、 $(^{134}\text{Xe}/^{136}\text{Xe})_m$  比、 $(^{131}\text{Xe}/^{132}\text{Xe})_m$  比、および  $(^{128}\text{Xe}/^{130}\text{Xe})_m$  比の変化——混合相関——を調べた (Fig. 6a, b, c)。核合成としては、 $^{134}\text{Xe}$  と  $^{136}\text{Xe}$

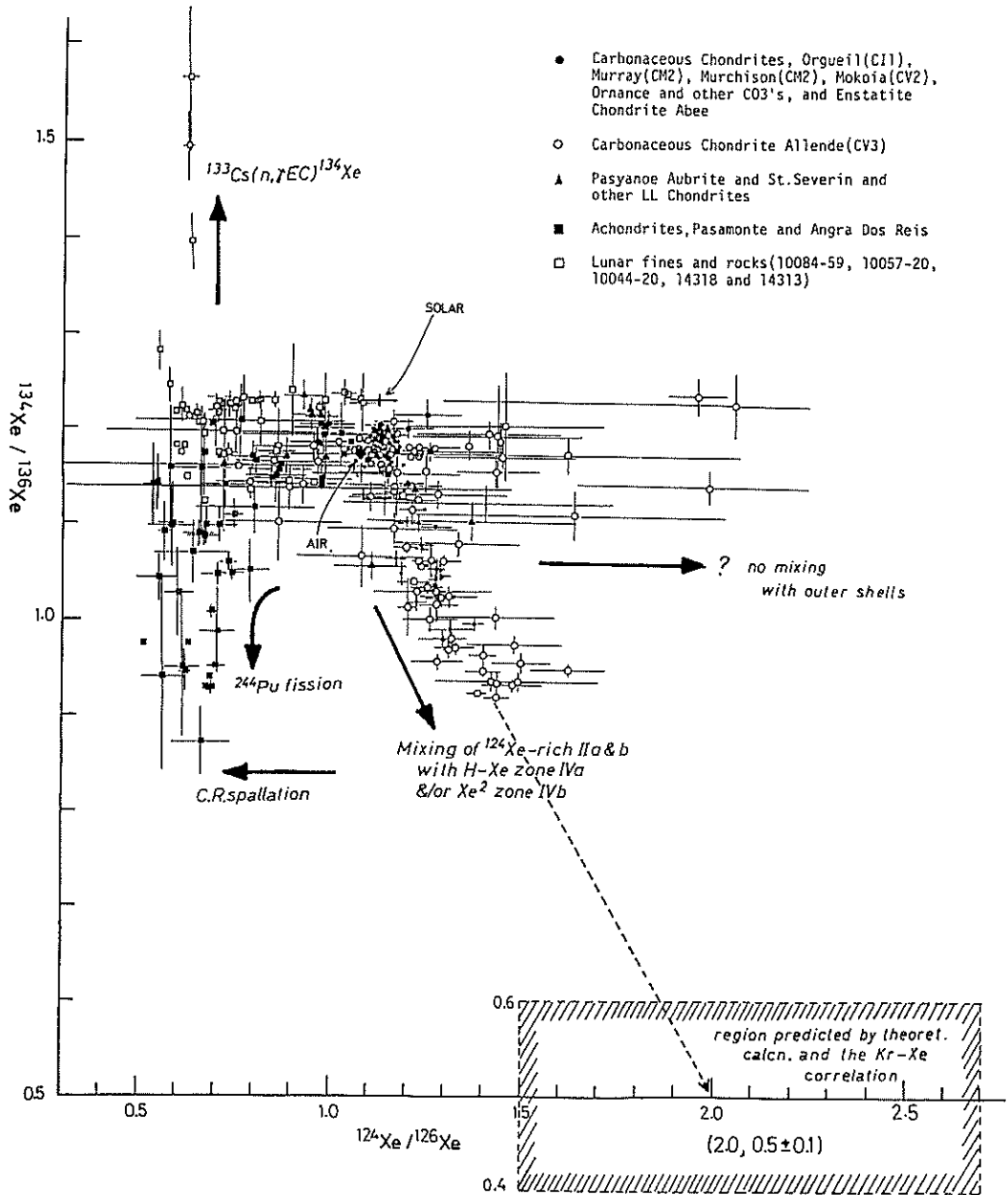


Fig. 6a

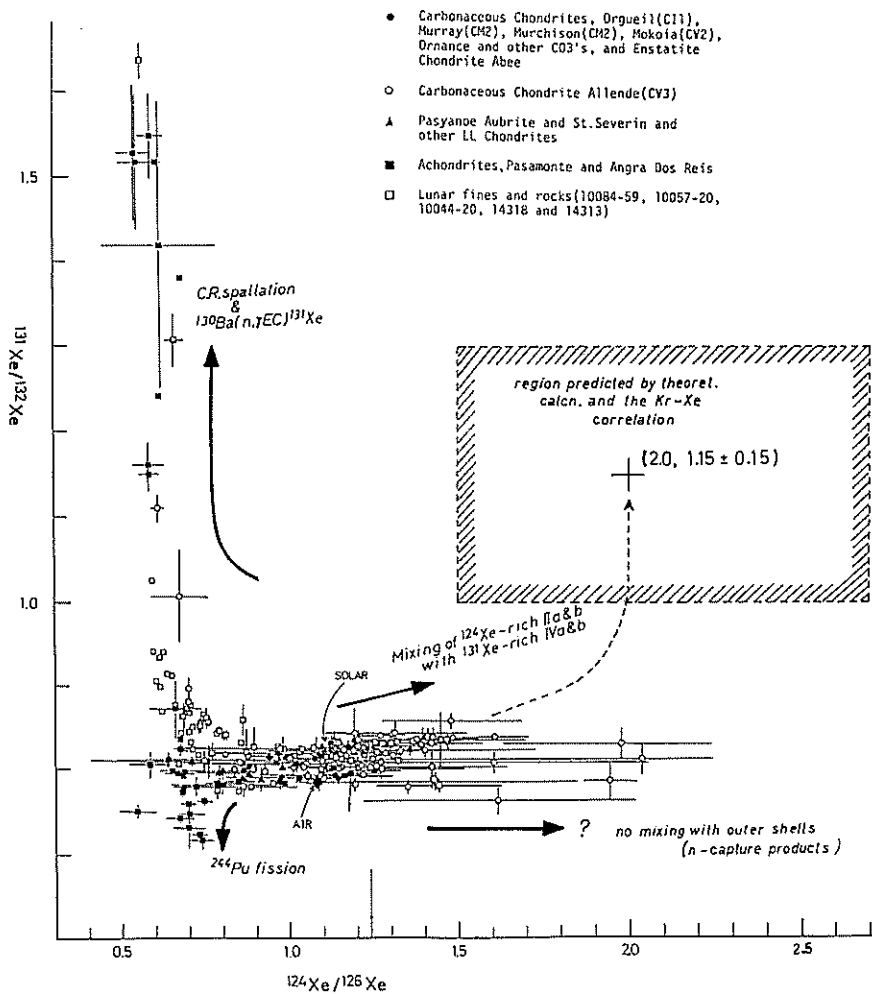


Fig. 6b

は r 過程核,  $^{128}\text{Xe}$  と  $^{130}\text{Xe}$  は s 過程核,  $^{131}\text{Xe}$  と  $^{132}\text{Xe}$  は ( $\gamma$ +s) 核, パラメータの  $^{124}\text{Xe}$  と  $^{126}\text{Xe}$  は p-過程 ( $\text{Xe}$  近傍元素の s 核の陽子または光子の核反応で作られる) 核である。地球大気 (Air) あるいは太陽系組成 (Solar) の  $(^{124}\text{Xe}/^{126}\text{Xe})_{\text{T}}=1.1\sim 1.2$  を境にして考えよう。 $(^{124}\text{Xe}/^{126}\text{Xe})_{\text{m}} < 1.1\sim 1.2$  の領域では、まず、 $(^{124}\text{Xe}/^{126}\text{Xe})_{\text{m}} > 0.5\sim 0.6$  の下限があり、この値の近くでは特に月およびエイコンドライトの  $(^{128}\text{Xe}/^{130}\text{Xe})_{\text{m}}$  と  $(^{131}\text{Xe}/^{132}\text{Xe})_{\text{m}}$  は急激に大きくなる (Fig. 6b, c の白角と黒角)。なお、図では省略したが  $(^{128}\text{Xe}/^{130}\text{Xe})_{\text{m}}$  と  $(^{131}\text{Xe}/^{132}\text{Xe})_{\text{m}}$  は、月試

料 10057-20 や 10044-20 ではそれぞれ 1.46~1.58, 4.58~3.53 の、Angra Dos Reis 隕石ではそれぞれ 2.55, 2.11 の値を示す。月の  $(^{131}\text{Xe}/^{132}\text{Xe})_{\text{m}}$  が  $(^{128}\text{Xe}/^{130}\text{Xe})_{\text{m}}$  の 2~3 倍になっているのは月表面での熱外中性子による  $^{130}\text{Ba} (n, \gamma) ^{131}\text{Ba} \xrightarrow{\text{EC}} ^{131}\text{Cs} \xrightarrow{\text{EC}} ^{131}\text{Xe}$  の生成率が特に大きいためである。ここでの月の  $(^{131}\text{Xe}/^{132}\text{Xe})_{\text{m}}$  の大きい値 (Fig. 6a の  $(^{124}\text{Xe}/^{126}\text{Xe})_{\text{m}}=0.6\pm 0.1$  での白角) は同様に  $^{133}\text{Cs} (n, \gamma) ^{134}\text{Cs} \xrightarrow{\text{EC}\beta^+} ^{134}\text{Xe}$  によるものであろう。これらの結果は、前述のごとく、いずれも C 成分の寄与として一括できる。他方、この領域では、特にエイコンドライトの

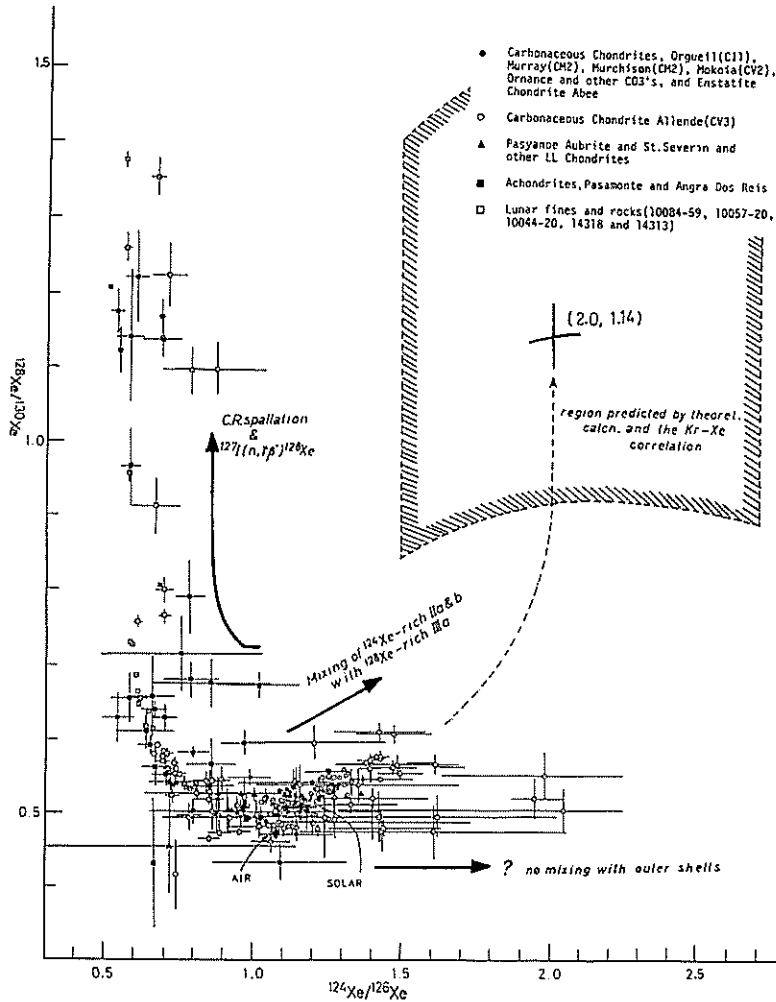


Fig. 6c

Fig. 6. 隕石・月の Xe 同位体比変動 (混合相関)

横軸は  $(^{124}\text{Xe}/^{126}\text{Xe})_m$ , 縦軸は a.  $(^{134}\text{Xe}/^{136}\text{Xe})_m$ , b.  $(^{131}\text{Xe}/^{132}\text{Xe})_m$ , c.  $(^{128}\text{Xe}/^{130}\text{Xe})_m$  で, 試料名は b. に記した。炭素質コンドライトのうち, Allende のみは別段 (白丸) で示した。地球試料については 55 年度報告を参照。太陽系物質の平均は AIR あるいは SOLAR で示した。近傍の値,  $(^{124}\text{Xe}/^{126}\text{Xe})_m \approx 1.1 \sim 1.2$ , をとる。この値からの変化のうち,  $(^{124}\text{Xe}/^{126}\text{Xe})_m < 1.1 \sim 1.2$  の領域は図示の太い矢印で示した付加成分で説明できる。 $(^{124}\text{Xe}/^{126}\text{Xe})_m \geq 1.1 \sim 1.2$  の領域での変化については本文参照。

$(^{134}\text{Xe}/^{136}\text{Xe})_m$  と  $(^{131}\text{Xe}/^{132}\text{Xe})_m$ —図中の黒角—が低い値を示すが,  $(^{128}\text{Xe}/^{130}\text{Xe})_m$  はそのようなことはない。これは, 消滅核  $^{244}\text{Pu}$  の自発核分裂による重 Xe の付加 [f-成分,  $(^{134}\text{Xe}/^{136}\text{Xe})_{\text{Pu}} = 0.92$ ,  $(^{131}\text{Xe}/^{132}\text{Xe})_{\text{Pu}} = 0.29$ — $^{131}\text{Xe}$ ,  $^{132}\text{Xe}$  は T 成分が多いので変化量が小さくみえる—]に

よる。C 成分を作る核破砕ターゲットとしては希土類元素が重要であり, Pu とは地球化学的に類似しているために C 成分と f 成分の相関が現れると思う。

さて, 問題は  $(^{124}\text{Xe}/^{126}\text{Xe})_m \geq 1.1 \sim 1.2$  の領域である。先に述べたように, この領域に入るの

は C. C. が大部分と、地球試料 (Fig. 6 には入れてない) や他の隕石の一部であるが、この値が約 1.5 までのところでは、 $(^{134}\text{Xe}/^{136}\text{Xe})_m$  が大きく減少し、 $(^{131}\text{Xe}/^{132}\text{Xe})_m$  と  $(^{128}\text{Xe}/^{130}\text{Xe})_m$  はいくぶん増加の傾向がある。Allende 隕石中の FeS に囲まれたコンドリュールや硫化物包含物では  $(^{124}\text{Xe}/^{126}\text{Xe})_m$  はさらに 2.0 まで変化するが、誤差の大きさを考えると変動は明確でない。 $(^{124}\text{Xe}/^{126}\text{Xe})_m=1.1 \rightarrow 1.5$  に対する  $(^{134}\text{Xe}/^{136}\text{Xe})_m=1.2 \rightarrow 0.9$  の変化を、 $(^{124}\text{Xe}/^{126}\text{Xe})_m \approx 0.6$  でのそれと同様に  $^{244}\text{Pu}$  に帰するには  $(^{131}\text{Xe}/^{132}\text{Xe})_m$  の変化の向きが逆であるから無理である。そこで、これを Heymann らの IIa 層の高い  $^{124}\text{Xe}/^{126}\text{Xe}$  と IVa, または IVb 層の低  $^{134}\text{Xe}/^{136}\text{Xe}$  (H-Xe =  $0.72 \pm 0.02$ , Xe<sup>2</sup> =  $0.65 \pm 0.4$ ; Pepin と Phinny による) の混合の結果と考えてみる。もし、これが正しいければ、IIa と IVa, b 層の間にある  $^{134}\text{Xe}$  に富む Xe<sup>2</sup> の IIIb 層、 $^{128}\text{Xe}$  に富む IIIb 層、および上の Xe<sup>2</sup> を含み、かつ  $^{131}\text{Xe}$  を多く作る IVa 層は当然混合に加わり、その結果が混合相関として現れるはずである。Fig. 6b, c で  $(^{124}\text{Xe}/^{126}\text{Xe})_m \approx 1.1 \rightarrow 1.5$  に対する  $(^{128}\text{Xe}/^{130}\text{Xe})_m \approx 0.5 \rightarrow 0.6$  と  $(^{131}\text{Xe}/^{132}\text{Xe})_m \approx 0.80 \rightarrow 0.84$  の増加を有意の変化とみるかどうかは鍵である。これらの端成分を、理論的予想 (Heymann ら, 1980, および Clayton と Ward, 1978) を使ってともに 1.0 と仮定すると、前者の 20%, 後者の 5% の変化 (もし正しいとすれば) は同位体の存在量の逆比に相当するはずである。ちなみに、地球大気は  $(^{128}\text{Xe}/^{131}\text{Xe})_{\text{Air}} = 1/11.04$ ,  $(^{130}\text{Xe}/^{132}\text{Xe})_{\text{Air}} = 1/6.60$  で、この 1/4 に近いといえる。さらに、誤差が大きいが、 $(^{124}\text{Xe}/^{126}\text{Xe})_m \rightarrow 2.0$  に対して、 $(^{134}\text{Xe}/^{136}\text{Xe})_m$ ,  $(^{131}\text{Xe}/^{132}\text{Xe})_m$ ,  $(^{128}\text{Xe}/^{130}\text{Xe})_m$  とともに、それぞれ  $(^{124}\text{Xe}/^{126}\text{Xe})_m \rightarrow 1.5$  でみせた変動傾向とは無関係のようであり、上のシナリオとは別に考えなければならない。別のタイプの星 (赤色巨星) とこの星の内部部分 (II 層) から生じた塵の混合は一つの候補である。これらを明らかにするには、理論的精密化とともに、特に担体鉱物の性格を明らかにしつつ実験データを積み重ね、Xe の

結果のみでなく他の希ガス同位体や酸素、その他の元素の同位体の変動と照合できるようにしてゆく必要がある。また、IIa, b 層の条件での photoerosion (光分解反応) が正しいかどうかは、前節の結果からはまだ判定しがたい。

## 謝 辞

本日産助成の研究については、各年度の事業報告書 (53 年度~56 年度) で述べてきたが、全体として多岐にわたり、当初の研究の意図・計画はまだ十分に達成できたとはいえない。むしろ、本助成によって初めて、本格的研究の基礎が与えられ、これに文部省はじめ各方面から多様の援助が加えられるようになり、本研究は筆者らのライフワークとして進展することとなった。深く謝意を表するとともに、今後ともよろしくご支援をお願いしたい。

## 研究発表

- 1) Y. Hamajima, K. Yamazaki, K. Itoh and K. Sakamoto: Determination of Uranium in Constituent Minerals of Meteorites and Igneous Rocks by Thermal Extraction of  $^{133}\text{Xe}$ , The ACS-CSJ Chemical Congress, Paper No. GEOC-39, April 1-6, 1979, Honolulu, Hawaii.
- 2) K. Sakamoto: Xenon Components in Meteorites, in Lunar Samples and in the Earth's Materials, The ACS-CSJ Chemical Congress, Paper No. GEOC-41, April 1-6, 1979, Honolulu, Hawaii.
- 3) K. Sakamoto: Xenon Components in Meteorites, in Lunar Samples and in the Earth's Materials, Proc. 16th Intern. Cosmic Ray Conf. (Kyoto), Vol. 2, Paper No. OG-12-26 (Aug., 1979).
- 4) 浜島靖典, 伊藤和夫, 山口晋志, 坂本 浩: 岩石鉱物からの核分裂生成  $^{133}\text{Xe}$  の加熱放出パターン, 第 23 回放射化学討論会要旨集, p. 76 (1979).
- 5) 坂本 浩, 浜島靖典: 岩石鉱物からの核分裂生成  $^{133}\text{Xe}$  の加熱放出パターン—耐火性鉱物についてのイン石等との比較—, 第 24 回放射化学討論会講演要旨集, p. 46 (1980).
- 6) 浜島靖典, 寅本尚男, 堂庭雅夫, 坂本 浩: 200 MeV 制動放射線による  $^{133}\text{Cs}$ ,  $^{139}\text{La}$  の核反応における取率分布, 第 24 回放射化学討論会要旨集, p. 42 (1980).
- 7) 坂本 浩, 浜島靖典, 清水隆夫, 岡田喜久雄, 宮下和久, 伊達二郎: 小坂 dacite の "アラユルニウム" と barite の REE, 1980 年度日本地球化学会年會要旨集, p. 127 (1980).
- 8) 坂本 浩: 炭素質コンドライトの Xenon Isoto-

- pes, 1980 年度日本地球化学会年会要旨集, p. 313 (1980).
- 9) K. Sakamoto, K. Itoh, T. Takashima, S. Yokoyama and K. Yamazaki: "Uranium Determination by  $^{133}\text{Xe}$  in Meteorites: Comparative Study with Fission Track and/or  $^{239}\text{Np}$  Methods and Thermal Release Character of  $^{133}\text{Xe}$ , J. Radioanal. Chem., **60**, 323-342 (1980).
  - 10) K. Sakamoto, Y. Hamajima, K. Itoh and K. Yamazaki: Uranium Determinations by  $^{133}\text{Xe}$  in Terrestrial Zircon, Apatite and Chromite: Comparative Study of Thermal Releases of Fissionogenic Xenon from Terrestrial and Meteoritic Minerals, J. Radioanal. Chem., **60**, 343-352 (1980).
  - 11) K. Sakamoto, Y. Hamajima, S. Yamaguchi, T. Takashima and K. Itoh: Uranium Determination by  $^{133}\text{Xe}$  in Mineral Separates from Igneous Rocks: Comparative Study with Fission Track and Thermal Release Characters on  $^{133}\text{Xe}$ , J. Radioanal. Chem., **60**, 411-422 (1980).
  - 12) 坂本 浩: 金沢大希ガス用質量分析計について, 東大宇宙線研究所報告, ICR-30-81-1, p. 41 (1981).
  - 13) 坂本 浩, 浜島靖典: 金沢大希ガス用質量分析計について, 日本質量分析学会 1980 年度同位体比部会研究会 (1981. 3. 於箱根).
  - 14) 浜島靖典: 岩石鉱物からの核分裂生成  $^{133}\text{Xe}$  の加熱放出パターンの研究 および希ガス用質量分析計の整備, 金沢大学大学院理学研究科修士論文 (1981. 3).
  - 15) 岡田喜久雄: 造岩鉱物中の微量元素の分配, 金沢大学理学部化学教室第 29 回卒業研究要旨集, No. 19 (1981. 3).
  - 16) 堂庭雅夫: 200 MeV 制動放射線による  $^{133}\text{Cs}$  および  $^{139}\text{La}$  の光核破砕反応の収率, 金沢大学理学部化学教室第 29 回卒業研究要旨集, No. 26 (1981. 3).
  - 17) 堂庭雅夫, 浜島靖典, 岡田喜久雄, 坂本 浩:  $^{133}\text{Cs}$  と  $^{139}\text{La}$  の光核破砕反応の収率分布: 100 MeV vs. 200 MeV, 第 25 回放射化学討論会要旨集, p. 2 (1981).
  - 18) 西尾正善: Natural-Rb, Sr および Y の 100 MeV および 200 MeV 制動放射線による核破砕反応の収率測定, 金沢大学理学部化学教室第 30 回卒業研究要旨集, p. 3 (1982. 3).
  - 19) 納家博司: Allende 隕石の構成成分の分離の試みとその元素分析, 金沢大学理学部化学教室第 30 回卒業研究要旨集, p. 31 (1982. 3).
  - 20) 菊井正明: 黒鉱随伴岩における元素の鉱物間分布, 金沢大学理学部化学教室第 30 回卒業研究要旨集, p. 45 (1982. 3).
  - 21) 堂庭雅夫, 西尾正善, 岡田喜久雄, 坂本 浩: Natural Rb, Sr,  $^{89}\text{Y}$  の光核破砕反応における収率分布—100 MeV vs. 200 MeV—, 第 26 回放射化学討論会要旨集, p. 32 (1982).
  - 22) 岡田喜久雄, 菊井正明, 清水隆夫, 坂本 浩: 黒鉱随伴岩における元素分布, 1982 年度日本地球化学会年会要旨集, 3D04 (1982. 10. 沖繩).
  - 23) 日産科学振興財団, 第 5 回 (昭和 53 年度; p. 149), 第 6 回 (昭和 54 年度; p. 132), 第 7 回 (昭和 55 年度; p. 118), 第 8 回 (昭和 56 年度; p. 107) 事業報告書.