

論文 / 著書情報  
Article / Book Information

題目(和文)	負イオン表面電離型質量分析計による精密モリブデン同位体分析法の開発および隕石における元素合成由来の同位体異常の研究
Title(English)	Development of Precise Molybdenum Isotope Analysis by Negative Thermal Ionization Mass Spectrometry and Its Application to the Study of Nucleosynthetic Isotope Anomalies in Meteorites
著者(和文)	永井友一郎
Author(English)	Yuichiro Nagai
出典(和文)	学位:博士(理学), 学位授与機関:東京工業大学, 報告番号:甲第10075号, 授与年月日:2016年3月26日, 学位の種別:課程博士, 審査員:横山 哲也,中本 泰史,綱川 秀夫,上野 雄一郎,太田 健二
Citation(English)	Degree:Doctor (Science), Conferring organization: Tokyo Institute of Technology, Report number:甲第10075号, Conferred date:2016/3/26, Degree Type:Course doctor, Examiner:,,,,,
学位種別(和文)	博士論文
Category(English)	Doctoral Thesis
種別(和文)	論文要旨
Type(English)	Summary

# 論文要旨

## THESIS SUMMARY

専攻： Department of	地球惑星科学	専攻	申請学位 (専攻分野)： 博士 Academic Degree Requested	博士 (理学) Doctor of
学生氏名： Student's Name	永井 友一郎		指導教員 (主)： Academic Advisor(main)	横山 哲也
			指導教員 (副)： Academic Advisor(sub)	綱川 秀夫

### 要旨 (和文 2000 字程度)

Thesis Summary (approx.2000 Japanese Characters)

本論文は「Development of Precise Molybdenum Isotope Analysis by Negative Thermal Ionization Mass Spectrometry and Its Application to the Study of Nucleosynthetic Isotope Anomalies in Meteorites」と題し、以下の4章で構成されている。

第1章「General Introduction」では、モリブデン (Mo) 同位体の宇宙地球化学的応用について紹介し、本論文の目的について述べている。Mo は酸化還元反応に応じて質量依存型の同位体分別を起こす元素であり、地球表層環境の変動を解明する重要なトレーサーとして広く用いられてきた。近年の質量分析技術の向上により、隕石にごくわずかな非質量依存型の Mo 同位体分別が発見されるようになってきた。これは恒星における原子核合成に由来する同位体異常であり、その結果を用いて元素合成過程や同位体異常の担体となるプレソーラー粒子の起源が研究されてきた。一方、このような隕石の Mo 同位体異常の存在は、初期太陽系における重元素同位体の不均質分布を反映している。隕石の同位体異常は Mo 以外にも Ti や Cr といった元素に確認されているが、その同位体異常を生み出すメカニズムは依然として明確になっていない。そこで本研究では、隕石の Mo 同位体異常を従来より高精度・高確度で測定することで、初期太陽系の物質進化過程を明らかにすることを目的とした。

第2章「Chemical Separation Procedure of Mo and W」では、本研究の目的元素である Mo だけでなく、W や HFSE 元素群 (Ti・Zr・Hf) を、陰イオン交換樹脂 (Eichrom AG1X8) により同時に化学分離する手法を開発した。バッチ法により樹脂の分配係数を決定し、化学分離に必要な溶液・樹脂の量を最小限に抑える方法を決定した。この化学分離過程により、岩石の種類によらず、Mo を始めとする各元素を 90%以上で回収することに成功した。

第3章「Molybdenum Isotopic Analysis with Negative Thermal Ionization Mass Spectrometry (N-TIMS)」では、隕石の同位体異常の検出に向けて、N-TIMS 法による高精度 Mo 同位体比分析法の開発を行った。Mo は酸化物の陰イオン ( $\text{MoO}_3^-$ ) として検出されるため、Mo に結合している酸素同位体組成を測定値に基づいて決定することで、同重体干渉を補正した。また、イオン化促進剤に硝酸ランタンを選択し、測定元素の 5 倍の量を塗布することで、最も強い Mo 酸化物のイオンビームを得られることを示した。開発した手法により、従来の誘導結合プラズマ質量分析計より高精度 (誤差約 10ppm) での Mo 同位体比分析を可能にした。

第4章「Molybdenum Isotope Anomalies in Non-Carbonaceous Meteorites」では、非炭素質隕石 (普通コンドライト、ルムルチコンドライト、鉄隕石) の高精度 Mo 同位体分析を行った。その結果、測定された非炭素質コンドライトは全て Mo 同位体異常をもち、その値は先行研究が示す炭素質コンドライトの Mo 同位体異常と明確に異なることを示した。これは、太陽系星雲において Mo 同位体組成の異なるリザーバーが、少なくとも 2 種類存在することを意味する。鉄隕石の Mo 同位体異常も非炭素質コンドライトと同じ傾向を示すが、例外的に IVB 鉄隕石は炭素質コンドライトと同じ傾向を示し、より酸化的な環境で形成したことが明らかとなった。このような 2 種類のリザーバーの存在は、Ni・Mo 同位体異常の組み合わせからも支持される。リザーバーによる同位体組成の違いは、異なる核合成過程の情報を持つ複数のプレソーラー粒子が、形成領域においてそれぞれ異なる物理化学過程を受けたことを反映している。更に Mo・Ru 同位体異常の組み合わせを用いて、非炭素質隕石の同位体異常が単一のプレソーラー粒子により引き起こされたものではないことを明らかにした。非炭素質隕石グループに属する鉄隕石に見られる Mo 同位体異常が Ga/Ni 比と正の相関を示すことから、これらの鉄隕石の母天体が形成した領域では、炭素質コンドライトの同位体異常を引き起こしたものと異なる組み合わせのプレソーラー粒子が存在していたことが明らかとなった。

備考：論文要旨は、和文 2000 字と英文 300 語を 1 部ずつ提出するか、もしくは英文 800 語を 1 部提出してください。

Note：Thesis Summary should be submitted in either a copy of 2000 Japanese Characters and 300 Words (English) or 1 copy of 800 Words (English).

注意：論文要旨は、東工大リサーチリポジトリ(T2R2)にてインターネット公表されますので、公表可能な範囲の内容で作成してください。

Attention: Thesis Summary will be published on Tokyo Tech Research Repository Website (T2R2).

## 論文要旨

THESIS SUMMARY

専攻 : Department of	地球惑星科学	専攻	申請学位 (専攻分野) : Academic Degree Requested	博士 (理学) Doctor of
学生氏名 : Student's Name	永井 友一朗		指導教員 (主) : Academic Advisor(main)	横山 哲也
			指導教員 (副) : Academic Advisor(sub)	綱川 秀夫

要旨 (英文 300 語程度)

Thesis Summary (approx.300 English Words)

Molybdenum is one of the promising element to investigate chemical or physical processes in the field, including cosmochemistry. It has seven stable isotopes with small mass-independent fractionations observed for various kinds of meteorites with the marginal deviations (<1‰). These fractionations are nucleosynthetic in origin, which are named as “isotope anomalies”. Molybdenum isotope anomalies for various meteorites provide strong constrains on studies concerning environmental sciences, stellar nucleosynthesis, and the origin and evolution of the Solar System, while it remains unsolved problems due to the lack of the precision for Mo isotope analysis. In this study, we develop sequential analytical methods, chemical separation and highly precise isotope analysis by utilizing N-TIMS for the study of Mo isotope anomalies in meteorites.

First, we develop chemical separation procedures of Mo, as well as W, on the basis of the obtained distribution coefficients. The performance of this new technique was evaluated by separating these elements from several terrestrial and extraterrestrial samples. Second, highly precise Mo isotope analyses are established by utilizing N-TIMS. To achieve highly precise Mo isotope analysis, it is important to determine the in-situ O isotope composition for each measurement and use the data to correct for the O isotope interferences. The reproducibilities have been improved at the level of 10ppm for  $^{95}\text{Mo}/^{96}\text{Mo}$ .

Molybdenum isotopic compositions in seven non-carbonaceous chondrites, and five iron meteorites are obtained. Our Mo isotopic data reveal that carbonaceous chondrites and non-carbonaceous chondrites exhibit different Mo isotopic compositions, which reflect the existence of at least two isotopically distinct reservoirs in the solar nebula. Molybdenum isotope anomalies in non-carbonaceous chondrites are not simply correlated with the Ru isotope anomalies, which suggest that the Mo and Ru anomalies were not caused by a single process, but probably coincided with the fractionation of Mo and Ru. The positive correlations between Mo isotope anomalies and Ga/Ni ratios would reflect the behavior of the carriers enriched in r-process and p-process isotopes in the early Solar System.

備考 : 論文要旨は、和文 2000 字と英文 300 語を 1 部ずつ提出するか、もしくは英文 800 語を 1 部提出してください。

Note : Thesis Summary should be submitted in either a copy of 2000 Japanese Characters and 300 Words (English) or 1copy of 800 Words (English).

注意 : 論文要旨は、東工大リサーチリポジトリ(T2R2)にてインターネット公表されますので、公表可能な範囲の内容で作成してください。

Attention: Thesis Summary will be published on Tokyo Tech Research Repository Website (T2R2).